



UNIVERSIDADE FEDERAL DE PERNAMBUCO
CENTRO DE TECNOLOGIA E GEOCIÊNCIAS
DEPARTAMENTO DE ENERGIA NUCLEAR
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM TECNOLOGIAS
ENERGÉTICAS E NUCLEARES

DANIEL MILIAN PÉREZ

**PROJETO E ANÁLISE NEUTRÔNICO-TERMOIDRÁULICA DE UM REATOR
HOMOGÊNEO AQUOSO USANDO COMBUSTÍVEL DE BAIXO
ENRIQUECIMENTO PARA A PRODUÇÃO DE RADIOISÓTOPOS USADOS NA
MEDICINA**

Recife

2020

DANIEL MILIAN PÉREZ

**PROJETO E ANÁLISE NEUTRÔNICO-TERMOIDRÁULICA DE UM REATOR
HOMOGÊNEO AQUOSO USANDO COMBUSTÍVEL DE BAIXO
ENRIQUECIMENTO PARA A PRODUÇÃO DE RADIOISÓTOPOS USADOS NA
MEDICINA**

Tese apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Tecnologias Energéticas e Nucleares da Universidade Federal de Pernambuco, como requisito parcial para a obtenção do título de Doutor em Ciências.

Área de Concentração: Engenharia de reatores.

Orientador: Prof. Dr. Carlos Alberto Brayner de Oliveira Lira.

Coorientador: Prof. Dr. Daniel Evelio Milian Lorenzo.

Recife

2020

M644p Milian Perez, Daniel.
Projeto e análise neutrônico-termo-hidráulica de um reator homogêneo aquoso usando combustível de baixo enriquecimento para a produção de radioisótopos usados na medicina / Daniel Milian Perez - 2020.

134folhas, il., gráfs., tabs.

Orientador: Prof. Dr. Carlos Alberto Brayner de Oliveira Lira.

Coorientador: Prof. Dr. Daniel Evelio Milian Lorenzo.

Tese (Doutorado) – Universidade Federal de Pernambuco. CTG.
Programa de Pós-Graduação em Tecnologias Energéticas e Nucleares, 2020.

Inclui Referências e Apêndices.

1. Energia Nuclear. 2. Isótopos médicos. 3. Reator homogêneo aquoso. 4. Monte Carlo. 5. Dinâmica de fluido computacional. 6. Metodologia computacional. I. Lira, Carlos Alberto Brayner de Oliveira (Orientador). II. Lorenzo, Daniel Evelio Milian (Coorientador). III. Título

UFPE

621.483 CDD (22. ed.)

BCTG/2020-291

DANIEL MILIAN PÉREZ

**PROJETO E ANÁLISE NEUTRÔNICO-TERMOIDRÁULICA DE UM REATOR
HOMOGÊNEO AQUOSO USANDO COMBUSTÍVEL DE BAIXO
ENRIQUECIMENTO PARA A PRODUÇÃO DE RADIOISÓTOPOS USADOS NA
MEDICINA**

Tese apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Tecnologias Energéticas e Nucleares da Universidade Federal de Pernambuco, como requisito parcial para a obtenção do título de Doutor em Ciências.

Aprovada em: 17/03/2020.

BANCA EXAMINADORA

Prof. Dr. Carlos Alberto Brayner de Oliveira Lira (Orientador)
Centro Regional de Ciências Nucleares do Nordeste/
Comissão Nacional de Energia Nuclear

Prof. Dr. Mário Augusto Bezerra da Silva (Examinador Interno)
Universidade Federal de Pernambuco

Prof. Dr. Jair de Lima Bezerra (Examinador Interno)
Universidade Federal de Pernambuco

Prof. Dr. Fernando Roberto de Andrade Lima (Examinador Externo)
Centro Regional de Ciências Nucleares do Nordeste/
Comissão Nacional de Energia Nuclear

Prof. Dr. Leorlen Yunier Rojas Mazaira (Examinador Externo)
Centro Regional de Ciências Nucleares do Nordeste/
Comissão Nacional de Energia Nuclear

Dedico esse trabalho a minha família.

AGRADECIMENTOS

Agradeço a todos familiares e amigos que direta ou indiretamente me auxiliaram e apoiaram na elaboração deste trabalho, em especial:

A minha mãe, a meu pai, a meus avós e a minha irmã que apesar da distância, sempre me deram forças e me encorajaram para continuar este trabalho até o fim.

A minha noiva e amigos.

Ao Professor Carlos Brayner, meu orientador.

Aos Professores e colegas do grupo de reatores.

Ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq) pelo apoio financeiro sem o qual não seria possível a construção da presente pesquisa.

Ao Programa de Pós-Graduação em Tecnologias Energéticas e Nucleares (PROTEN) do Departamento Energia Nuclear da Universidade Federal de Pernambuco pelos apoios financeiros e de infraestrutura.

Por fim, agradeço mais uma vez a minha família por sempre me apoiarem e acreditarem na conclusão de mais esta etapa na minha vida.

RESUMO

Dos mais de 200 radioisótopos que são utilizados regularmente na medicina nuclear, é o Tecnécio-99 metastável (^{99m}Tc) o mais amplamente utilizado, visto que é empregado em 80% de todos os procedimentos de diagnóstico realizados neste ramo da medicina, o que implica anualmente em 30-40 milhões de procedimentos em todo o mundo. Embora, o ^{99m}Tc possa ser produzido diretamente em um ciclotron ou acelerador de partículas, ele é quase exclusivamente produzido a partir do decaimento beta do radioisótopo Molibdênio-99 (^{99}Mo). Atualmente, a maior parte da produção de ^{99}Mo para atender a demanda global estimada em 9400 seis dias Curie por semana depende de um reduzido grupo de reatores de pesquisa heterogêneos, a maioria deles com mais de 50 anos de operação. Por conseguinte, é esperado que problemas de disponibilidade ocorram, devido à necessidade de paradas prolongadas para trabalho de manutenção planejada e não planejada, causando prejuízos no mercado do ^{99}Mo e de outros radioisótopos, tornando a cobertura da demanda e seu crescimento anual um desafio para toda a cadeia de fornecimento de ^{99}Mo . A produção de ^{99}Mo em Reatores Homogêneos Aquosos (AHR) é uma alternativa atraente em comparação com o método tradicional de irradiação de alvos em reatores heterogêneos devido ao seu baixo custo, pequena massa crítica, segurança passiva inerente e características simplificadas de manuseio, processamento e purificação do combustível. Embora a utilização de AHR na produção de isótopos médicos seja potencialmente vantajosa, o uso de combustível de Urânio de baixo enriquecimento (LEU), impõe um número de desafios que deve ser levado em consideração quando o reator é projetado. Assim sendo, a presente pesquisa tem como objetivo o projeto e análise de um projeto conceitual de AHR, baseado no reator ARGUS, que usa combustível LEU para a produção de isótopos médicos que responde à demanda regional. Para alcançar esse resultado foram otimizadas as características do projeto conceitual do núcleo do reator visando garantir as condições de operação seguras e a produção prevista, através do desenvolvimento e implementação de uma metodologia computacional baseada em avançados modelos e códigos de computador acoplados baseados na teoria de Monte Carlo e na Dinâmica de Fluidos Computacional para o estudo das características físico-neutrônicas e termoidráulicas. Os resultados obtidos na presente pesquisa contribuem para demonstrar a viabilidade do uso de AHR para a produção de isótopos médicos, em especial a produção de ^{99}Mo .

Palavras-chave: Isótopos médicos. Reator homogêneo aquoso. Monte Carlo. Dinâmica de fluido computacional. Metodologia computacional.

ABSTRACT

Nowadays, ^{99m}Tc is the most common radioisotope used in nuclear medicine, as it is used in 80% of all nuclear medicine diagnostic procedures, with up to 30-40 million procedures worldwide every year. Although ^{99m}Tc can be produced directly in a cyclotron or particle accelerator, it is almost exclusively produced from the beta-decay of its 66-h parent ^{99}Mo . Currently, most of the ^{99}Mo production to meet global demand estimated at 9400 six days Curie per week depends on a small group of heterogeneous research reactors, most of them with more than 50 years of operation. Therefore, availability problems are expected to occur due to the need for prolonged downtime for planned and unplanned maintenance work, causing damage to the ^{99}Mo and other radioisotopes market. The ^{99}Mo production in an Aqueous Homogeneous Reactor (AHR) is an attractive alternative compared to the traditional method of target irradiation in heterogeneous reactors because of its low cost, small critical mass, inherent passive safety, and simplified fuel handling, processing, and purification characteristics. Although the use of AHR in the production of medical isotopes is potentially advantageous, the use of LEU fuel poses a challenge that must be considered when designing the reactor. Therefore, this research is related to the proposal and analysis of an AHR conceptual design based on the ARGUS reactor and using LEU fuel to produce medical isotopes for a regional demand. To achieve this goal, the design features of the AHR conceptual design was optimized to ensure safe operating conditions and the expected medical isotopes production through the development and implementation of a computational methodology based on advanced coupled computational models and codes based on the Monte Carlo theory and the Computational Fluid Dynamics for the study of physical-neutron and thermohydraulic characteristics. The results obtained in this research contribute to demonstrate the feasibility of using AHR for the production of medical isotopes, in particular the production of ^{99}Mo .

Keywords: Medical isotopes. Aqueous Homogeneous Reactor. Monte Carlo. Computational Fluid Dynamics. Computational methodology.

LISTA DE FIGURAS

Figura 1 – Decaimento beta do ^{99}Mo	24
Figura 2 – Cadeia de suprimentos do ^{99}Mo	25
Figura 3 – Distribuição típica das massas dos produtos de fissão do ^{233}U (verde), ^{235}U (vermelho), ^{239}Pu (azul) e 65% Urânio + 35% Plutônio (preto).....	25
Figura 4 – ^{99}Mo produzidos pela fissão em aceleradores	27
Figura 5 – ^{99}Mo produzido pela ativação neutrônica do ^{98}Mo	27
Figura 6 – ^{99}Mo produzido pela fotofissão do ^{100}Mo	28
Figura 7 – Principais reatores de pesquisa usados na produção de ^{99}Mo	29
Figura 8 – Esboço do reator LOPO	34
Figura 9 – Recipiente e tubos helicoidais do reator SUPO	35
Figura 10 – SHEBA.....	35
Figura 11 – HRE-1	36
Figura 12 – Reator ARGUS	37
Figura 13 – a) Recipiente cilíndrico com fundo semiesférico do reator ARGUS, b) Canais "secos" e sistema de remoção de calor helicoidal do núcleo do reator.....	38
Figura 14 – Esboço do reator ARGUS	39
Figura 15 – Esquema de funcionamento do conceito de centro de produção de isótopos médicos com dois AHR	43
Figura 16 – Esquema do projeto conceitual SR-RN	44
Figura 17 – Esquema do projeto conceitual da “Kraznaya Zvezda”	45
Figura 18 – Esquema do terceiro projeto conceitual	46
Figura 19 – Esquema do ARGUS-M.....	47
Figura 20 – Comparação entre os valores das massas de ^{99}Mo obtidas com o procedimento analítico e as obtidas com o código MCNPX.....	54
Figura 21 – Processo iterativo da metodologia computacional	61
Figura 22 – História de um nêutron incidente	63
Figura 23 – Desenvolvimento do código MCNP durante o século XX	64
Figura 24 – Desenvolvimento do código MCNP durante o século XXI.....	64
Figura 25 – Variação da temperatura média e da fração volumétrica de gás na solução combustível para as seis malhas estudadas.....	72
Figura 26 – Variação da velocidade média da solução combustível e das bolhas de gás para as seis malhas estudadas	72

Figura 27 – Vista longitudinal do núcleo do reator, incluindo recipiente, solução combustível, canais do núcleo e tubulação helicoidal.....	75
Figura 28 – Vista longitudinal do núcleo do reator, incluindo refletor de grafite e elementos estruturais.....	76
Figura 29 – Vista transversal do núcleo do reator, incluindo refletor de grafite, elementos estruturais e arranjo de canais.....	76
Figura 30 – Vista longitudinal do projeto conceitual de AHR no Editor Visual do MCNP	80
Figura 31 – Vista transversal do projeto conceitual de AHR no Editor Visual do MCNP	81
Figura 32 – Vista longitudinal do projeto conceitual de AHR com dois tubos helicoidais no Editor Visual do MCNP.....	81
Figura 33 – Vista longitudinal do projeto conceitual de AHR com representação explícita das bolhas de gás radiolítico no Editor Visual do MCNP.....	82
Figura 34 – Núcleo do projeto conceitual de AHR para suprir a demanda regional desenvolvido no módulo ANSYS SpaceClaim	83
Figura 35 – Renderização do núcleo do projeto conceitual de AHR para suprir a demanda regional na ferramenta Keyshot 6.....	84
Figura 36 – Malha da solução combustível usando o módulo ANSYS Meshing	84
Figura 37 – Regiões de interesse que compõem o núcleo do projeto conceitual de AHR	85
Figura 38 – Distribuições volumétricas de temperatura das quatro configurações experimentais	90
Figura 39 – Variação da temperatura média da solução combustível para as duas configurações de operação do reator ARGUS.....	92
Figura 40 – Variação da velocidade média da solução combustível para as duas configurações de operação do reator ARGUS	92
Figura 41 – Variação da velocidade média das bolhas de gás radiolítico para as duas configurações de operação do reator ARGUS.....	93
Figura 42 – Variação da fração volumétrica de gás na solução combustível para as duas configurações de operação do reator ARGUS.....	93
Figura 43 – Distribuições volumétricas de temperatura da solução combustível para as duas configurações de operação do reator ARGUS.....	94
Figura 44 – Vista longitudinal dos perfis de velocidade da solução combustível para as duas configurações de operação do reator ARGUS.....	95
Figura 45 – Vista longitudinal dos perfis de velocidade das bolhas de gás radiolítico para as duas configurações de operação do reator ARGUS	95

Figura 46 – Distribuições volumétricas da fração volumétrica de gás na solução combustível para as duas configurações de operação do reator ARGUS	96
Figura 47 – Distribuição volumétrica de temperatura da solução combustível do projeto conceitual de AHR de 75 kWt	99
Figura 48 – Distribuição volumétrica de temperatura da solução combustível do projeto conceitual de AHR de 75 kWt com uma taxa de fluxo de líquido de refrigeração de 0,6 m ³ /h	100
Figura 49 – Distribuição volumétrica de temperatura da solução combustível do projeto conceitual de AHR de 75 kWt com uma taxa de fluxo de líquido de refrigeração de 0,6 m ³ /h a 10 °C	101
Figura 50 – Distribuição volumétrica de temperatura da solução combustível do projeto conceitual de AHR de 75 kWt, usando um sistema de remoção de calor com dois tubos helicoidais pelos quais circula líquido de refrigeração com uma taxa de fluxo de 0,6 m ³ /h a 10 °C	102
Figura 51 – Distribuição volumétrica de temperatura da solução combustível do projeto conceitual de AHR de 50 kWt com uma taxa de fluxo de líquido de refrigeração de 0,6 m ³ /h a 10 °C	103
Figura 52 – Distribuição volumétrica de temperatura da solução combustível do projeto conceitual de AHR de 50 kWt, usando um sistema de remoção de calor com dois tubos helicoidais pelos quais circula líquido de refrigeração com uma taxa de fluxo de 1,0 m ³ /h a 10 °C	104
Figura 53 – Variação da temperatura média e da fração volumétrica de gás na solução combustível no projeto conceitual de AHR de 50 kWt	105
Figura 54 – Variação da velocidade média da solução combustível e das bolhas de gás radiolítico no projeto conceitual de AHR de 50 kWt	105
Figura 55 – Distribuição volumétrica de temperatura da solução combustível do projeto conceitual de AHR de 50 kWt	107
Figura 56 – Localização das zonas da solução combustível com temperaturas acima de 80 °C	107
Figura 57 – Perfis de temperatura da solução combustível nos planos centrais XY e YZ.....	108
Figura 58 – Perfis de velocidade da solução combustível nos planos centrais XY e YZ	109
Figura 59 – Perfis de velocidade das bolhas de gás radiolítico nos planos centrais XY e YZ	109

Figura 60 – Evolução das linhas de fluxo da solução combustível e das bolhas de gás radiolítico	110
Figura 61 – Distribuição da fração volumétrica das bolhas de gás radiolítico no núcleo do projeto conceitual de AHR de 50 kWt.....	111
Figura 62 – Evolução do K_{eff} com a queima do combustível nuclear durante dez anos de operação a potência nominal	112
Figura 63 – Evolução da massa de ^{235}U no núcleo do projeto conceitual de AHR com a queima do combustível nuclear	113
Figura 64 – Evolução da massa de ^{239}Pu no núcleo do projeto conceitual de AHR com a queima do combustível nuclear	113
Figura 65 – Acumulação dos isótopos médicos ^{89}Sr , ^{133}Xe , ^{131}I , ^{132}I e ^{133}I durante 528 horas de operação do projeto conceitual de AHR	114
Figura 66 – Acumulação do isótopo médico ^{99}Mo durante 528 horas de operação do projeto conceitual de AHR.....	115
Figura 67 – Esquema de operação do projeto conceitual de AHR para a produção de ^{99}Mo	115
Figura 68 – Localização dos seis detectores usados para avaliar o decaimento da população de nêutrons em função do tempo.....	118
Figura 69 – Fluxo de nêutrons nos seis detectores após três milhões de pulsos da fonte no núcleo do projeto conceitual de AHR.....	118
Figura 70 – Fluxo médio de nêutrons nos seis detectores após três milhões de pulsos da fonte no núcleo do projeto conceitual de AHR.....	119

LISTA DE TABELAS

Tabela 1 – Principais reatores utilizados na produção de ^{99}Mo	30
Tabela 2 – Produção de isótopos médicos prevista no reator SR-RN	44
Tabela 3 – Principais características do segundo projeto conceitual de AHR	45
Tabela 4 – Principais características dos projetos baseados no reator ARGUS	48
Tabela 5 – Parâmetros proposto para as bolhas de gás.....	57
Tabela 6 – Seis malhas estudadas.....	71
Tabela 7 – Configurações dos quatro experimentos críticos.....	77
Tabela 8 – Parâmetros fundamentais do projeto conceitual de AHR.....	78
Tabela 9 – Resultado dos cálculos com os códigos MCNP6 e MCU	89
Tabela 10 – Temperaturas nas quatro configurações experimentais.....	91
Tabela 11 – Temperaturas nas duas configurações de operação do reator ARGUS	96
Tabela 12 – Fração efetiva de nêutrons atrasados (β_{eff}) do projeto conceitual de AHR.....	117
Tabela 13 – Resultado dos cálculos de β_{eff} e λ	119

LISTA DE ABREVIATURAS E SIGLAS

AHR	Aqueous Homogeneous Reactor (Reatores Homogêneos Aquosos)
B e W	Grupo de Serviços Técnicos Babcock e Wilcox
CFD	Computational Fluid Dynamics (Dinâmica de Fluidos Computacional)
Ci	Curie
CRP	Coordinated Research Project (Projeto de Pesquisa Coordenada)
CRS	Catalytic Regeneration System (Sistema de Regeneração Catalítica)
CNEN	Comissão Nacional de Energia Nuclear do Brasil
FMESH	Superimposed Mesh Tally (Tally de malha sobreposta)
FMSR	Fuel Management for Solution Reactor (Gerenciamento de combustível para reatores de solução)
HEU	Highly Enriched Uranium (Urânio de alto enriquecimento).
HFR	High Flux Reactor (Reator nuclear nos Países Baixos)
HLG-MR	High-level Group on the Security of Supply of Medical Radioisotopes (Grupo de Alto Nível sobre a Segurança do Fornecimento de Radioisótopos Médicos)
HRE-1	Homogeneous Reactor Experiment 1 (Experimento de Reator Homogêneo 1)
HRE-2	Homogeneous Reactor Test 2 (Teste de Reator Homogêneo 2)
HYPO	HIgh POWer (Reator de alta potência)
IAEA	International Atomic Energy Agency (Agência Internacional de Energia Atômica)
IPPE	Instituto de Física e Engenharia de Energia (Obninsk, Federação Russa)
LEU	Low Enriched Uranium (Urânio de baixo enriquecimento)
LOPO	LOw POWer (Reator de baixa potência)
MCNP	Monte Carlo NParticle
MIPR	Medical Isotope Production Reactor (Reator de Produção de Isótopos Médicos)
MIPS	Medical Isotope Production System (Sistema de Produção de Isótopos Médicos)
NEA	Nuclear Energy Agency (Agência de Energia Nuclear)
NRU	National Research Universal (Reator nuclear no Canadá)
RMB	Reator Multipropósito Brasileiro

ROSATOM	Corporação estatal de energia atômica da Federação Russa
SBF	Specified Blend Factor (Fator de mistura especificado)
SC	Solução combustível
SHEBA	Solution High-Energy Burst Assembly (Conjunto de solução e pulsos de alta energia)
SHINE	Subcritical Hybrid Intense Neutron Emitter (Emissor intenso de nêutrons subcrítico híbrido)
SR-RN	Solution Reactor – Radio Nuclides (Reator de Solução - Radio Nuclides)
SST	Shear Stress Transport (Transporte de tensão de cisalhamento)
SUPO	SUper POWer (Reator de superpotência)

LISTA DE SÍMBOLOS

C_p	Calor específico
Gr	Número de Grashof
k	Condutividade térmica
K_{eff}	Fator de multiplicação efetivo
K_p	Fator de multiplicação considerando apenas a contribuição dos nêutrons prontos
pcm	Por cem mil (* 100000)
Re	Número de Reynolds
α_0	Constante de decaimento
β_{eff}	Fração efetiva de nêutrons atrasados
ρ	Densidade
ρ'	Reatividade
μ	Viscosidade dinâmica
Λ	Tempo médio de geração de nêutrons
Λ_{eff}	Tempo médio efetivo de geração de nêutrons (incluindo os atrasados)
τ_r	Tempo de remoção dos nêutrons prontos

SUMÁRIO

1	INTRODUÇÃO	18
2	REVISÃO DE LITERATURA	23
2.1	Isótopos médicos	23
2.2	Métodos de obtenção do ^{99m}Tc.....	24
2.3	Irradiação de alvos de Urânio	26
2.4	Outros esquemas de produção de ⁹⁹Mo	27
2.5	Demanda e oferta de isótopos médicos	28
2.6	Reator Homogêneo Aquoso (AHR).....	32
2.7	Produção de ⁹⁹Mo utilizando AHR	39
2.8	Conclusões do capítulo	48
3	MATERIAL E MÉTODOS	50
3.1	Soluções combustível	50
3.1.1	Solução combustível de sulfato de uranila	50
3.1.2	Solução combustível de nitrato de uranila.....	51
3.1.3	Solução combustível de fluoreto de uranila.....	51
3.1.4	Seleção da solução combustível	52
3.2	Produção de ⁹⁹Mo e potência térmica do AHR.....	52
3.3	Produção de gás a partir da decomposição radiolítica da água.....	55
3.4	Métodos de remoção de calor do AHR	58
3.5	Descrição da plataforma computacional	59
3.5.1	Metodologia computacional	60
3.5.2	O método de Monte Carlo	62
3.5.3	MCNP6.....	64
3.5.4	Dinâmica de Fluidos Computacional.....	66
3.5.5	ANSYS CFX-19	67
3.6	Avaliação da capacidade de previsão	72
3.6.1	Experimentos críticos Instituto Kurchatov 1980-1981.....	73
3.6.2	Configurações de operação normal do reator russo ARGUS	77
3.7	Projeto conceitual de AHR	77
3.7.1	Modelo em MCNP6 do projeto conceitual de AHR.....	79

3.7.2	Modelo em ANSYS-CFX-19 do projeto conceitual de AHR	82
3.8	Conclusões do capítulo	86
4	AVALIAÇÃO DA CAPACIDADE DE PREVISÃO.....	88
4.1	Capacidade de previsão dos modelos desenvolvidos	88
4.2	Capacidade de previsão da metodologia computacional	91
4.3	Conclusões do capítulo	96
5	RESULTADOS E DISCUSSÃO.....	98
5.1	Projeção do novo sistema de remoção de calor.....	98
5.2	Estudo das características físico-neutrônicas.....	104
5.2.1	Resultados termoidrúlicos do projeto conceitual de AHR.....	106
5.2.2	Resultados físico-neutrônicos do projeto conceitual de AHR.....	111
5.3	Conclusões do capítulo	121
6	CONCLUSÃO.....	123
7	PERSPECTIVAS	125
	REFERÊNCIAS.....	126
	APÊNDICE A – FUNÇÕES NORMALIZADAS	133
	APÊNDICE B – PROPRIEDADES TERMOFÍSICAS DA SC	134

1 INTRODUÇÃO

Globalmente, a medicina nuclear é a principal consumidora de radioisótopos. Áreas como a oncologia, hematologia, cardiologia e neurologia, entre outras especialidades médicas, usam rotineiramente radioisótopos para diagnosticar o funcionamento de órgãos específicos, para o tratamento terapêutico de certas doenças e alívio da dor. Um exemplo disso são os aproximadamente 100 tipos de procedimentos em medicina nuclear para o diagnóstico precoce de doenças das especialidades ósseas, cardiológicas, oncológicas, endocrinológicas, neurológicas, nefro e urológicas, gastrointestinais, infecciosas, vasculares e pediátricas, bem como as patologias que acometem os sistemas respiratório e sanguíneo. Atualmente, mais de 200 radioisótopos são usados regularmente em mais de 10000 hospitais em todo o mundo para esses fins, sendo o Tecnécio-99 metastável¹ (^{99m}Tc), o mais amplamente utilizado, visto que é empregado em 80% de todos os procedimentos de diagnóstico realizados neste ramo da medicina, o que implica anualmente 30-40 milhões de procedimentos em todo o mundo (IAEA, 2010a; NEA, 2018).

Embora o ^{99m}Tc possa ser produzido diretamente em um ciclotron ou acelerador de partículas, atualmente, ele é quase exclusivamente produzido a partir do decaimento beta do radioisótopo Molibdênio-99 (⁹⁹Mo). As duas tecnologias disponíveis no mercado para produzir o radioisótopo ⁹⁹Mo são a irradiação de alvos de Urânio em reatores de pesquisa e aceleradores de partículas. Destes, a tecnologia mais desenvolvida, que atualmente cobre 95% da produção desse radioisótopo, é a irradiação de alvos de Urânio em reatores de pesquisa heterogêneos multiuso. Isto é baseado no processo de fissão nuclear do Urânio-235 (²³⁵U), onde aparece como o produto da fissão o ⁹⁹Mo, com uma probabilidade de ocorrência de 6,10% (IAEA, 2013, 2015a).

Atualmente, a maior parte da produção de ⁹⁹Mo para atender a demanda global estimada em 9400 seis dias Curie² por semana depende de dez reatores de pesquisa e oito instituições de processamento (NEA, 2018). Oito desses reatores, cuja capacidade de produção disponível por semana de ⁹⁹Mo é de aproximadamente 75% do total, têm mais de 50 anos de operação. Além disso, oito deles, com 80% da capacidade de produção disponível por semana de ⁹⁹Mo, já estão muito perto da data estimada de parada da produção (a menos de 10

¹ Um núcleo metaestável contém um ou mais nucleons em estado excitado.

² A unidade de medida na qual expressa-se a produção de ⁹⁹Mo, é "seis dias Curie"; esta unidade vem de uma antiga unidade de medida da radioatividade o "Curie (Ci)". Esta unidade é usada para explicar o decaimento do ⁹⁹Mo e as perdas durante os embarques, ela representa a quantidade média de ⁹⁹Mo que estaria disponível para uso em serviços de medicina nuclear 6 dias após o processamento.

anos para a data estimada de parada da produção) (IAEA, 2019; NEA, 2018). Apesar dos esforços realizados pelos operadores para remodelação e manutenção deste grupo de reatores, eles estão gradualmente chegando ao fim de sua vida útil. Por conseguinte, ocorrerão problemas de disponibilidade devido à necessidade de paradas prolongadas para trabalho de manutenção planejada e não planejada, causando prejuízos no mercado do ^{99}Mo e de outros radioisótopos (NEA, 2010, 2012, 2015, 2018; PÉREZ, 2015). Esses problemas de disponibilidade provocaram escassez global na oferta de isótopos médicos durante 2009-2010 devido às paradas imprevistas e planejadas dos principais reatores produtores de ^{99}Mo e subsequentes escassezes que continuaram a ocorrer em 2013, 2014, 2015, no final de 2017 e início de 2018 (NEA, 2017, 2018).

Isso implica que a cobertura da demanda e seu crescimento anual tornou-se um desafio para toda a cadeia de fornecimento de ^{99}Mo . Como resultado, as organizações internacionais e agências governamentais intensificaram os esforços para encontrar soluções. Algumas alternativas para a produção deste radioisótopo são avaliadas utilizando combustível de Urânio de baixo enriquecimento (LEU, sigla em inglês), constituindo a tecnologia dos Reatores Homogêneos Aquosos (AHR, sigla em inglês) uma alternativa atraente em comparação com o método tradicional de irradiação de alvos. A tecnologia dos AHR foi desenvolvida desde os inícios dos programas nucleares dos anos 40 e 50 do século passado, a fim de produzir energia. Foram construídos mais de 30 reatores desse tipo (atualmente fora de serviço), acumulando uma experiência operacional combinada de mais de 149 anos. No início de 2019, apenas dois reatores de solução ainda estavam em operação, ambos se encontram na Federação Russa (IAEA, 2008a, 2019).

A primeira tentativa bem-sucedida de utilizar um AHR para a produção de isótopos médicos foi protagonizada pelo reator russo ARGUS de 20 kWt de potência, no qual o combustível utilizado foi uma solução aquosa de sulfato de uranila de alto enriquecimento (IAEA, 2008a). Como parte dos esforços que estão sendo feitos em todo o mundo para reduzir o enriquecimento do combustível nuclear abaixo de 20%, foi realizado durante 2010-2012 um estudo da viabilidade para a conversão do reator ARGUS para usar combustível LEU (MYASNIKOV et al., 2012). Os resultados positivos alcançados nos cálculos físicos-neutrônicos e da termodrúlica levaram à decisão de converter o reator ARGUS. A conversão estimada em 2 milhões de dólares, foi feita no âmbito de uma colaboração entre o Instituto Kurchatov e Argonne National Laboratory. Os trabalhos para a conversão foram feitos no período de 2012-2014 e a primeira criticalidade foi atingida em julho 2014. Desde então, os

esforços foram dirigidos no sentido de obter uma nova licença de operação e a realização de estudos experimentais das novas funcionalidades do reator (BOLDYREV et al., 2014).

Embora a utilização de AHR na produção de isótopos médicos represente uma alternativa atraente em comparação com o método tradicional de irradiação de alvos sólidos, o uso do combustível LEU, impõe um número de desafios que devem ser levados em consideração quando o reator é projetado (PIVOVAROV, 2010). Quando o enriquecimento de Urânio é baixo, maior é a contaminação de impurezas nos isótopos médicos. O aumento da concentração de Urânio na solução para atingir um determinado conteúdo de ^{235}U , leva ao aumento da viscosidade da solução combustível, que envolve a diminuição da estabilidade da solução e o aumento da dificuldade na extração de radioisótopos. O necessário aumento de volume da solução e, portanto, da potência térmica do reator, envolve dificuldades na regeneração de $\text{H}_2 + \text{O}_2$, e exige uma maior capacidade do sistema de remoção de calor. O aumento da produção de ^{239}Pu provoca dificuldades na purificação do ^{99}Mo . Tendo em consideração todos esses elementos, o enriquecimento e a concentração da solução devem ser selecionados apropriadamente. Além disso, deve-se incluir uma margem de projeto para evitar qualquer flutuação no estado do núcleo do reator (PIVOVAROV, 2010; WU; CAO, 2016).

Nos últimos anos, a Federação Russa vem empreendendo distintas ações na América Latina no campo da medicina nuclear, relacionadas tanto à comercialização de ^{99}Mo como a transferência da tecnologia de novos reatores de pesquisa para a produção de ^{99}Mo baseados no reator ARGUS. Em 2015, foi assinado um contrato entre a Open Joint Stock Company "ISOTOPE" (subsidiária da corporação estatal de energia atômica ROSATOM) e a Comissão Nacional de Energia Nuclear do Brasil (CNEN) para o fornecimento de ^{99}Mo pela Federação Russa. A negociação foi fechada depois da CNEN ter feito vários testes e ter ficado inteiramente satisfeita com o produto. Por semana, a Federação Russa vai fornecer um volume de ^{99}Mo entre 120 e 450 Curie e contratos similares foram assinados para o fornecimento de outros isótopos (PORTAL DA TRANSPARÊNCIA, 2014).

Porém, ainda persiste o risco de comprometimento do fornecimento mundial, o que motivou o governo brasileiro a promover ações estratégicas de médio e longo prazo, no sentido de eliminar a dependência externa e garantir a segurança no atendimento à necessidade nacional. Essa iniciativa poderia materializar-se com a construção e entrada em operação do Reator Multipropósito Brasileiro (RMB), prevista para 2025, dependendo da regularidade dos investimentos pelo Governo Federal. A entrada em operação deste reator viabilizará não somente o atendimento da demanda crescente por radioisótopos para aplicação

médica, mas também será uma instalação de suporte ao desenvolvimento científico e tecnológico (CNEN, 2016, 2018). Tendo em consideração a situação regional (IAEA, 2015b) e a existência de uma história de cooperação com ROSATOM, a transferência da tecnologia dos AHR seria atraente para o Brasil, já que este reator iria reforçar as capacidades de produção de isótopos médicos para o mercado interno e para exportação. Esta hipótese deve ser confirmada através da realização de um estudo de viabilidade.

Esta pesquisa está relacionada com a proposta e análise de um projeto conceitual de AHR, baseado no reator ARGUS, que usa combustível LEU para a produção de isótopos médicos que responde à demanda regional. Tendo como informação inicial, a fornecida publicamente por ROSATOM e o Instituto Kurchatov sobre a conversão do reator ARGUS, a experiência internacional, especialmente a experiência do reator ARGUS, para estabelecer a relação entre o enriquecimento do combustível LEU e a concentração de Urânio na solução, a influência da expansão térmica e a produção de bolhas de gás devido a decomposição radiolítica de água, o projeto do sistema de remoção de calor do núcleo do reator e os limites de temperatura para a solução combustível (BOLDYREV et al., 2014; IAEA, 2008a; MYASNIKOV, 1990; MYASNIKOV et al., 2012). Para alcançar este resultado serão otimizadas as características do projeto conceitual do núcleo do reator para garantir as condições de operação seguras e produção prevista, através do desenvolvimento e implementação de uma metodologia computacional baseada em avançados modelos e códigos de computador acoplados baseados na teoria de Monte Carlo e Dinâmica de Fluidos Computacional (CFD, sigla em inglês) para o estudo das características físico-neutrônicas e termoidráulicas.

A necessidade da pesquisa baseia-se na existência de aspectos ainda não suficientemente bem estudados ou pesquisados devido aos desafios colocados pela utilização do combustível LEU neste tipo de reator, que é reforçado por causa da limitada informação com acesso público e insuficiente conhecimento disponível em publicações científicas sobre a conversão do reator ARGUS.

Com base nestes argumentos, é identificado um **problema científico** relacionado ao conhecimento insuficiente da capacidade de produção de isótopos médicos de um projeto conceitual de AHR utilizando combustível LEU para responder à demanda regional com segurança.

A **hipótese da pesquisa** propõe: O desenvolvimento e implementação de uma metodologia computacional baseada em avançados modelos e códigos computacionais acoplados baseados na teoria de Monte Carlo e Dinâmica de Fluidos Computacional, para

estudar as características físico-neutrônicas e termoidráulicas do núcleo de um projeto conceitual de AHR, permitindo a análise e projeto do núcleo do AHR proposto com um nível de detalhe e precisão suficiente.

Objetivo geral

Projetar um Reator Homogêneo Aquoso para a produção de isótopos médicos que responda à demanda regional através do desenvolvimento e implementação de uma metodologia computacional baseada em avançados modelos e códigos computacionais acoplados baseados na teoria de Monte Carlo e Dinâmica de Fluidos Computacional.

Objetivos específicos

1. Definir a plataforma computacional composta por hardware e códigos com base na teoria de Monte Carlo e CFD.
2. Analisar os aspectos físicos, químicos, de engenharia, operação, licenciamento e soluções inovadoras que têm permitido o uso de AHR para a produção de isótopos médicos.
3. Desenvolver, implementar e avaliar uma metodologia baseada em avançados modelos e códigos computacionais acoplados de neutrônica de Monte Carlo e termoidráulica baseada em Dinâmica de Fluidos Computacional para estudar as características físico-neutrônicas e termoidráulica do núcleo de um projeto conceitual de AHR para a produção de isótopos médicos que responda à demanda regional.
4. Desenvolver um projeto conceitual de AHR para garantir a produção de isótopos médicos que responda à demanda regional com segurança, mostrando que é garantida a capacidade de refrigeração suficiente para evitar o superaquecimento da solução combustível durante os regimes de operação do reator.
5. Avaliar a capacidade de produção de isótopos médicos para responder à demanda regional com segurança, de um projeto conceitual de AHR utilizando combustível LEU.

2 REVISÃO DE LITERATURA

Neste capítulo resumem-se aspectos dos isótopos médicos, principalmente o ^{99m}Tc e ^{99}Mo , incluindo sua utilização na medicina, seus métodos e regimes de produção, a evolução da demanda e oferta global, em específico a situação no Brasil. Introduce-se e avalia o conceito de Reator Homogêneo Aquoso (AHR), discute-se a experiência global existente neste tipo de reator nuclear e as vantagens apresentadas para a produção de isótopos médicos, principalmente ^{99}Mo . Apresenta-se o reator russo ARGUS, que opera desde 1981 no Instituto Kurchatov, e que foi o primeiro AHR utilizado com sucesso para a produção de ^{99}Mo . Descrevem-se alguns dos novos projetos conceituais de AHR para a produção de ^{99}Mo , desenvolvidos por diferentes países, como Estados Unidos, China e Federação Russa. Destaca-se o conceito de centro de produção de isótopos médicos que utiliza dois AHR baseados no reator ARGUS.

2.1 ISÓTOPOS MÉDICOS

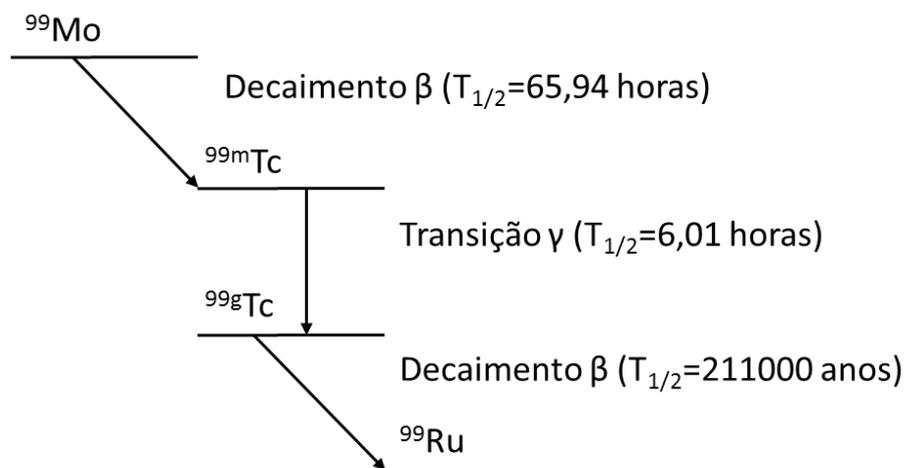
Os radioisótopos são a forma instável de um elemento que emite radiação para se transformar em uma forma mais estável. A radiação emitida é facilmente rastreável e pode causar mudanças na substância a qual ela decai. Esses atributos especiais tornam os radioisótopos uma ferramenta eficaz usada em ciências radiofarmacêuticas, aplicações industriais, rastreamento ambiental, estudos biológicos e outros. A maioria dos radioisótopos são produzidos artificialmente em reatores de pesquisa e aceleradores, expondo um material alvo a partículas, como nêutrons ou prótons, seguidos de diferentes processos químicos para obtê-los na forma química requerida. O termo isótopo ou radioisótopo médico refere-se a um átomo que pode ser utilizado para diagnósticos ou tratamentos médicos (IAEA, 2010a). Atualmente, mais de 200 radioisótopos são usados regularmente em mais de 10000 hospitais em todo o mundo em procedimentos de diagnóstico e tratamento de doenças das especialidades ósseas, cardiológicas, oncológicas, endocrinológicas, neurológicas, nefro e urológicas, gastrointestinais, infecciosas, vasculares e pediátricas, bem como as patologias que acometem os sistemas respiratórios e sanguíneo (IAEA, 2010a). Dos mais de 200 radioisótopos usados regularmente na medicina nuclear, é o Tecnécio-99 metastável (^{99m}Tc) o mais amplamente utilizado, sendo utilizado em 80% de todos os procedimentos de diagnóstico realizados neste ramo da medicina, o que implica anualmente 30-40 milhões de procedimentos em todo o mundo (NEA, 2018). O ^{99m}Tc decai com uma meia vida de 6,01

horas emitindo radiações gama facilmente detectável com uma energia de 143 keV (AUDI et al., 1997). Este tempo de vida relativamente curto implica que a produção de um grande estoque é inútil, pois ao final de cada dia restaria apenas 6,25% do estoque. Como consequência, a produção e distribuição contínua de ^{99m}Tc é um pré-requisito para tratar os pacientes sempre que seja necessário (RIJNSDORP, 2014). Os radiofármacos de ^{99m}Tc são aplicados na imagiologia morfológica e dinâmica de muitos órgãos do corpo, para diagnosticar doenças renais, hepáticas, hepatobiliares, ósseas, cardíacas e oncológicas, bem como em outras patologias bem estabelecidas, de uma forma não invasiva (IAEA, 2008a, 2008b, 2009).

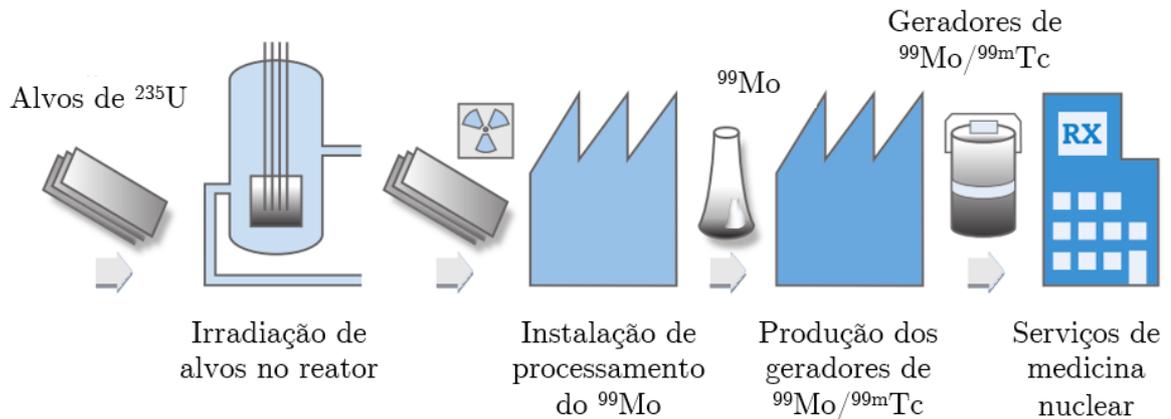
2.2 MÉTODOS DE OBTENÇÃO DO ^{99m}Tc

Embora o ^{99m}Tc possa ser produzido diretamente em um ciclotron ou acelerador de partículas, atualmente ele é, quase exclusivamente, produzido a partir do decaimento beta do radioisótopo ^{99}Mo (Figura 1), que tem uma meia vida de 65,94 horas (AUDI et al., 1997). A meia vida mais longa do ^{99}Mo em comparação com o ^{99m}Tc , permite que o ^{99}Mo seja produzido em instalações de grandes capacidades (Reator nuclear ou acelerador e depois instalação de processamento do ^{99}Mo), transportado para os centros onde os geradores de $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ são produzidos e distribuído aos serviços de medicina nuclear (Figura 2) (IAEA, 2008a; WESTMACOTT, 2010).

Figura 1 – Decaimento beta do ^{99}Mo



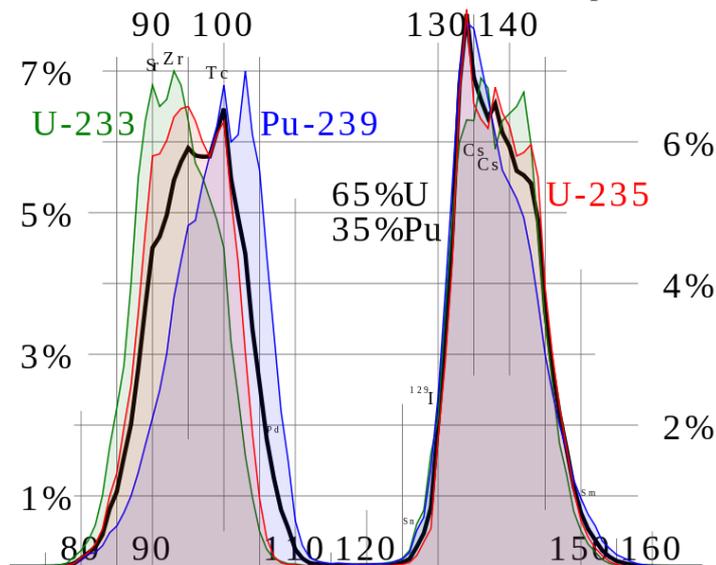
Fonte: IAEA (2008a).

Figura 2 – Cadeia de suprimentos do ^{99}Mo 

Fonte: Westmacott (2010).

Atualmente, as duas tecnologias disponíveis no mercado para produzir o radioisótopo ^{99}Mo são a irradiação de alvos de Urânio em reatores de pesquisa e os aceleradores de partículas. Destes, a tecnologia mais desenvolvida, que atualmente cobre 95% da produção desse radioisótopo, é a irradiação de alvos de Urânio em reatores de pesquisa heterogêneos multiuso, que é baseado no processo de fissão nuclear do ^{235}U , onde aparece como o produto da fissão o ^{99}Mo , com uma probabilidade de ocorrência de 6,10%, a partir da distribuição típica das massas dos produtos de fissão do ^{235}U (Figura 3). A secção de choque para esta reação é de aproximadamente 584 barns para nêutrons térmicos (IAEA, 2013, 2015a).

Figura 3 – Distribuição típica das massas dos produtos de fissão do ^{233}U (verde), ^{235}U (vermelho), ^{239}Pu (azul) e 65% Urânio + 35% Plutônio (preto)



Fonte: JWB (2008).

2.3 IRRADIAÇÃO DE ALVOS DE URÂNIO

O método de produção de radioisótopos com base na irradiação de alvos, requer um material alvo sólido absorvente de nêutrons que vai ser exposto a um fluxo de nêutrons; esse fluxo de nêutrons pode ser produzido através de um acelerador de partículas ou de um reator nuclear. A escolha do material utilizado para o alvo, é condicionada pelo isótopo ou isótopos que se pretendem produzir. Para a produção de isótopos médicos de alto número atômico (Z), o processo mais difundido foi durante muitos anos a utilização de alvos de Urânio altamente enriquecido (HEU, sigla em inglês para Highly Enriched Uranium), nos qual a fração de ^{235}U é superior a 90% (IAEA, 2013; NEA, 2010).

Nas últimas décadas, a partir de um esforço global para eliminar o uso de HEU em aplicações civis para contribuir com a não-proliferação de armas nucleares, mostrou-se a necessidade de converter a produção de ^{99}Mo de HEU a Urânio de baixo enriquecimento (LEU, sigla em inglês para Low Enriched Uranium). Os esforços para eliminar o uso de HEU na produção de ^{99}Mo recebeu um impulso em 2009, quando a Academia de Ciências dos Estados Unidos publicou um relatório técnico onde se concluiu que, não havia “razão técnica para que quantidades adequadas de ^{99}Mo não pudessem ser produzidas a partir de alvos de LEU no futuro” e que o uso de alvos de LEU era viável com um aumento aceitável do custo (NATIONAL RESEARCH COUNCIL, 2009). De acordo com dados publicados em 2016, anualmente em todo o mundo se gastavam aproximadamente 50 kg de Urânio altamente enriquecido na produção de ^{99}Mo em reatores de pesquisa, dos quais 97% é descartado após o passo de processamento, tornando-se um desperdício de alta atividade (LEE et al., 2016). Uma possível solução seria a recuperação e reciclagem do HEU dos resíduos para a criação um novo alvo sólido, porém, esta opção não é economicamente atraente, visto que este processo é mais caro que o processo de fabricação de alvos sólidos a partir de HEU fresco (NEA, 2010). No entanto, como resultado dos esforços mundiais para reduzir o enriquecimento de combustível de reatores de pesquisa e alvos de urânio (IAEA, 2015a), atualmente bem mais da metade de toda a produção mundial de $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ já foi convertida com sucesso a LEU (NEA, 2018). Após a irradiação, os alvos de Urânio (LEU ou HEU) são transportados para uma instalação de processamento, onde são dissolvidos em uma solução ácida ou alcalina e o ^{99}Mo é recuperado através de uma série de passos de extração e purificação (IAEA, 2013). A irradiação de alvos de urânio em aceleradores de partículas envolve a irradiação do alvo com um feixe de nêutrons obtidos através de reações de espalação. Nas reações de espalação os prótons do acelerador são acelerados para um alvo de

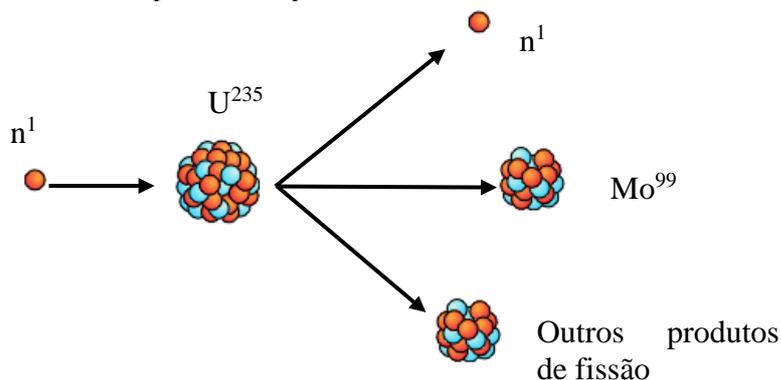
um metal pesado (ex. Chumbo-Bismuto Pb-Bi), o que absorve os prótons e, posteriormente, emite nêutrons. A utilização desse processo para a produção de ^{99}Mo ou de outros isótopos com números atômicos elevados, não é atrativa para as demandas da indústria médica em comparação com o mesmo processo realizado em um reator de pesquisa heterogêneo multiuso (NEA, 2010). Esses critérios explicam por que atualmente 95% da produção de ^{99}Mo e maior parte da produção de isótopos com alto Z são realizados em reatores de pesquisa heterogêneo multiuso.

2.4 OUTROS ESQUEMAS DE PRODUÇÃO DE ^{99}MO

O ^{99}Mo também pode ser produzido pelos seguintes métodos (IAEA, 2013):

A fissão do ^{235}U através dos nêutrons produzidos em um acelerador de prótons ou deuterons através de reações do tipo (D, n) e (p, n) em alvos pesados (Figura 4).

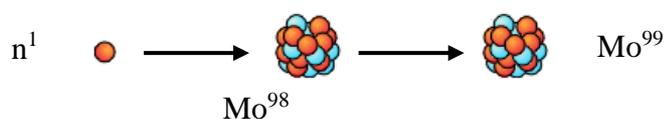
Figura 4 – ^{99}Mo produzidos pela fissão em aceleradores



Fonte: Staples (2011).

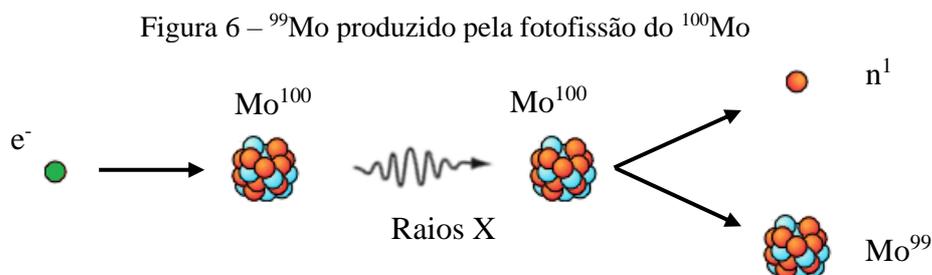
Pela ativação neutrônica do ^{98}Mo , através de uma reação ($^{98}\text{Mo} (n, \gamma) ^{99}\text{Mo}$). Esse método é prático apenas para as produções em reatores, devido à pequena seção de choque (0,13 barns para nêutrons térmicos) para este tipo de reação. Além disso, o ^{99}Mo produzido por esse método possui uma atividade específica (Curie de ^{99}Mo por grama de ^{98}Mo no alvo) menor do que a produzida pela fissão do Urânio (Figura 5).

Figura 5 – ^{99}Mo produzido pela ativação neutrônica do ^{98}Mo



Fonte: Staples (2011).

Pela fotofissão do ^{100}Mo , através de uma reação ($^{100}\text{Mo} (\gamma, n) ^{99}\text{Mo}$). Os fótons utilizados nesse esquema de produção são obtidos irradiando alvos pesados com elétrons produzidos em aceleradores. Tal como no caso anterior, o ^{99}Mo produzido por este método possui uma atividade específica (Curie de ^{99}Mo por grama de ^{100}Mo no alvo) menor do que a produzida pela fissão do Urânio (Figura 6).



Fonte: Staples (2011).

Além disso, o ^{99m}Tc também pode ser produzido diretamente através de reações ($p, 2n$) em alvos de ^{98}Mo , no âmbito desse regime de produção é removida a necessidade de passos intermediários que envolvem a recuperação e purificação de ^{99}Mo . Porém, esse método só é adequado para cadeias de abastecimento curtas; por exemplo, a nível de cidade, devido à curta meia vida do ^{99m}Tc (IAEA, 2013).

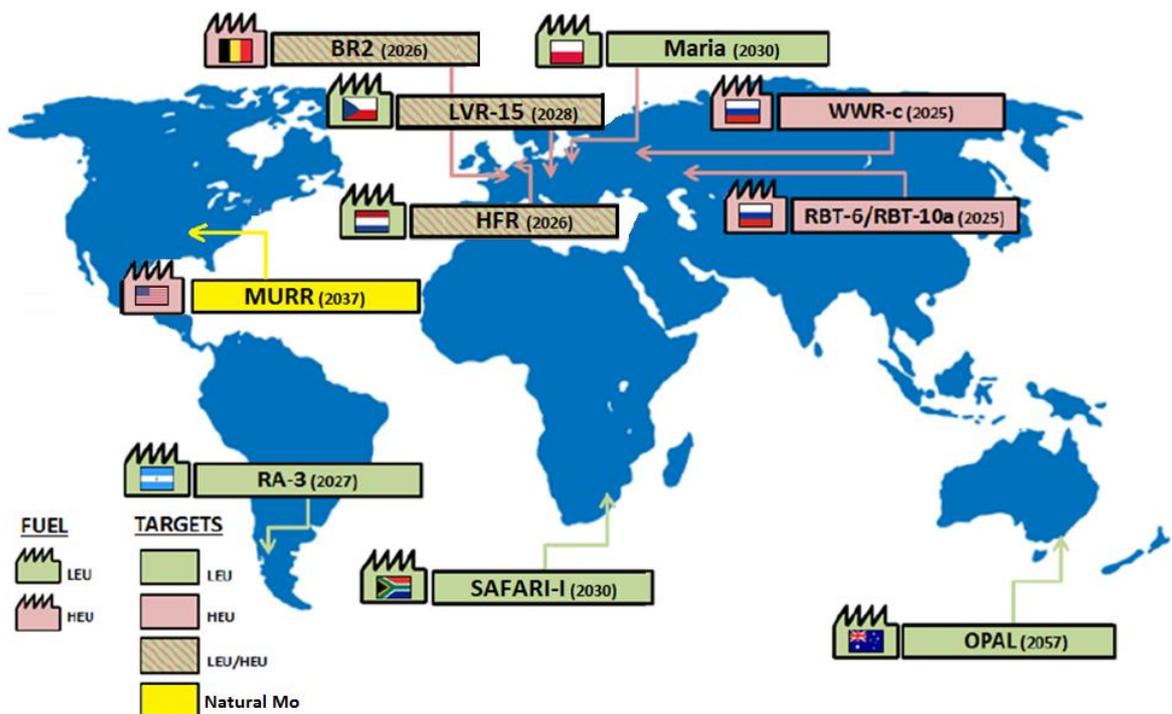
2.5 DEMANDA E OFERTA DE ISÓTOPOS MÉDICOS

Na última década, como resultado das alterações no mercado desde 2009-2010, a demanda de ^{99}Mo experimentou uma redução com base na sua demanda histórica estimada de 12000 seis dias Curie por semana, primeiro para 10000 seis dias Curie por semana, em 2012 (NEA, 2012), e depois para 9000 seis dias Curie por semana, em 2015 (NEA, 2015). Estudos realizados sugerem que essa diminuição foi o resultado de mudanças no mercado que começaram em 2007, quando reatores produtores de ^{99}Mo , tais como o NRU (National Research Universal) no Canadá e o HFR (High Flux Reactor) em Petten, Países Baixos, como consequência do seu envelhecimento, tiveram que fazer paradas e a produção global de ^{99}Mo foi gravemente afetada. As mudanças feitas incluem melhoria da eficiência na utilização dos geradores de $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ e no planejamento dos processos e a utilização de outros testes e isótopos substitutos (NEA, 2018). Apesar dessa diminuição gradual da demanda de ^{99}Mo , os estudos consultados (NEA, 2010, 2012, 2015, 2018) estimam um crescimento anual na demanda de $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$. A análise dos últimos dados disponíveis para determinar o nível da

demanda de ^{99}Mo apresentou como resultado, que no início de 2018, ela era de 9400 seis dias Curie por semana (NEA, 2018). Para o período de 2018-2023 espera-se um crescimento anual do 0,5% nos mercados mais desenvolvidos (América do Norte, Europa, Japão e República da Coreia) e de 5% nos mercados emergentes. Constituindo os mercados mais desenvolvidos 84% da demanda global de $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$, e os mercados emergentes os 16% restante (NEA, 2018).

Por muitos anos, a produção de ^{99}Mo para atender a demanda global, dependeu de um pequeno grupo de reatores de pesquisa e instituições de processamento. No início da década do 2010, cinco dos reatores de pesquisa usados na produção de ^{99}Mo , responsáveis aproximadamente por 80% da produção mundial, tinham mais de 50 anos de utilização. Desses cinco reatores, dois que são responsáveis por 25% da capacidade de produção, encontravam-se próximos da data planejada para finalizar seu funcionamento (PÉREZ, 2015). Atualmente, a maior parte da produção de ^{99}Mo para atender a demanda global estimada em 9400 seis dias Curie por semana depende de dez reatores de pesquisa (Figura 7) e oito instituições de processamento (NEA, 2018).

Figura 7 – Principais reatores de pesquisa usados na produção de ^{99}Mo



Fonte: IAEA (2019); NEA (2018).

Conforme, é demonstrado na Tabela 1, oito desses reatores (BR-2, HFR, LVR-15, RA-3, SAFARI-1, RIAR, KARPOV e MURR), cuja capacidade de produção disponível por semana de ^{99}Mo é de aproximadamente 75% do total, têm mais de 50 anos de operação. Além disso, oito deles, com 80% da capacidade de produção disponível por semana de ^{99}Mo , já estão muito perto da data estimada de parada da produção (10 ou menos anos para a data estimada de parada da produção), eles são o BR-2, HFR, LVR-15, MARIA, RA-3, SAFARI-1, RIAR e KARPOV (IAEA, 2019; NEA, 2018).

Tabela 1 – Principais reatores utilizados na produção de ^{99}Mo

Reator/ Combustível	Alvo	Semanas de operação por ano	Capacidade de produção disponível por semana (seis dias Curie)	Tempo de operação desde que atingiram a primeira criticalidade (anos)	Data estimada de parada da produção (ano)
BR-2 (HEU)	HEU/LEU	21	6500	59	2026
HFR (LEU)	HEU/LEU	39	6200	59	2026
LVR-15 (LEU)	HEU/LEU	30	3000	63	2028
MARIA (LEU)	LEU	36	2200	46	2030
OPAL (LEU)	LEU	43	3500	14	2057
RA-3 (LEU)	LEU	46	400	53	2027
SAFARI-1 (LEU)	LEU	44	3000	55	2030
RIAR (HEU)	HEU	50	540	54	2025
KARPOV (HEU)	HEU	48	350	56	2025
MURR (HEU)	Mo natural	52	750	54	2037

Fonte: IAEA (2019); NEA (2018).

Por ordem da capacidade, os seis principais reatores (com 90% da capacidade de produção) são: HFR (Países Baixos), OPAL (Austrália), BR-2 (Bélgica), SAFARI-1 (África do Sul), LVR-15 (República Checa) e MARIA (Polônia), todos estes reatores podem produzir 2200 ou mais seis dias Curie por semana de ^{99}Mo (Tabela 1). Com exceção do reator BR-2, os outros já têm feito a conversão de combustível de HEU para LEU. Adicionalmente, quase todos eles já irradiam alvos de LEU ou uma combinação de alvos de LEU e HEU.

Apesar do número de reatores e instalações de processamento terem aumentado nos últimos anos e dos esforços realizados pelos operadores para a sua remodelação e manutenção, eles permanecem de forma gradual chegando ao fim de sua vida útil. Por conseguinte, ocorreram e continuam a ocorrer problemas de disponibilidade devido à necessidade de paradas prolongadas para trabalho de manutenção planejada e não planejada, causando prejuízos no mercado do ^{99}Mo e de outros radioisótopos (NEA, 2010, 2012, 2015, 2018; PÉREZ, 2015). Esses problemas de disponibilidade provocaram escassez global na oferta de isótopos médicos durante 2009-2010 devido às paradas imprevistas e planejadas dos principais reatores produtores de ^{99}Mo (NRU e HFR) e subsequentes escassezes que continuaram a ocorrer em 2013, 2014, 2015, no final de 2017 e início de 2018 (NEA, 2017, 2018).

O setor de medicina nuclear no Brasil, cujos procedimentos para diagnóstico ou terapia utilizam radiofármacos, conta com 432 serviços de medicina nuclear. A Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN) fornece radiofármacos para a realização de 2 milhões de procedimentos por ano e no ano de 2017 as atividades relacionadas à área médica no Brasil consumiam 4% da demanda mundial de ^{99}Mo , o que representava entre 370-380 seis dias Curie semanais, com uma demanda crescente estimada do 8% ao ano (CNEN, 2018), o que implica que atualmente, em 2020, a demanda no Brasil deve ser de aproximadamente 475 seis dias Curie semanais. No entanto, considerando-se o número de procedimentos médicos realizados, o atendimento brasileiro ainda é inferior ao de muitos países (o número per capita de exames de medicina nuclear executados no Brasil é ainda 2,5 vezes menor do que na Argentina e 6 vezes menor do que nos EUA) (CNEN, 2018).

O Brasil, desde 1995, adquiria regularmente o ^{99}Mo da empresa canadense MDS NORDION, porém a raiz de interrupções ocorridas em 2009 no reator canadense NRU, interrompeu sua produção, gerando uma crise mundial no fornecimento, causando uma redução de 50% no atendimento à população brasileira, quando comparado com os níveis de 2008. Lentamente nos anos seguintes e através de acordos com países como a Bélgica, Argentina, África do Sul, Israel e a Federação Russa, foi possível uma recuperação dos níveis anteriores a 2009 e um aumento até o estado atual (CNEN, 2016, 2018).

Entretanto, ainda persiste o risco de comprometimento do fornecimento mundial, além do impacto causado nos custos de produção, com o consequente encarecimento do serviço final disponibilizado para a sociedade, o que motivou o governo brasileiro a promover ações estratégicas de médio e longo prazos, no sentido de eliminar a dependência externa e garantir a segurança no atendimento à necessidade nacional. Para que esse objetivo seja alcançado de

maneira plena, efetiva e com autonomia tecnológica há necessidade de se implantar no país uma instalação nuclear com características e capacidade para produzir radioisótopos para a saúde, em especial o ^{99}Mo . Essa iniciativa poderia se materializar com a construção e entrada em operação do Reator Multipropósito Brasileiro (RMB), prevista para 2025 dependendo da regularidade dos investimentos pelo Governo Federal. A entrada em operação deste reator viabilizará não somente o atendimento da demanda crescente por radioisótopos para aplicação médica, mas também será uma instalação de suporte ao desenvolvimento científico e tecnológico, para as áreas de geração de energia, propulsão nuclear, assim como para a formação de recursos humanos para o setor nuclear (CNEN, 2016, 2018).

No cenário atual, manter um nível de produção para garantir a cobertura da demanda e seu crescimento anual tornou-se um desafio para toda a cadeia de abastecimento do ^{99}Mo . Como resultado, as organizações internacionais e agências governamentais intensificaram os esforços para encontrar soluções a curto, médio e longo prazos contra as interrupções esperadas no fornecimento. Tal é o caso do Grupo de Alto Nível sobre a Segurança do Fornecimento de Radioisótopos Médicos (High-level Group on the Security of Supply of Medical Radioisotopes, HLG-MR, sigla em inglês), grupo estabelecido pela Agência de Energia Nuclear (Nuclear Energy Agency, NEA, sigla em inglês) em abril de 2009 (NEA, 2010). Esse grupo examinou exaustivamente as causas das perturbações do mercado do ^{99}Mo e têm desenvolvido propostas de políticas, princípios e recomendações para abordar essas causas. Além disso, o NEA revisa regularmente o status do fornecimento de ^{99}Mo , a fim de identificar os períodos de potenciais reduções do fornecimento, para que durante estes períodos possam propor medidas para resolver gradualmente na escala global os efeitos das reduções.

Um certo número de alternativas para a produção desse radioisótopo tem atraído a atenção dos participantes na cadeia de abastecimento, algumas dessas tecnologias são conhecidas, mas não são utilizadas na longa escala ou ainda estão na fase de desenvolvimento dos princípios básicos.

2.6 REATOR HOMOGÊNEO AQUOSO (AHR)

Uma das tecnologias conhecidas para a produção de isótopos médicos, mas que não foi utilizada em grande escala, é a utilização de AHR. O conceito de reator homogêneo de solução aquosa ou reator de solução ou reator de combustível líquido, consiste em um núcleo aquoso, contendo um sal de Urânio enriquecido dissolvido em água e ácido, contido em um

recipiente ou tanque protegido de aço inoxidável. Esse conceito foi estudado em diferentes países, com mais de 30 reatores de solução construídos e operados desde o início dos programas nucleares dos anos 40 e 50 do século passado, acumulando mais de 149 anos de experiência combinada (A maioria atualmente fora de serviço). No início de 2019, apenas dois reatores homogêneos de solução aquosa ainda estavam em operação, ambos localizados na Federação Russa (IAEA, 2008a, 2019).

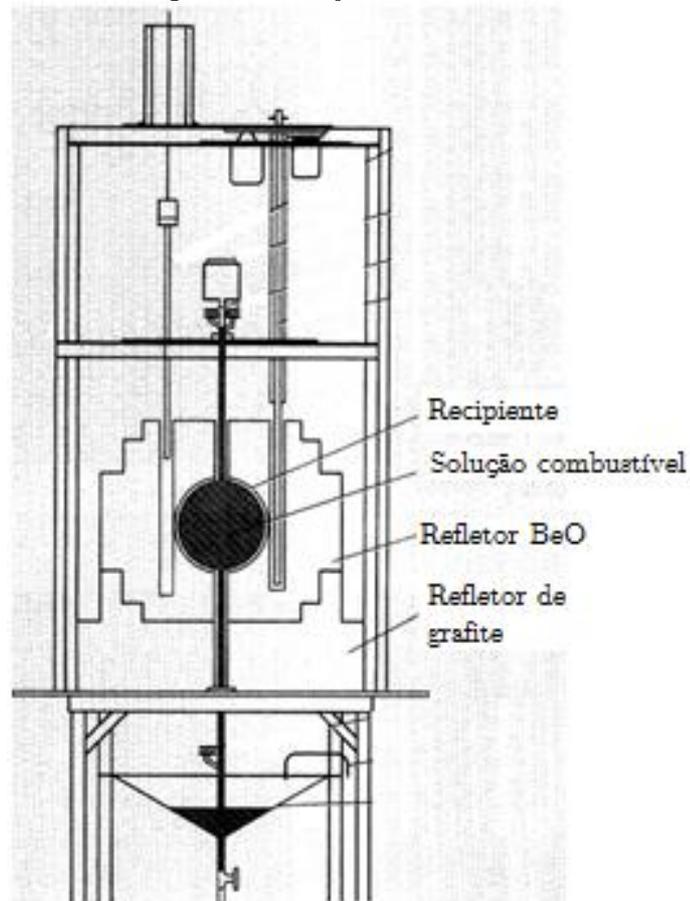
Num reator homogêneo de solução aquosa ou reator de solução é possível prescindir do custoso processamento dos elementos combustíveis sólidos dos reatores heterogêneos e ajudar a simplificar o processo de extração de produtos de fissão do combustível nuclear, o qual, nos reatores heterogêneos deve ser dissolvido antes de poder prosseguir com a separação dos isótopos de interesse. Tal é o caso do ^{239}Pu , cuja obtenção para fins militares foi o fim de muitos dos reatores construídos nos anos 40 e início dos anos 50 do século passado. Essas razões justificam o grande interesse que levantou este projeto de reator nuclear no princípio dos programas nucleares de vários países (IAEA, 2008a). Porém, um grupo de problemas relacionados à corrosão, à adequabilidade dos materiais, à ebulição e à propensão da água a se decompor radioliticamente (devido a fragmentos de fissão) liberando bolhas de gás radiolítico (hidrogênio, oxigênio e outros) desanimaram o uso desta tecnologia para a geração de eletricidade (IAEA, 2008a, 2019; LANE, 1962).

O primeiro reator homogêneo de combustível líquido foi o reator LOPO (LOW POWER) (Figura 8), construído no Laboratório Nacional de Los Alamos, nos Estados Unidos em 1943. Ele foi o terceiro reator nuclear da história. A finalidade deste reator foi a verificação de cálculos de massa crítica e a medição de secções de choque de vários materiais. O reator LOPO trabalhou com uma solução de sulfato de uranila de 565 gramas de ^{235}U dissolvido em 13 litros de água contida em uma esfera de 30 centímetros de diâmetro. A ausência de blindagem e de um sistema de remoção de calor adequado limitou a potência a 50 mW (HUISMAN, 2013; LANE, 1962; RIJNSDORP, 2014).

O reator LOPO foi seguido, após o desmantelamento, pelo reator HYPO (HIGH POWER), que atingiu sua primeira criticalidade em dezembro de 1944. O reator HYPO trabalhou com uma solução de nitrato de uranila de 808 gramas de ^{235}U dissolvido em 13,65 litros de água leve contida em uma esfera de 30 centímetros de diâmetro, com paredes de espessura 2 vezes a do LOPO (1,6 mm), um refletor de grafite e um sistema de remoção de calor que lhe permitiu alcançar vários kW de potência térmica. O reator HYPO foi utilizado na validação de cálculos de massa crítica e na medição de secções de choque das primeiras bombas atômicas (HUISMAN, 2013; LANE, 1962; RIJNSDORP, 2014).

Entre abril de 1949 e março de 1951 o reator HYPO foi atualizado e renomeado SUPO (SUpEr POver) (Figura 9). O reator SUPO operou entre os anos de 1951 e 1974 a uma densidade de potência de aproximadamente 1,7 kWt por litro de solução, utilizando uma solução de nitrato de uranila de alto enriquecimento (BUNKER, 1963; KIMPLAND et al., 2014). O sucessor do reator SUPO no Laboratório Nacional de Los Alamos foi o SHEBA (Solution High-Energy Burst Assembly) (Figura 10). Esse reator utilizava duas soluções combustíveis diferentes, nitrato de uranila enriquecida a 20% em ^{235}U ou fluoreto de uranila enriquecida a 5% em ^{235}U . O núcleo consistia em um cilindro de 49 centímetros de diâmetro, 43-45 centímetros de altura e com uma barra de controle de carboneto de boro no centro (BUNKER, 1963; KIMPLAND et al., 2014).

Figura 8 – Esboço do reator LOPO



Fonte: Rijnsdorp (2014).

Figura 9 – Recipiente e tubos helicoidais do reator SUPO



Fonte: Rijnsdorp (2014).

Figura 10 – SHEBA



Fonte: Reynolds (2007).

Entre 1952 e 1954 foi desenvolvido o “Homogeneous Reactor Experiment - 1 (HRE-1)” (Figura 11), no qual a estabilidade de um reator de combustível em circulação a níveis de potência de várias centenas de kWt (140 kWe) foi estudada. O HRE-1 trabalhou com uma solução de sulfato de uranila enriquecida a 93% em ^{235}U em circulação pelo núcleo do reator a uma taxa de 40 litros por minuto. O núcleo do reator consistiu em um recipiente de 45 cm de diâmetro dentro de um recipiente pressurizado, a água pesada foi utilizada como refletor (LANE, 1962).

Em dezembro de 1957 o “Homogeneous Reactor Test, HRE-2” atingiu sua primeira criticalidade cujo objetivo foi testar a confiabilidade de materiais e equipamentos para a operação contínua por períodos prolongado, os procedimentos de manutenção e os métodos para a remoção contínua dos produtos de fissão e produtos corrosivos insolúveis. O funcionamento do HRE-2 foi interrompido em maio de 1958 após a formação de uma fissura no recipiente do núcleo através da qual o combustível poderia vaziar (LANE, 1962).

Figura 11 – HRE-1

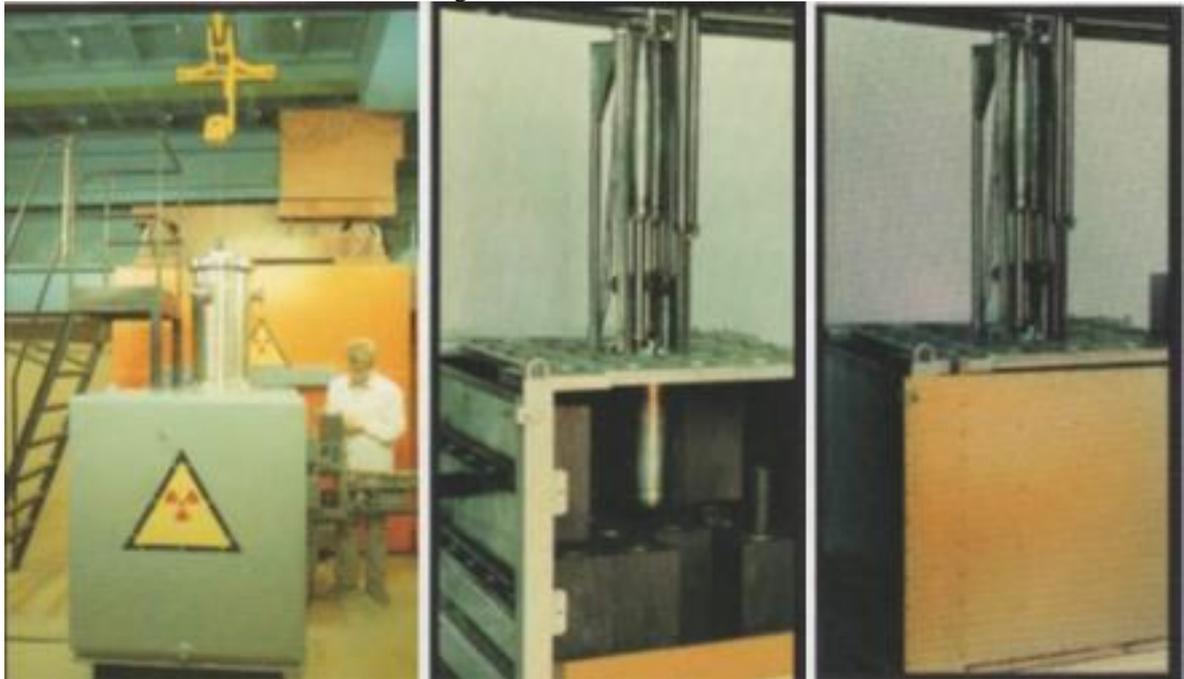


Fonte: Rijnsdorp (2014).

O primeiro reator homogêneo utilizado com sucesso para a produção de ^{99}Mo foi o reator ARGUS (Figura 12). Este reator, com 20 kWt de potência entrou em operação em 1981 no Centro de Pesquisa Nuclear Instituto Kurchatov, em Moscou, Federação Russa e tem estado em funcionamento desde essa data com altos índices de eficiência e segurança (IAEA,

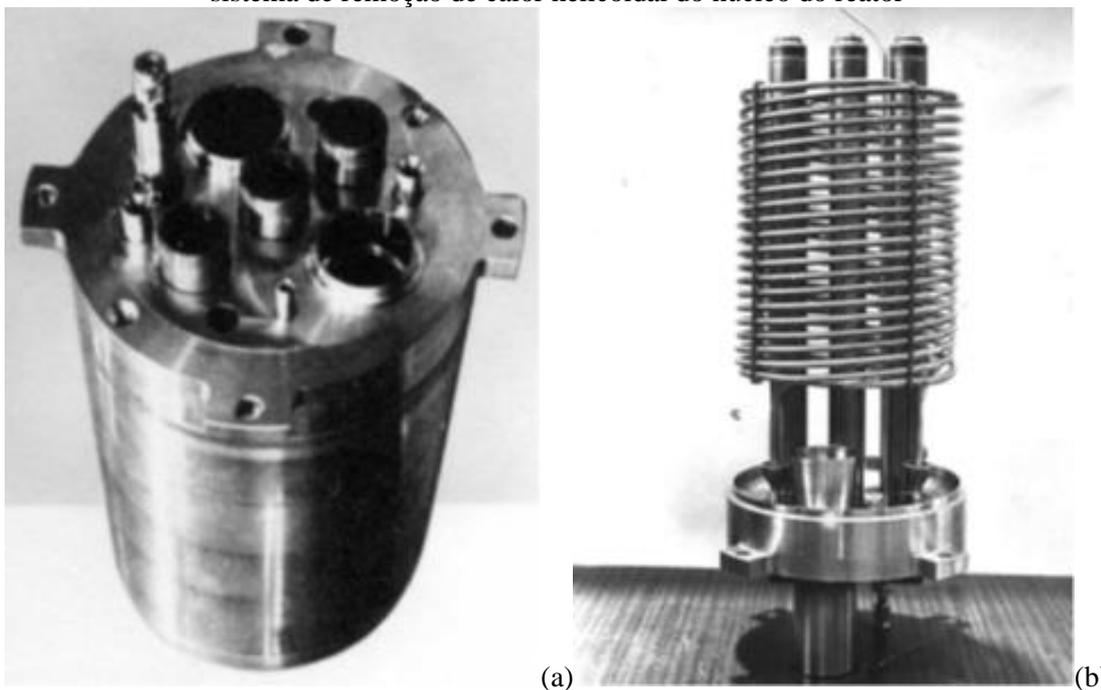
2008a). O núcleo do reator ARGUS consiste em uma solução de sulfato de urânio enriquecida originalmente a 90% em ^{235}U localizada no interior de um recipiente cilíndrico com fundo semiesférico (Figura 13 (a)). Três canais "secos" estão localizados dentro do núcleo do reator, um no centro e dois simétricos na periferia (Figura 13 (b)); nesses dois canais periféricos são inseridas barras de controle e regulação. Todos os elementos do núcleo, que estão em contato com a solução combustível são feitos de aço inoxidável. O recipiente do reator está rodeado por um refletor de grafite radial e inferior (MYASNIKOV, 1990). O sistema de remoção de calor do reator tem dois circuitos, o primeiro é um tubo helicoidal no interior do núcleo (Figura 13 (b)), que está ligado ao trocador de calor e tanque de compensação e através dele a água é bombeada com uma bomba. No segundo circuito é removido o calor do primeiro circuito utilizando água (BOLDYREV et al., 2014; MYASNIKOV et al., 2012; PIVOVAROV, 2010).

Figura 12 – Reator ARGUS



Fonte: Pivovarov (2010).

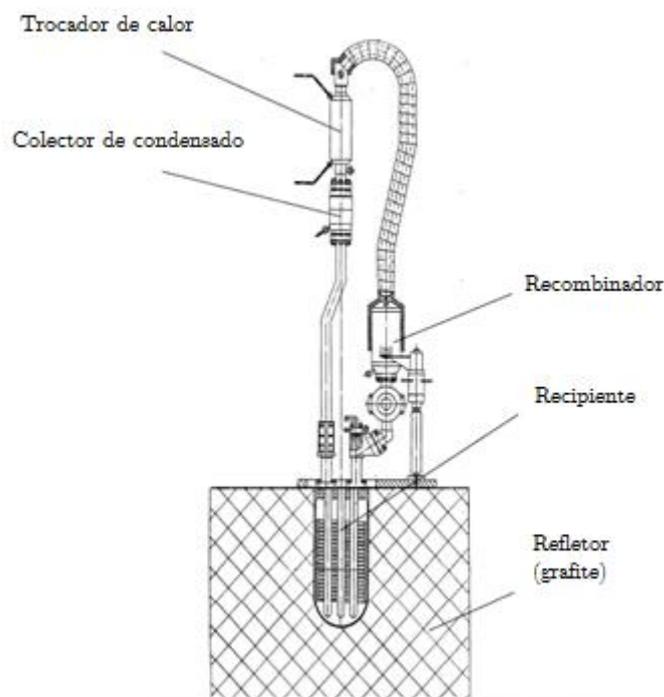
Figura 13 – a) Recipiente cilíndrico com fundo semiesférico do reator ARGUS, b) Canais "secos" e sistema de remoção de calor helicoidal do núcleo do reator



Fonte: Pivovarov (2010).

O reator possui um Sistema de Regeneração Catalítica (CRS, por sua sigla em inglês), para a regeneração dos gases radiolíticos hidrogênio e oxigênio produzidos na solução combustível durante a operação do reator. O CRS baseia-se no princípio da circulação natural da mistura de gás através do circuito, formando um circuito fechado com o recipiente do reator, o trocador de calor, o coletor do condensado (reservatório de água) e sistema de tubulação (Figura 14) (MYASNIKOV et al., 2012). Testes em isótopos produzidos neste reator reportam que o ^{99}Mo produzido é caracterizado pela extrema pureza radioquímica, sendo o seu conteúdo de impurezas inferior aos limites permitidos para utilização na medicina nuclear de 2-4 ordens de grandeza (MYASNIKOV, 1990).

Figura 14 – Esboço do reator ARGUS



Fonte: Myasnikov *et al.* (2012).

Como parte dos esforços que estão sendo feitos em todo o mundo para reduzir o enriquecimento do combustível nuclear abaixo de 20%, foi realizado durante 2010-2012 um estudo de viabilidade para a conversão do reator ARGUS para usar combustível LEU (MYASNIKOV *et al.*, 2012). Os resultados positivos alcançados nos cálculos físicos-neutrônicos e da termodrúlica levou à decisão de converter o reator ARGUS, essa conversão estimada em 2 milhões de dólares, foi feita no âmbito de uma colaboração entre o Instituto Kurchatov e o Argonne National Laboratory. Os trabalhos de conversão para LEU foram feitos no período de 2012-2014 e a primeira criticalidade foi atingida em julho 2014. Desde então, os esforços foram dirigidos no sentido de obter uma nova licença de operação e a realização de estudos experimentais das novas funcionalidades do reator (BOLDYREV *et al.*, 2014).

2.7 PRODUÇÃO DE ^{99}MO UTILIZANDO AHR

No início dos anos 90 houve um interesse renovado nos AHR, não destinados à produção de energia, mas a sua utilização na produção de isótopos médicos de meia vida curta com base na fissão de ^{235}U . Vários países, incluindo China, França, Alemanha, Japão, Federação Russa e Estados Unidos, iniciaram programas de pesquisa para avaliar a

viabilidade do uso dos AHR para produzir, comercialmente, isótopos para utilização na medicina nuclear (IAEA, 2008a). Esse interesse foi fortalecido como resultado de um conjunto de marcos.

(1) A reunião de consultores realizada em 2007 com uma equipe de especialistas no campo dos AHRs e produtores de radioisótopos da qual em (IAEA, 2008a) apresentou-se um resumo das discussões e as apresentações técnicas dadas pelos participantes. Esta reunião facilitou a troca de informações sobre o “estado da arte”, que resultou em uma avaliação objetiva dos desafios tecnológicos e outras implicações relevantes da tecnologia dos AHRs, especialmente no referente a produção de radioisótopos.

(2) O Projeto de Pesquisa Coordenada (CRP, por sua sigla em inglês) da Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA, por sua sigla em inglês) “Feasibility Evaluation of the Use of Low Enriched Uranium Fuelled Homogeneous Aqueous Solution Nuclear Reactors for the Production of Short Lived Fission Product Isotopes”. O objetivo geral deste CRP foi incentivar a cooperação e promover o intercâmbio de informações na área dos AHRs, especificamente sobre o uso de combustível LEU e a produção de radioisótopos (IAEA, 2010b).

(3) A escassez global de oferta de isótopos médicos durante 2009-2010 devido a paradas imprevistas e planejadas dos principais reatores produtores (NRU e HFR) e subsequentes escassezes que continuaram a ocorrer em 2013, 2014, 2015, no final de 2017 e início de 2018 (NEA, 2017, 2018).

(4) O número crescente de artigos científicos, relatórios técnicos, apresentações de conferências e outros nesta temática a cada ano, são evidências do interesse existente por essa tecnologia.

(5) A operação bem-sucedida do reator ARGUS desde 1981 e o sucesso na sua conversão a combustível LEU, com o qual atingiu a primeira criticidade em julho de 2014 (BOLDYREV et al., 2014). Atualmente, o reator ARGUS é o único experimento em grande escala no uso de um reator de solução em operação em estado estacionário com uma densidade de potência máxima de 1 kWt/litro de solução. Estudos realizados em amostras de ^{99}Mo obtidas a partir de uma solução irradiada no reator ARGUS concluíram que as amostras de ^{99}Mo são radioquimicamente puras para os padrões farmacêuticos europeus e dos EUA (IAEA, 2008a). Em 2015, a Corporação Estatal de Energia Atômica da Federação Russa (ROSATOM) decidiu construir uma instalação de produção, baseada na experiência operacional do reator ARGUS, em Sarov (500 km de Moscou) com uma capacidade de produção de 250 seis dias Curie por semana (VAKULENKO, 2017). Além disso, o Argus-

FTI (no Instituto Físico e Técnico de Umarov em Dushanbe, Tadjiquistão) será restaurado, para estar operacional em 2020, com assistência russa sob apoio financeiro da China (IAEA, 2019).

A utilização de AHR na produção de isótopos médicos representa uma alternativa atraente em comparação com o método tradicional de irradiação de alvos sólidos, levando em conta questões relacionadas com as quantidades de combustível e enriquecimentos necessários, características de segurança passiva, simplificação dos requisitos para a manipulação e processamento do combustível a partir da eliminação da utilização de alvos sólidos e o trabalho com níveis de potência muito mais baixos dos requeridos em um reator heterogêneo de irradiação de alvos para produzir a mesma quantidade de isótopos médicos (IAEA, 2008a). Além disso, o custo de um AHR é inferior a um reator convencional, estudos mostram que uma instalação com um AHR de 200 kW pode custar 70 milhões de USD, enquanto um reator convencional para a produção de radioisótopos pode custar mais de 500 milhões de USD (IAEA, 2010b). As principais vantagens que distinguem os AHR para a produção de radioisótopos são (IAEA, 2008a):

1. Flexibilidade com respeito à variação dos parâmetros do reator (potência térmica, temperatura, pressão etc.), o combustível a ser utilizado (UO_2SO_4 , $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$, UO_2F_2) e a geometria do núcleo;

2. Elevado nível de segurança intrínseca associado aos coeficientes de reatividade negativos para a densidade do combustível, que eleva com o aumento da temperatura no núcleo;

3. A utilização eficiente dos nêutrons na produção de isótopos;

4. Não utiliza alvos sólidos, permitindo simplificar os processos e diminuir os custos de produção, enquanto desaparecem os custos associados com a fabricação, a irradiação, desmantelamento e dissolução dos alvos. A gestão dos resíduos é muito mais simples que nos reatores de irradiação de alvos sólidos. Depois da extração do ^{99}Mo , na tecnologia de irradiação de alvos o Urânio é um desperdício, enquanto, na tecnologia dos AHR, o Urânio é devolvido para o núcleo do reator para um novo ciclo de trabalho (podendo prolongar seu tempo de vida útil em até 20 anos);

5. Redução considerável dos custos de construção e operação em comparação com a tecnologia tradicional que usa alvos (é prevista uma redução dos custos de produção dos radioisótopos entre 2-2,5 vezes);

6. Além do ^{99}Mo , os AHR têm a capacidade para produzir outros isótopos como ^{133}Xe , ^{89}Sr , ^{90}Y , ^{131}I , ^{132}I e ^{133}I , extraídos a partir da fase de gás gerada na parte superior do núcleo.

No caso do ^{89}Sr , pode ser recuperado 1000 vezes mais do que pode ser recuperado por meio de irradiação dos alvos sólidos;

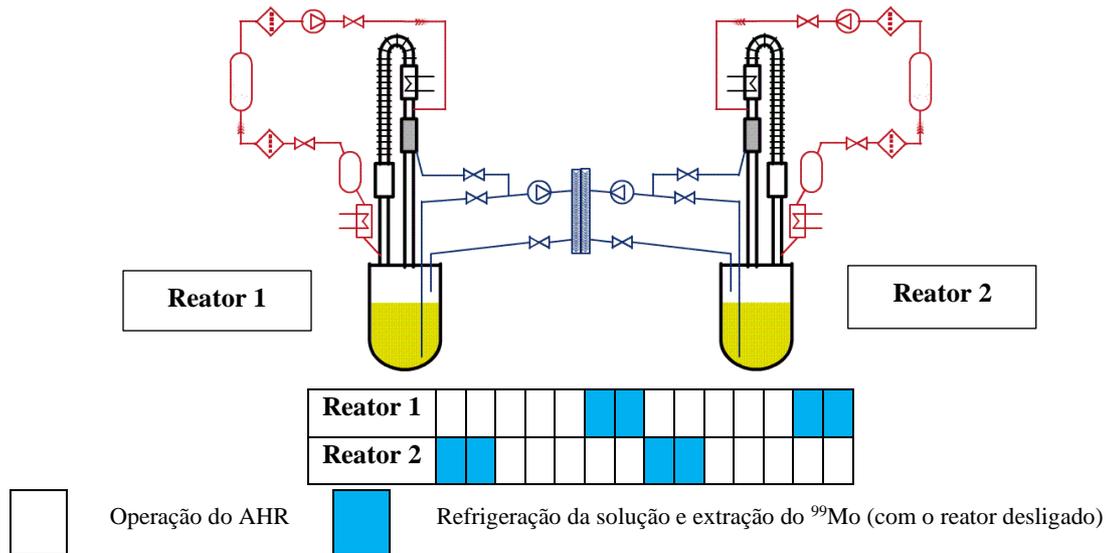
Com base nas investigações iniciadas no começo dos anos 90, foram levados em consideração vários projetos de AHR que têm sido propostos para utilização na produção de isótopos médicos. Os principais estão concentrados em poucos países, entre os quais destacam-se os modelos americanos, chineses e russos (IAEA, 2008a).

Nos Estados Unidos, várias propostas têm sido avaliadas usando sistemas de combustível líquido para a produção de ^{99}Mo . Destes, os mais relevantes são os projetos propostos pelo Grupo de Serviços Técnicos Babcock e Wilcox (B e W) e Tecnologia Médica SHINE. Babcock e Wilcox, que propôs um Sistema de Produção de Isótopos Médicos (MIPS, por sua sigla em inglês), utilizando um AHR com combustível LEU. Esse projeto conceitual teria uma potência do projeto de 200 kW, portanto, seria capaz de produzir aproximadamente 10000 Curie no final da irradiação (5 dias de irradiação), a partir de um rendimento de 90% e assumindo um tempo de processamento de dez horas, podem ser produzidos aproximadamente 8000 Curie (1100 seis dias Curie por semana). Para o sistema de remoção de calor do núcleo, dois esquemas são propostos, um ativo no qual são utilizados tubos helicoidais com circulação forçada, e outro, passivo, no qual é utilizada a circulação natural do fluido refrigerante (IAEA, 2008a; REYNOLDS, 2008). Tecnologia Médica SHINE propôs um projeto conceitual de um AHR subcrítico de combustível LEU (SHINE, por sua sigla em inglês - Subcritical Hybrid Intense Neutron Emitter). Esse projeto conceitual utiliza um acelerador como fonte externa de nêutrons, os quais são obtidos a partir da colisão de um feixe de íons de deutério em um alvo de gás trítio (CHEMERISOV et al., 2011; PIEFER et al., 2011). Excetuando a fonte externa de nêutrons, o princípio de funcionamento deste projeto conceitual, assim como os mecanismos de extração e purificação do ^{99}Mo são semelhantes aos usados em qualquer outro AHR.

Em 2000, o Instituto de Energia Nuclear da China empreendeu o estudo de um projeto conceitual de um AHR de 200 kW considerando combustível LEU e HEU (MIPR, por sua sigla em inglês - Medical Isotope Production Reactor), para a produção de ^{99}Mo e outros isótopos médicos (IAEA, 2008a). Outros estudos têm sido realizados no Laboratório de Engenharia Nuclear e Computacional da Universidade de Xi'an Jiaotong, onde foi estudado o projeto conceitual desse AHR, nesses estudos foram estabelecidos modelos de cálculo e desenvolvidos código de computador para a gestão do combustível nuclear no núcleo do AHR tais como o FMSR (Fuel Management for Solution Reactors) (LI et al., 2010; WU; CAO, 2016).

A Federação Russa, com a experiência de operação do reator ARGUS desenvolveu um conceito de centro de produção de isótopos médicos usando dois AHR, a fim de manter o funcionamento contínuo de pelo menos um dos AHR e, assim, garantir a produção contínua de isótopos médicos (Figura 15). Com base no estudo da literatura disponível, assim como a fornecida publicamente por ROSATOM, identifica-se um grupo de projetos conceituais de AHR, que, embora se baseiem no reator ARGUS mostram diferenças entre eles. As principais diferenças referem-se principalmente ao aumento da potência térmica, a fim de aumentar a quantidade de isótopos médicos produzidos, implicando que também os sistemas de refrigeração dos reatores foram modificados para ter em conta o aumento da potência, e em segundo lugar, o uso de combustível LEU no contexto dos esforços mundiais para reduzir o enriquecimento em reatores de pesquisa.

Figura 15 – Esquema de funcionamento do conceito de centro de produção de isótopos médicos com dois AHR

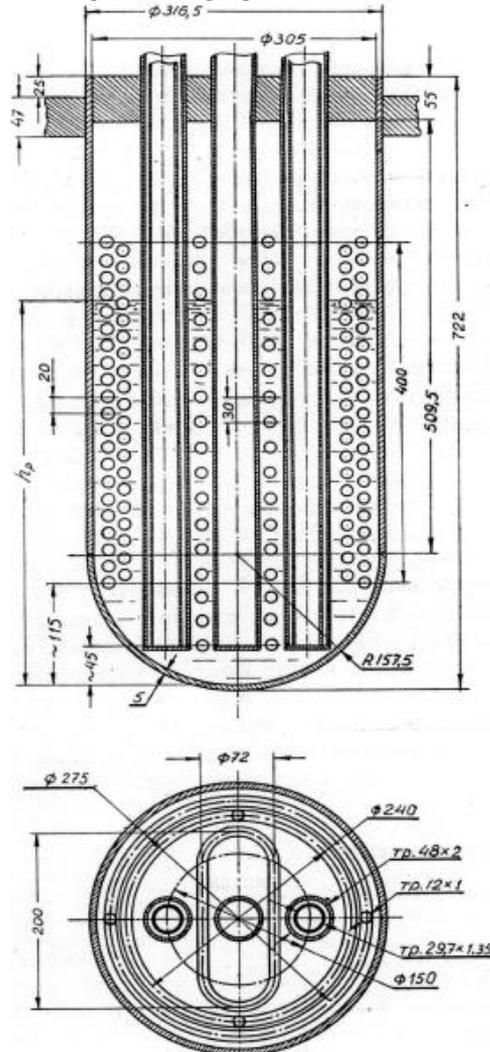


Fonte: IAEA (2008a).

Um dos primeiros projetos conceituais de AHR baseado no reator ARGUS, é resultado de pesquisas realizadas no Instituto de Física e Engenharia de Energia (IPPE) em Obninsk, em colaboração com outras instituições de pesquisa e organizações de projetos de ROSATOM e outras agências russas (BARANAIEV et al., 2007; IAEA, 2008a). A potência do projeto é de 50 kWt e foi denominado SR-RN (Solution Reactor – Radio Nuclides). O núcleo do reator consiste em uma solução de sulfato de uranila enriquecida a 90% em ²³⁵U localizada no interior de um recipiente cilíndrico com fundo semiesférico. Esse reator tem no interior um sistema de proteção e controle, o trocador de calor interno e um CRS para a regeneração dos gases radiolíticos hidrogênio e oxigênio produzidos na solução combustível

durante a operação do reator. Observa-se na Figura 16 a semelhança no projeto com o reator ARGUS, a principal diferença reside no sistema de remoção de calor devido ao aumento da liberação de energia. Devido ao trabalho a um nível de potência superior (50 kWt), o SR-RN usa três tubos helicoidais, enquanto o reator ARGUS utiliza apenas um. A produção de isótopos médicos programados para este AHR é apresentada na Tabela 2.

Figura 16 – Esquema do projeto conceitual SR-RN



Fonte: Baranaev *et al.* (2007); IAEA (2008a).

Tabela 2 – Produção de isótopos médicos prevista no reator SR-RN

Isótopo Médico	Produção
^{99}Mo	500 Ci/dia
^{133}Xe	130 Ci/semana
^{89}Sr	100 mCi/semana

Fonte: Baranaev *et al.* (2007); IAEA (2008a).

Um segundo projeto, proposto pela empresa “Kraznaya Zvezda” da ROSATOM, corresponde a um projeto de centro para a produção de isótopos médicos (TNM, 2014a, 2014b), cujo esquema se apresenta na Figura 17. Na Tabela 3, estão resumidas algumas das características oferecidas pelo fornecedor da tecnologia. As principais diferenças com o reator ARGUS são o enriquecimento do combustível (19,75% em ^{235}U) e a potência que aumentou para 75 kWt.

Figura 17 – Esquema do projeto conceitual da “Kraznaya Zvezda”



Fonte: TNM (2014a, 2014b).

Tabela 3 – Principais características do segundo projeto conceitual de AHR

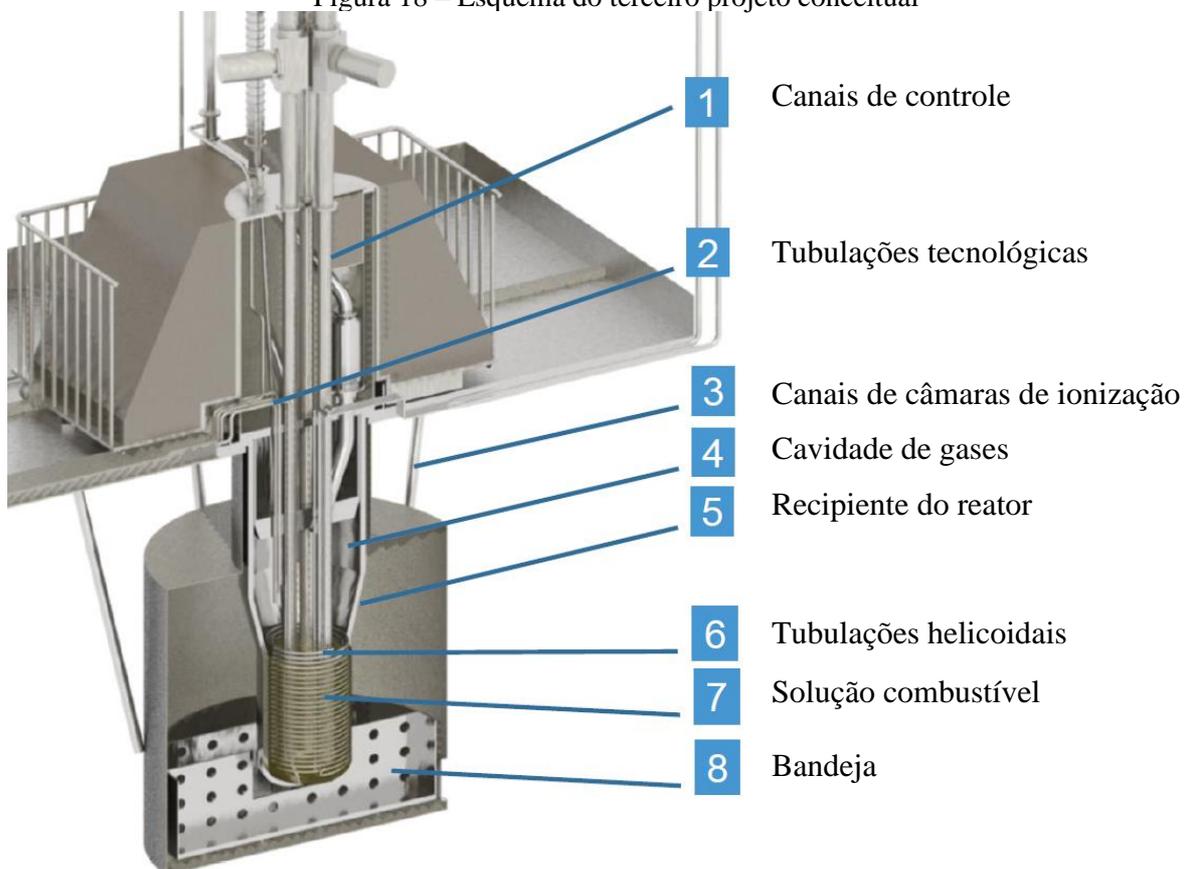
Principais características do reator	
Potência (kWt)	75
Composição da solução combustível	UO_2SO_4
Volume da solução combustível (litros)	24,50
Enriquecimento do combustível (%)	19,75
Concentração (gU/litro)	400
Vida útil (anos)	30
Recarga do combustível (anos)	A cada 10
Quantidade de ^{99}Mo produzido (Curie)	700
Quantidade de ^{99}Mo produzido no final do processamento e empacotamento (aprox. 30 horas) (Curie)	530

Quantidade de ^{99}Mo produzido (6 dias Curie por semana)	200
- Quantidade de ^{89}Sr produzido (Curie/semana)	5-10
- Quantidade de ^{131}I produzido (Curie/semana)	10-30
- Quantidade de ^{133}Xe produzido (Curie/semana)	10

Fonte: TNM (2014a, 2014b).

O terceiro projeto (ROSATOM, 2014, 2015a, 2015b), cujo esquema é mostrado na Figura 18 contém características semelhante ao segundo projeto conceitual, a potência é de 75 kWt, o combustível utilizado é sulfato de uranila enriquecida a 19,8% em ^{235}U e tem capacidade para produzir cerca de 375 seis dias Curie de ^{99}Mo por semana, e cerca de 300 Curie de ^{89}Sr anualmente. A carga inicial de combustível é 3679 gramas de ^{235}U , o tempo entre as recargas do combustível nuclear é de 10 anos e a queima do combustível, aos 10 anos, atinge um nível de 9%.

Figura 18 – Esquema do terceiro projeto conceitual



Fonte: ROSATOM (2014, 2015a, 2015b).

O quarto projeto (denominado ARGUS-M), cujo esquema é mostrado na Figura 19 contém características semelhante ao SR-RN, a potência é de 50 kWt, o combustível utilizado é sulfato de urânio de baixo enriquecimento em ^{235}U e tem capacidade para produzir cerca de 250 seis dias Curie de ^{99}Mo por semana. O tempo entre as recargas de combustível nuclear é de 10 anos. Em 2015 ROSATOM decidiu construir uma instalação de produção em Sarov (500 km de Moscou), usando o projeto conceitual ARGUS-M (VAKULENKO, 2017).

Figura 19 – Esquema do ARGUS-M



Fonte: Vakulenko (2017).

Nos sistemas estudados até agora, a produção de ^{99}Mo pode ser realizada de acordo com dois modos de funcionamento, de forma contínua ou discreta. No modo discreto, o AHR opera a determinado nível de potência durante uma determinada quantidade de tempo predefinida (5 ou 7 dias). Após esse período, o reator é desligado e após um período para a refrigeração da solução, esta é passada através da coluna de absorção para a extração do ^{99}Mo , e posteriormente retorna ao núcleo para reiniciar o processo. No modo de funcionamento contínuo, a solução combustível é continuamente bombeada através da coluna de absorção sem ocorrer o desligamento do reator.

A recuperação de outros isótopos médicos, tais como ^{89}Sr , ^{133}Xe e os isótopos do Iodo (^{131}I , ^{132}I e ^{133}I), é realizada seletivamente a partir da fase gasosa na solução, esses isótopos assim como, outros também gasosos são transportados para o topo da zona gasosa do reator através de processos intensivos de decomposição radiolítica da água presente na solução combustível. Um sistema para a recuperação dos isótopos de interesse, conectado a essa fase gasosa, realiza a recuperação seletiva dos isótopos de interesse, enquanto o resto dos isótopos são devolvidos à solução combustível. Uma descrição detalhada deste processo de extração pode ser encontrada em (BARANAEV et al., 2007; IAEA, 2008a).

Na Tabela 4, resume-se as principais características do reator ARGUS e os quatro modelos de AHR destinados a serem utilizados no conceito de centro de produção de isótopos médicos.

Tabela 4 – Principais características dos projetos baseados no reator ARGUS

Parâmetro / Reator	ARGUS	ARGUS	SR-RN	Kraznaya Zvezda	Terceiro modelo	ARGUS-M
	HEU (1981- 2014)	LEU (2014-)				
Potência (kWt)	20	14	50	75	75	50
Solução aquosa	UO ₂ SO ₄					
Concentração (gU/litro)	81	380	94,4	400	-	-
Volume de solução (litros)	22	25,70	20	24,50	Capacidade para 59 litros	-
Enriquecimento do Combustível (%)	90	19,80	90	19,75	19,8	Menos de 20%
Carga inicial de ^{235}U (gramas)	-	1880	1700	~1900	3679	~1900
Ciclo de produção (dias)	-	-	-	5-7	5	-
Produção de ^{99}Mo	~200 seis dias Curie	-	Pelo menos 500 Curie/d	200 seis dias Curie	~375 seis dias Curie	250 seis dias Curie

Fonte: O Autor (2020).

2.8 CONCLUSÕES DO CAPÍTULO

1. A maior parte da produção de ^{99}Mo para atender à demanda global estimada em 9400 seis dias Curie por semana depende de dez reatores de pesquisa, oito desses reatores, cuja capacidade de produção disponível por semana de ^{99}Mo é de aproximadamente 75% do total,

têm 50 ou mais anos de operação. Portanto, manter um nível da produção para garantir a cobertura da demanda e seu crescimento anual tornou-se um desafio para toda a cadeia de abastecimento do ^{99}Mo .

2. Um certo número de alternativas para a produção de ^{99}Mo utilizando combustível LEU encontra-se em estudo, constituindo a tecnologia dos Reatores Homogêneos Aquosos uma alternativa atraente em comparação com o método tradicional de irradiação de alvos em reatores de pesquisa heterogêneos multiuso.

3. A primeira tentativa bem-sucedida de utilizar um AHR para a produção de isótopos médicos foi protagonizada pelo reator russo ARGUS de 20 kWt de potência, em operação desde 1981 no Centro de Pesquisa Nuclear Instituto Kurchatov na Federação Russa.

4. A Federação Russa, com a experiência de operação do reator ARGUS desenvolveu um conceito de centro de produção de isótopos médicos usando dois AHR para garantir a produção contínua de isótopos médicos. Identificam-se quatro projetos conceituais de AHR, que, embora sejam baseados no reator ARGUS mostram diferenças entre eles. As principais diferenças referem-se à potência térmica, aos sistemas de refrigeração e ao uso de combustível LEU.

3 MATERIAL E MÉTODOS

Neste capítulo, discutem-se aspectos do projeto conceitual de um AHR utilizando combustível LEU relacionados com a seleção da solução combustível, a demanda regional, a potência térmica requerida para satisfazer essa demanda, a produção de isótopos médicos, a produção de bolhas de gás produto da decomposição radiolítica da água, as dimensões do reator, os métodos de extração do ^{99}Mo e outros isótopos médicos, os métodos de refrigeração do núcleo, entre outros. No presente capítulo é apresentada e descrita a metodologia computacional, baseada em avançados modelos e códigos de computador acoplados baseados na teoria de Monte Carlo e na Dinâmica de Fluidos Computacional, para estudar as características físico-neutrônicas e termoidráulica do núcleo de um projeto conceitual de AHR para a produção de isótopos médicos que responda à demanda regional. Além disso, são discutidas as tarefas de teste para a validação dos modelos e a metodologia computacional desenvolvida.

3.1 SOLUÇÕES COMBUSTÍVEL

O uso de combustível líquido, em forma de uma solução aquosa, é uma das características distintivas dos AHR, tendo em consideração que influenciam diretamente a concepção, licenciamento, construção, operação e segurança dos mesmos (LANE, 1962). Atualmente, são três as soluções combustíveis que são consideradas para o uso nos AHR para a produção de ^{99}Mo e outros isótopos médicos: (1) nitrato de uranila [$\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$], (2) sulfato de uranila [UO_2SO_4], (3) fluoreto de uranila [UO_2F_2]. Sendo a solução de sulfato de uranila a mais amplamente utilizada e estudada (IAEA, 2008a, 2013). Algumas características dessas soluções serão discutidas nas seções seguintes.

3.1.1 Solução combustível de sulfato de uranila

As soluções de sulfato de uranila têm sido as mais usadas e estudadas; o reator LOPO, que foi o primeiro reator homogêneo de combustível líquido e o terceiro reator nuclear construído utilizou sulfato de uranila, os experimentos HRE-1 e HRE-2 também usaram sulfato de uranila (LANE, 1962). O reator ARGUS, o primeiro AHR utilizado com sucesso para a produção de ^{99}Mo utiliza sulfato de uranila como combustível (BOLDYREV et al., 2014; MYASNIKOV et al., 2012). Adicionalmente é a opção selecionada por Tecnologia

Médica SHINE para o projeto conceitual SHINE (CHEMERISOV et al., 2011; PIEFER et al., 2011).

Uma das principais vantagens da utilização de soluções de sulfato de uranila, é que a partir da decomposição radiolítica da água apenas hidrogênio e oxigênio são formados, que podem ser facilmente recombinados utilizando um sistema de regeneração ou de recombinação catalítica e a água produzida por condensação retornada ao núcleo mantendo inalterada a concentração de Urânio (IAEA, 2013; YOUKER et al., 2013). As principais desvantagens da utilização de soluções de sulfato de uranila é que são mais difíceis de preparar e ligeiramente menos eficiente que as soluções de nitrato de uranila para a extração do ^{99}Mo . Uma coluna de recuperação usando sulfato de uranila como combustível terá que ser 25% maior que usando nitrato de uranila para extrair a mesma quantidade de ^{99}Mo (IAEA, 2013; YOUKER et al., 2013).

3.1.2 Solução combustível de nitrato de uranila

Nitrato de uranila foi utilizado como combustível em reatores como HYPO e SUPO (LANE, 1962) e é a opção selecionada por Babcock e Wilcox para o projeto conceitual MIPS (IAEA, 2008a; REYNOLDS, 2008).

Uma das principais vantagens das soluções de nitrato de uranila para utilização nos AHR para a produção de ^{99}Mo é o fato de que o ^{99}Mo é muito mais fácil de se extrair a partir de uma solução de nitrato de uranila do que de sulfato de uranila (YOUKER et al., 2013). Contudo, a decomposição radiolítica de uma solução de nitrato de uranila tem resultados mais complexo do que os provenientes de uma solução de sulfato de uranila, neste caso, além dos processos de produção de hidrogênio e oxigênio, são produzidos também gases como nitrogênio e óxido de nitrogênio (NO_x), o que implica na necessidade de sistemas adicionais, considerando os processos corrosivos que causam, esse fenômeno aumenta em magnitude, com o aumento da temperatura, o que reduz a aplicabilidade desta solução combustível para elevadas densidades de potência e temperaturas (LANE, 1962).

3.1.3 Solução combustível de fluoreto de uranila

O fluoreto de uranila, embora seja muito atraente para a utilização nos AHR a partir da baixa secção de choque de captura em comparação com o nitrato e sulfato, não foi amplamente usado. A principal desvantagem da utilização dessa solução é a produção de

fluoreto de hidrogênio na fase líquida e gasosa, este composto é altamente corrosivo para o zircônio, o titânio e menos para o aço inoxidável, o que complica as questões de segurança da instalação (LANE, 1962).

3.1.4 Seleção da solução combustível

Tendo em consideração as questões discutidas nas seções anteriores, foi selecionada uma solução combustível de sulfato de uranila para o projeto conceitual de AHR. A seleção foi feita em base a um grupo de fatores tais como:

- (1) existência de uma considerável experiência de funcionamento durante décadas,
- (2) considerável quantidade de estudos e resultados experimentais em anos recentes,
- (3) produção de apenas hidrogênio e oxigênio a partir da decomposição radiolítica,
- (4) a operação bem-sucedida do reator ARGUS antes e depois da conversão a combustível LEU, sistema no qual baseia-se o projeto conceitual.

3.2 PRODUÇÃO DE ⁹⁹MO E POTÊNCIA TÉRMICA DO AHR

Em um AHR a produção de isótopos médicos e especialmente a produção de ⁹⁹Mo pode ser controlada por meio da potência térmica do reator. Dado que a potência térmica é resultado do número de fissões que ocorrem no núcleo e que nessas fissões a probabilidade de ocorrência do produto de fissão ⁹⁹Mo é 6,1% a partir da distribuição típica das massas dos produtos de fissão do ²³⁵U (Figura 3), então a variação da potência térmica pode variar a taxa de produção de ⁹⁹Mo.

Sabendo que cada fissão térmica de um núcleo de ²³⁵U gera cerca de 200 MeV (BELL; GLASSTONE, 1970), então $3,10 \cdot 10^{10}$ fissões/segundo gera 1 Wt, portanto, podemos dizer que um reator de 1 Wt de potência produz $1,89 \cdot 10^9$ átomos de ⁹⁹Mo por segundo (PASQUALINI, 2011). Outro fator que influencia a produção de ⁹⁹Mo no reator é o tempo, considerando que este isótopo tem uma meia vida de 65,94 horas (AUDI et al., 1997). A Equação 1 (PÉREZ, 2015), desenvolvida considerando as questões acima referidas, permitirá inferir a potência térmica que deve ter um AHR para produzir uma certa quantidade de ⁹⁹Mo, em seis dias Curie, depois de trabalhar T dias.

$$Potência\ térmica\ [kWt] = \frac{A \cdot B \cdot Atividade\ de\ ^{99}Mo}{e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} \cdot t} \cdot (1 - e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} \cdot T})} \quad (1)$$

$$\text{Sendo: } \frac{A * \text{Atividade do } ^{99}\text{Mo}}{e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} * t}} = \text{Massa de } ^{99}\text{Mo [gramas]} \quad (2)$$

$$A = \frac{1}{\text{Atividade específica do } ^{99}\text{Mo}} \left[\frac{\text{gramas}}{\text{Ci}} \right] \quad (3)$$

$$B = \frac{\ln 2 * P * N_A}{T_{1/2} * p * f * Z} \quad (4)$$

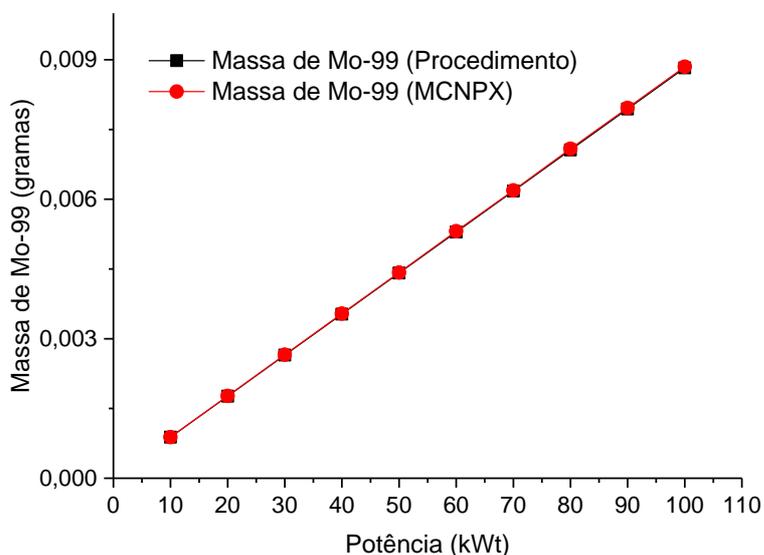
Onde, “Atividade de ^{99}Mo ” é a atividade de ^{99}Mo a ser produzida no AHR em seis dias Curie, $T_{1/2}$ representa a meia vida do ^{99}Mo (65,94 horas), t é a soma do tempo necessário para a extração do ^{99}Mo da solução combustível mais 6 dias (para expressar o resultado em seis dias Curie), T representa o ciclo de queima do reator, “Massa de ^{99}Mo ” é a massa de ^{99}Mo que deve ser produzida no reator no final do ciclo de trabalho para a quantidade de seis dias Curie desejada, P é uma constante para a conversão de W para kW (0,001), N_A é o número de Avogadro ($6,02214179 * 10^{23}$ 1/mol), p é a probabilidade de ocorrência do produto de fissão ^{99}Mo de acordo com a distribuição típica das massas dos produtos de fissão do ^{235}U (6,1%), f é o número de fissões/segundo necessária para gerar 1 Wt ($3,10 * 10^{10}$ fissões/segundo) e Z é a massa atômica do ^{99}Mo (99).

Esse procedimento analítico para o cálculo da potência térmica que deve ter o AHR para produzir certa quantidade de ^{99}Mo foi verificado por meio da modelagem computacional com o código MCNPX versão 2.6e para valores de potência térmica que variam de 10 kW a 100 kW (PÉREZ, 2015).

A Figura 20 mostra a comparação entre os valores das massas obtidos com o procedimento analítico e na modelagem com MCNPX utilizando como valores de entrada de potência os calculados com a Equação 1. A diferença relativa em % (Equação 5) entre os valores das massas calculadas com o procedimento analítico e as calculadas com a modelagem com MCNPX mostrou valores inferiores a 0,38% em todos os casos.

$$E = \left(\frac{\text{Massa de } ^{99}\text{Mo}_{\text{MCNPX}} - \text{Massa de } ^{99}\text{Mo}_{\text{Procedimento}}}{\text{Massa de } ^{99}\text{Mo}_{\text{MCNPX}}} \right) * 100\% \quad (5)$$

Figura 20 – Comparação entre os valores das massas de ^{99}Mo obtidas com o procedimento analítico e as obtidas com o código MCNPX



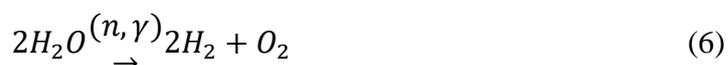
Fonte: Pérez (2015).

Os resultados positivos do processo de verificação desse procedimento (diferenças relativas inferiores a 1%) permitem sua utilização para inferir qual deve ser a potência térmica de trabalho do projeto conceitual de AHR, em função de uma demanda particular de ^{99}Mo . Por exemplo, para satisfazer a demanda de ^{99}Mo relatada em (CNEN, 2018) para o atual mercado brasileiro (~475 seis dias Curie por semana de ^{99}Mo em 2020), um AHR precisaria trabalhar em torno dos 100 kWt, utilizando ciclos de operação de 5 dias. No entanto, levando em consideração as previsões de crescimento de 8% ao ano (CNEN, 2018), seria atraente aumentar a produção para cerca de 700 seis dias Curie por semana de ^{99}Mo (estimativa da demanda para 2025), o que implica em uma potência térmica do projeto conceitual de AHR de aproximadamente 142 kWt, aproximemos a 150 kWt.

Um AHR baseado no reator ARGUS, mas operando a uma potência de 150 kWt, teria uma densidade de potência superior a 5 kWt/litro. E nesses níveis de densidade de potência, a solução combustível é muito instável e propensa a ferver. Além disso, implicaria na necessidade de fazer grandes modificações no sistema de remoção de calor para dissipar o aumento do calor gerado. Portanto, uma opção viável poderia ser o uso de dois AHR de 75 kWt ou três AHR de 50 kWt, para os quais a densidade de potência é muito menor. A utilização de um projeto conceitual baseado em dois AHR de 75 kWt ou três AHR de 50 kWt será uma das questões analisadas durante a pesquisa.

3.3 PRODUÇÃO DE GÁS A PARTIR DA DECOMPOSIÇÃO RADIOLÍTICA DA ÁGUA

Uma característica distintiva dos AHRs é a decomposição radiolítica da água na solução combustível aquosa (Equação 6). Nesse processo são produzidas bolhas de gás, compostas principalmente por hidrogênio e oxigênio (nas soluções de UO_2SO_4), através da energia depositada pelos fragmentos de fissão (que respondem por 96% do gás produzido), nêutrons (2%) e raios gama (2 %). No caso de uma solução combustível de nitrato de urânio são também produzidos outros gases como nitrogênio e óxido de nitrogênio (NO_x), o que aumenta a complexidade dos processos que ocorrem e, portanto, os sistemas necessários para o seu controle (LANE, 1962). Esses gases, juntamente com os outros gases inertes produtos da fissão do ^{235}U abandonam a solução combustível para a região de ar acima da solução combustível (D.YU. et al., 2003). A fim de manter constante a concentração da solução combustível, o hidrogênio e o oxigênio devem ser recombinados e devolvidos para a solução usando um sistema de regeneração ou de recombinação catalítica permitindo, por meio de um processo de condensação, recombinar esses gases e devolvê-los ao núcleo em forma de água (BARANAEV et al., 2007; IAEA, 2008a).



A produção de bolhas de gás radiolítico e seu efeito desempenham um papel importante no comportamento operacional dos AHRs. As instabilidades que provoca, relacionadas fundamentalmente com mudanças na densidade da solução combustível, influenciam diretamente a termoidráulica e a neutrônica do núcleo do reator (SOUTO; KIMPLAND, 2004). As principais mudanças do ponto de vista da termoidráulica estão relacionadas com a transferência de calor e a velocidade da solução combustível, as quais aumentam com o aumento da produção de bolhas de gás (PÉREZ, 2015). Do ponto de vista da neutrônica, a diminuição da densidade e a consequente expansão volumétrica da solução combustível, gera um volume de vazio na solução que introduz um coeficiente de reatividade negativo, resultando em uma redução e flutuações da energia com a migração e eventual escape das bolhas da solução combustível (BARBRY, 2010; LI et al., 2010; PAIN et al., 2001). Portanto, a produção de isótopos médicos em reatores de solução não pode ser realizada sem ter em consideração a mitigação dos efeitos produzidos pela formação de

bolhas de gás radiolítico (SOUTO et al., 2005). Avaliar os efeitos produzidos pela formação de bolhas de gás radiolítico requer o conhecimento de dois parâmetros importantes, (1) o tamanho da bolha e (2) o volume total das bolhas de gás.

Estudos publicados em SOUTO; HEGER, (1996) e SPIEGLER et al., (1962) concluem que as bolhas de gás radiolíticas são criadas com um raio inicial fixo, independente de parâmetros como temperatura, pressão do líquido, tensão superficial, concentração de gás dissolvido e concentração de urânio. Porém, o tamanho final da bolha de gás dependerá da concentração de hidrogênio e de oxigênio na solução. Em caso de supersaturação de hidrogênio e oxigênio na solução combustível, a bolha vai crescer em tamanho, enquanto num meio subsaturado diminuirá seu tamanho, dissolvendo-se após aproximadamente 10^{-5} segundos de sua criação.

Uma estimativa de um raio característico da bolha de gás radiolítico recentemente nucleada não é facilmente encontrado na literatura, propostas para ele variam entre um raio característico de $0,5 \mu\text{m}$ (SOUTO; KIMPLAND, 2004) e $1 \mu\text{m}$ (SPIEGLER et al., 1962). O raio de uma bolha de gás radiolítico após sua nucleação cresce ou encolhe dependendo da concentração de hidrogênio e de oxigênio na solução. Em um reator com baixa potência, quando bolhas são criadas, elas podem nuclear na parede do recipiente da solução combustível ou em outras estruturas dentro da solução combustível. Enquanto em reatores operando em potências mais altas, bolhas formam-se homoganeamente no volume da solução combustível atingindo um tamanho representativo de bolhas maduras (SOUTO, 2002). Para a determinação do tamanho da bolha madura, foi utilizada uma relação linear (Equação 7) (WASS, 2017) desenvolvida a partir de valores experimentais disponíveis na literatura científica (BUNKER, 1963; CHEMERISOV et al., 2015; KING, 1955).

$$\text{Diam. da bolha [mm]} = 0.652 * \text{Densidade de potencia} \left[\frac{\text{kW}}{\text{litro}} \right] + 0.1099 \quad (7)$$

Como uma aproximação inicial para o volume total de gás radiolítico produzido na solução combustível (cm^3), foi utilizado o método proposto por SOUTO et al., (2005), o qual foi modificado para ter em consideração um grupo de propostas disponíveis na literatura científica mais atual (COOLING, 2014). O método analítico se mostra na Equação 8 já tendo em consideração as modificações.

$$V_B(t) = \left(1 + \frac{1}{\xi}\right) * \frac{G(H_2)}{N_A} * \frac{R_g T_g}{p} * P * t \quad (8)$$

Onde, V_B é o volume total de gás radiolítico (cm^3), ζ é a fração de moléculas de H_2 por moléculas de O_2 produzidas na decomposição radiolítica de água, $G_{(\text{H}_2)}$ é a produção de hidrogênio ($1/\text{J}$), N_A é o número de Avogadro, R_g é a constante dos gases, T_g é a temperatura média interna das bolhas (K), p é a pressão interna do recipiente do reator (Pa), P é a potência térmica do reator (Wt) e t é o tempo característico em que a bolha de gás deixa a solução combustível (s). Na Tabela 5 são mostrados alguns dos parâmetros necessários para a resolução da Equação 8 disponíveis na literatura científica (COOLING, 2014; IAEA, 2008b; LI et al., 2010; SOUTO, 2002; SOUTO; HEGER, 1996; SOUTO; KIMPLAND, 2004; SOUTO et al., 2005). O tempo característico em que a bolha deixa a solução combustível foi determinado como o quociente da metade da altura da solução combustível (levando em consideração que a maioria das bolhas são formadas perto do centro do reator) e a velocidade terminal da bolha (calculada usando a equação de balanço das forças que atuam sobre uma esfera de gás em movimento a velocidade constante através de um líquido) (BUECHLER, 2016). Para cálculos subsequentes no processo iterativo usando a metodologia computacional, a velocidade terminal da bolha de gás radiolítico será substituída pela velocidade média das bolhas de gás calculada com ANSYS CFX.

Tabela 5 – Parâmetros proposto para as bolhas de gás

Parâmetro	Valor	Unidade
ζ	2	
$G_{(\text{H}_2)}$	$8 \cdot 10^{-3}$	moléculas eV^{-1}
N_A	$6,02214179 \cdot 10^{23}$	1/mol
R_g	8,314472	J/(mol K)
T_g	353,15	K
p	90000	Pa

Fonte: Cooling (2014); IAEA (2008b); Li *et al.* (2010); Souto (2002); Souto; Heger (1996); Souto; Kimpland (2004); Souto *et al.* (2005).

Nos parâmetros da Tabela 5 devem ser incluídos a potência térmica do reator e o tempo característico em que a bolha deixa a solução combustível, os quais dependem das características específicas de cada projeto conceitual.

3.4 MÉTODOS DE REMOÇÃO DE CALOR DO AHR

Em um AHR encontram-se vários mecanismos e sistemas que influenciam a refrigeração da solução combustível, os que podem ser passivos ou ativos, alguns dos quais incluem a transferência de calor através da parede do recipiente do reator para o refletor e o meio circundante, a remoção de calor no sistema de gestão de gás e a presença de uma tubulação linear ou helicoidal no interior do núcleo através da qual circula um líquido de refrigeração, seja por circulação natural ou forçada (BAJOREK et al., 2010). Além disso, podem ser utilizados outros métodos de remoção de calor, tais como a presença de tubulação fora do núcleo perto das paredes do recipiente do reator, a inserção do reator em uma piscina e a utilização da solução combustível como líquido de refrigeração, fazendo-a circular continuamente do núcleo a um trocador de calor e de volta ao núcleo, este último método foi estudado em (HUISMAN, 2013; RIJNSDORP, 2014).

Dada a potência térmica que deve operar o projeto conceitual de AHR, um estudo é necessário para avaliar a transferência de calor e esfriamento do núcleo e definir as características de projeto. Propõe-se a utilização de um sistema de remoção de calor através de tubos helicoidais localizados no interior do núcleo do reator, semelhante ao utilizado no reator ARGUS. Esta decisão baseia-se na operação bem-sucedida do reator ARGUS por muitos anos e em estudos realizados (PÉREZ, 2015) os quais demonstraram, que um projeto conceitual de AHR de 75 kWt, baseado no reator ARGUS, poderia ser eficazmente refrigerado usando este sistema. A quantidade de tubos helicoidais a ser usado, sua localização no interior do núcleo do projeto conceitual de AHR, a taxa de fluxo de líquido de refrigeração são alguns dos aspectos a serem avaliados para garantir que a temperatura da solução combustível seja mantida em todos os momentos abaixo de 90 °C, o que assegura uma faixa de segurança na temperatura para evitar a ebulição da água da solução combustível (MYASNIKOV et al., 2012).

Embora uma parte considerável da transferência de calor seja realizada através dos tubos helicoidais localizados no interior do núcleo do reator, uma parte do calor é transferida através das paredes do recipiente do reator para o refletor e o meio circundante. Para a determinação desse calor transferido através das paredes do recipiente do reator é necessário a determinação dos coeficientes de transferência de calor. Para determinar a quantidade de calor que se transmite desde a solução combustível por convecção natural em direção à parede cilíndrica do reator foi usada a correlação de Evans e Stefany (Equação 9) (PITTS; SISSOM, 2011) para aquecimento ou enfreamento de cavidades cilíndricas horizontais ou verticais

fechadas nas quais a relação longitude (L) diâmetro (D) se encontra no intervalo $0,75 < L/D < 2,0$. O número de Grashof (Gr) foi definido usando como dimensão característica a longitude do cilindro.

$$Nu_D = \frac{hD}{k} = 0,55(Gr_L Pr)^{\frac{1}{4}} \quad (9)$$

Para determinar a quantidade de calor que se transmite desde a solução combustível por convecção natural em direção à parede da cavidade esférica do reator foi usada a correlação de F. Kreith (Equações 10 e 11) (PITTS; SISSOM, 2011). Nesta correlação, o número de Grashof usa como dimensão característica o diâmetro da cavidade.

$$Nu_D = \frac{hD}{k} = 0,59(Gr_D Pr)^{\frac{1}{4}} \quad \text{Para } 10^4 < Gr_D Pr < 10^9 \quad (10)$$

$$Nu_D = \frac{hD}{k} = 0,13(Gr_D Pr)^{\frac{1}{3}} \quad \text{Para } 10^9 < Gr_D Pr < 10^{12} \quad (11)$$

3.5 DESCRIÇÃO DA PLATAFORMA COMPUTACIONAL

Atendendo às complexidades do sistema em estudo, é necessário para o desenvolvimento e aplicação da metodologia computacional, a existência de uma plataforma computacional composta por avançados hardware, modelos e códigos de computador baseados na teoria de Monte Carlo e Dinâmica de Fluidos Computacional para a análise e concepção do núcleo do projeto conceitual de AHR com um nível de detalhe e precisão suficiente.

Na aplicação da metodologia computacional será usado um cluster não dedicado composto por oito computadores pessoais, 1 Intel(R) Core(TM) 3,60GHz CPU i7-4790 de 24GB de RAM, 1 Intel(R) Core(TM) 3,40GHz CPU i7-4770 de 24GB de RAM, 1 Intel(R) Core(TM) 3,40GHz CPU i7-3770 de 24GB de RAM, 3 Intel(R) Core(TM) 3,40GHz CPU i7-3770 de 16GB de RAM e 2 Intel(R) Core(TM) 3,40GHz CPU i7-2600 de 16GB de RAM. O que representa uma capacidade instalada utilizável de 32 cores e 152 GB de capacidade de memória RAM.

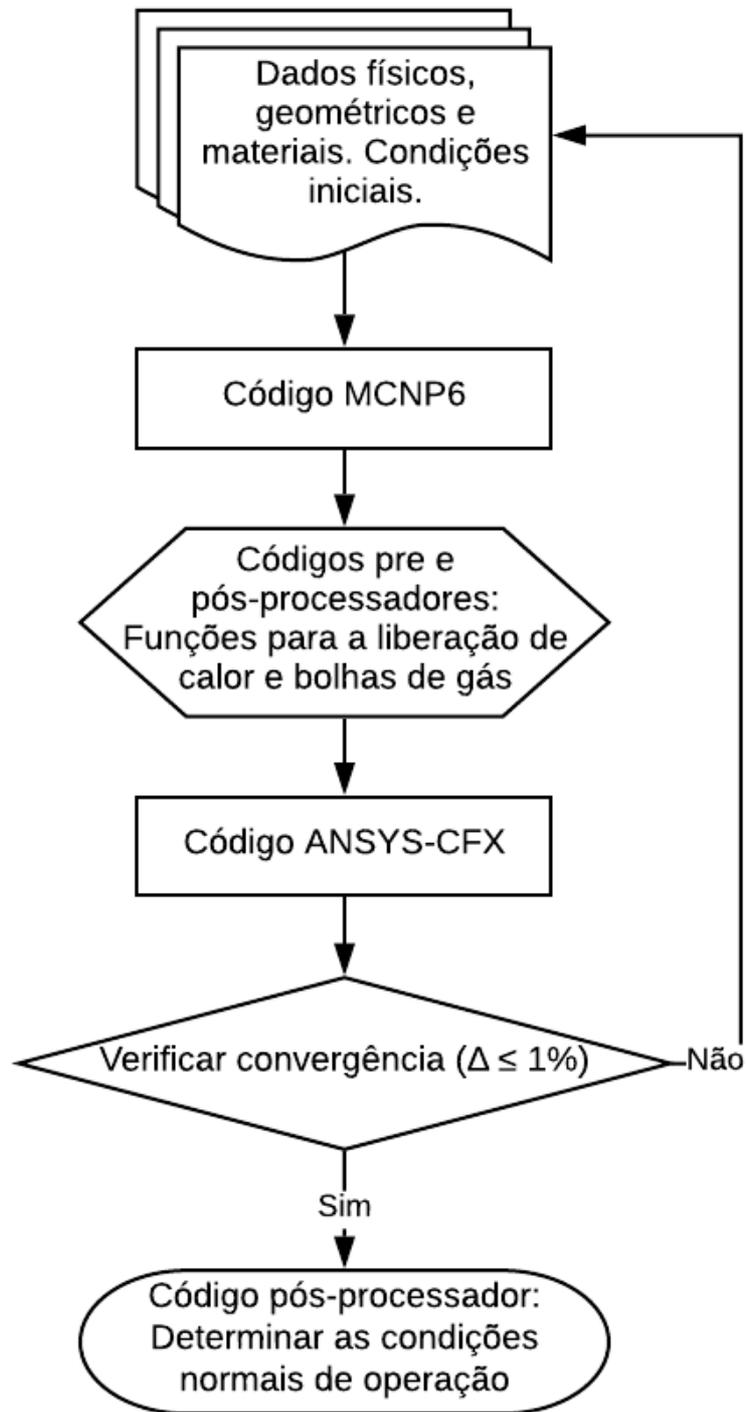
3.5.1 Metodologia computacional

Estudos precedentes foram realizados de forma não acoplada para a análise e concepção de projetos conceituais de AHR e os resultados publicados em periódicos e anais de congressos (PÉREZ, 2015; PÉREZ et al., 2015, 2017b, 2019). Embora a abordagem de modelagem numérica não acoplada acima mencionada com MCNP e ANSYS CFX forneça uma capacidade preditiva com um nível de detalhe e precisão aceitável de forma independente para cada física. A verdade é, que devido à natureza interligada do comportamento termoidráulico e o transporte de nêutrons, inevitavelmente os cálculos acoplados são imprescindíveis para o estudo em detalhe dos fenômenos globais do sistema. Para que o acoplamento seja possível, é necessário desenvolver e utilizar uma metodologia computacional. A metodologia computacional para o estudo das características físico-neutrônicas e termoidráulicas do núcleo do AHR pode ser descrita como um processo iterativo que inclui avançados modelos e códigos de computador, que serão acoplados para o intercâmbio de informações e dados entre si para atingir um nível suficiente de detalhe e precisão sem precedentes nos estudos desse tipo de reatores de combustível líquido para a produção de radioisótopos médicos.

Na Figura 21 representa-se graficamente o processo iterativo, no qual os códigos computacionais MCNP6 e ANSYS CFX-19 constituem as principais ferramentas de cálculo. Um sistema de códigos computacionais adicionais (desenvolvidos no âmbito da pesquisa) foi utilizado para o pré-processamento, pós-processamento e intercâmbio de informações e dados entre os códigos principais.

O processo iterativo da metodologia computacional começa com um conjunto de dados físicos, geométricos e materiais os que são introduzidos nos códigos MCNP6 e ANSYS CFX-19 como dados de entrada. Adicionalmente um grupo de condições e aproximações iniciais são predefinidas para o primeiro cálculo com MCNP6, que são: temperatura da solução combustível (80 °C), temperatura da água do sistema de refrigeração (20 °C), volume total de gás radiolítico (calculado de acordo a Equação 8) e altura da solução combustível (tendo em consideração o volume total de gás radiolítico e solução combustível).

Figura 21 – Processo iterativo da metodologia computacional



Fonte: O Autor (2020).

O tempo de cálculo médio com MCNP6 é de aproximadamente 5 horas. Após o primeiro cálculo com MCNP6 é obtida uma estimativa do fluxo de partículas (partículas/cm²) usando o tally FMESH, com a mesma são geradas funções normalizadas para descrever a energia depositada e a formação de bolhas de gás (Apêndice A). Essas funções normalizadas, o tamanho das bolhas de gás (calculado de acordo a Equação 7), a taxa de fluxo de bolhas

(calculada de acordo a Equação 8, mas sem fazer a multiplicação pelo tempo característico em que a bolha deixa a solução combustível) e a velocidade terminal da bolha (calculada usando a equação de balanço das forças que atuam sobre uma esfera de gás em movimento a velocidade constante através de um líquido), constituem os dados de entrada para o cálculo com ANSYS CFX.

A convergência numérica desse primeiro cálculo com ANSYS CFX está altamente, influenciada pela convergência do balanço da energia e das bolhas de gás, ou seja, a obtenção do equilíbrio entre a energia gerada e a que sai pelas paredes e sistema de refrigeração, assim como entre o gás produzido e o que sai pela superfície superior do núcleo. A obtenção desse equilíbrio, requer no mínimo 5000 iterações e tendo em consideração uma média de cálculo de 22 iterações/hora, a duração do cálculo inicial com ANSYS CFX é de aproximadamente 10 dias. O tempo de cálculo dos passos a serem realizados posteriormente é muito menor (1000 iterações – aproximadamente 2 dias por passo de cálculo), visto que, utilizam os resultados convergidos do primeiro cálculo como condição inicial. Um comportamento similar foi reportado por outros autores (KIM; BUECHLER, 2017; WASS, 2017), onde o número de iterações utilizadas foram 10000 e 100000 respectivamente.

Após o cálculo com ANSYS CFX se verifica a convergência dos parâmetros de interesse: temperatura média, velocidade média da solução combustível e das bolhas de gás e fração volumétrica de gás na solução combustível. A comparação após o primeiro cálculo será realizada com as condições iniciais de temperatura, velocidades e fração volumétrica de gás, se a diferença relativa entre os parâmetros é superior a 1% o processo iterativo é realizado novamente.

Para o segundo cálculo com MCNP6 as temperaturas (e, por conseguinte as densidades dos materiais), o volume total de gás radiolítico e altura da solução combustível serão determinados a partir dos resultados do cálculo com ANSYS CFX. O processo iterativo continuará até a diferença relativa entre os parâmetros ser menor ou igual a 1%, após o qual são determinadas as condições normais de operação do projeto conceitual de AHR.

3.5.2 O método de Monte Carlo

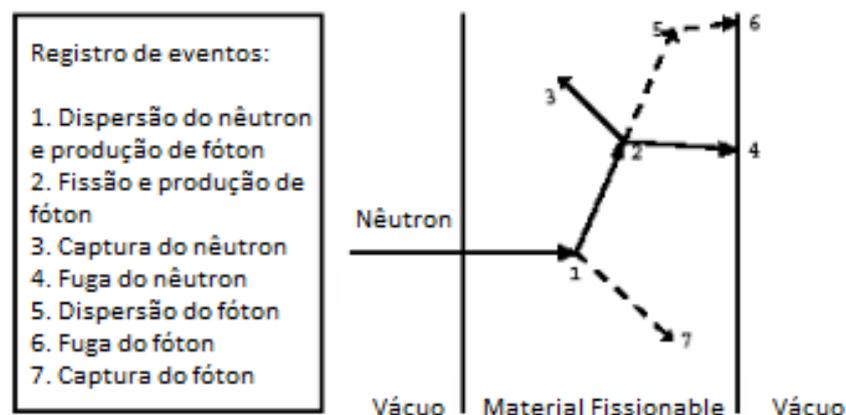
O método de Monte Carlo é um método estatístico numérico usado para aproximar expressões matemáticas complexas para avaliar com precisão processos e sistemas complexos. O nome e o desenvolvimento sistemático dos métodos de Monte Carlo como uma ferramenta de pesquisa datam de aproximadamente 1944, quando foi utilizado no

desenvolvimento da bomba atômica durante a Segunda Guerra Mundial. A sua utilização no projeto Manhattan foi dada, pelo seu potencial para resolver problemas de cálculo complexos, tais como o comportamento altamente aleatório da difusão de nêutrons num material físsil (METROPOLIS, 1987).

O método de Monte Carlo pode ser utilizado para reproduzir processos nucleares de natureza estatística, tais como a interação de diferentes tipos de partículas com a matéria, mas sua principal importância é a resolução de problemas complexos que não podem ser modelados por códigos que usam métodos deterministas. A exemplificação estatística do processo baseia-se na geração de números aleatórios para formar caminhos e histórias. A variável aleatória é uma variável que não possui valor conhecido, entretanto seu valor, assim como a sua probabilidade de ocorrência podem ser supostos.

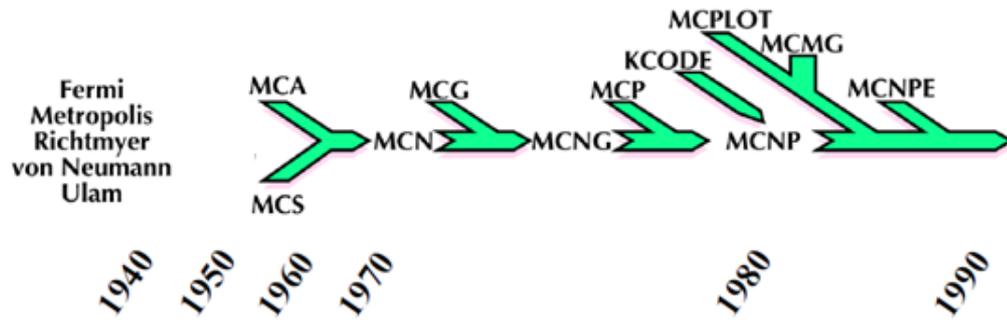
A Figura 22 mostra a história de um nêutron através da geração de números aleatórios. Esses números aleatórios representam cada um dos eventos lógicos que podem experimentar os nêutrons e o estudo do caminho dos nêutrons desde o nascimento até a sua captura ou fuga é conhecido como a história do nêutron (LOS ALAMOS NATIONAL LABORATORY, 2001). Um dos códigos de cálculo, com base no método de Monte Carlo mais usado hoje na concepção de novos projetos de reatores nucleares é o MCNP, que possui mais de 50 anos de desenvolvimento e utilização (Figuras 23 e 24).

Figura 22 – História de um nêutron incidente



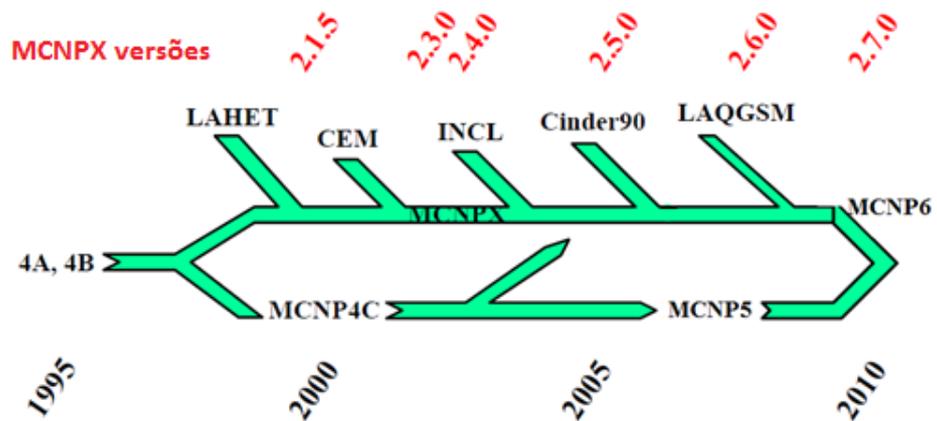
Fonte: Los Alamos National Laboratory (2001).

Figura 23 – Desenvolvimento do código MCNP durante o século XX



Fonte: Mckinney (2009, 2012).

Figura 24 – Desenvolvimento do código MCNP durante o século XXI



Fonte: Mckinney (2009, 2012).

3.5.3 MCNP6

O código MCNP (Monte Carlo NParticle, sigla em inglês) é um código de simulação tridimensional do transporte de partículas, geral, para diferentes tipos de geometrias e para uma grande faixa de energias, dependente do tempo. Pode-se modelar o transporte de 37 diferentes tipos de partículas, como nêutrons, elétrons, fótons, prótons, etc. e pode ser usado para reproduzir processos nucleares de caráter estatístico, tais como, a interação de diferentes partículas com a matéria, cálculos de criticidade, blindagem, dosimetria, resposta do detector e muitas outras aplicações (GOORLEY et al., 2013; LOS ALAMOS NATIONAL LABORATORY, 2013).

O MCNP6 versão 1.0, liberado em maio de 2013, poderia ser descrito de maneira simples e precisa como a combinação dos recursos do MCNP5 e MCNPX, mas é muito mais do que a soma desses dois códigos de computador. O MCNP6 é o resultado de seis anos de esforços das equipes de desenvolvimento de código MCNP5 e MCNPX e incorpora um

conjunto de novas possibilidades e recursos para a simulação computacional não encontrados nas versões anteriores. Além disso, formando parte dessa versão o MCNP6 se inclui em uma nova distribuição da biblioteca de dados nucleares ENDF/B-VII.1 (GOORLEY et al., 2013). O MCNP, em suas versões mais recentes, incluiu um grupo de recursos imprescindíveis para o desenvolvimento desta pesquisa, tais como a capacidade de trabalhar com estruturas repetitivas, simular a queima do combustível e usar a carta FMESH (GOORLEY et al., 2013; LOS ALAMOS NATIONAL LABORATORY, 2013).

Na modelagem de sistemas de geometria complexa como é o caso que é investigado, o trabalho pode ser feito com mais facilidade se é usada a oportunidade oferecida pelo MCNP6 para criar um tipo de estrutura chamada estrutura repetitiva, diminuindo assim a complexidade e o custo computacional. A estrutura repetitiva é uma ferramenta presente no MCNP6 responsável por gerar geometrias complexas onde existem muitas superfícies de iguais características geométricas, como é o caso das bolhas de gás dentro da solução combustível. Para isso, é necessário definir um conjunto de superfícies ou células que formem um conjunto completo (geométrico e de materiais), o qual é chamado de universo (célula unitária). Depois, esse universo é repetido no interior de um volume, criando as superfícies desejadas. No MCNP6, a repetição das células nos volumes realiza-se utilizando dois tipos de redes, hexagonal ou quadrada (GOORLEY et al., 2013; LOS ALAMOS NATIONAL LABORATORY, 2013).

Para simular a queima e a variação da composição isotópica no tempo do combustível, o MCNP6 utiliza um método preditor-corretor que incorpora os códigos CINDER90 e MonteBurns. O método preditor-corretor que é utilizado para determinar a queima do combustível, consiste em realizar um cálculo de queima com CINDER90 até a metade do passo do tempo previsto, neste ponto se calcula a densidade do fluxo neutrônico e as velocidades de interação para um estado estacionário nesse passo. Com os novos fluxos e densidades de colisões obtidas, recalcula-se a queima do combustível até o final do passo pelo tempo previsto. Por isso, os fluxos e as densidades de colisões calculadas para o estado estável na metade do passo pelo tempo, consideram-se grandezas médias para calcular a variação na composição isotópica durante o mesmo tempo (GOORLEY et al., 2013; LOS ALAMOS NATIONAL LABORATORY, 2013). Este recurso do MCNP6 será utilizado para avaliar a queima do combustível nuclear e determinar a produção de isótopos médicos na solução combustível.

A carta FMESH (Superimposed Mesh Tally, sigla em inglês) permite ao usuário do MCNP6 definir um “tally” ao longo de uma malha virtual sobreposta a geometria do

problema. Por padrão, o “tally” FMESH calcula uma estimativa do fluxo de partículas em uma célula de malha, em unidades de partículas/cm². Se um asterisco precede a carta FMESH, será registrado a energia das partículas, em unidades de MeV/cm². Dois tipos de malha podem ser definidos de acordo a geometria do problema, malhas retangulares ou cilíndricas. A carta FMESH só trabalha com tallies de tipo 4 (fluxo médio em uma célula em partículas/cm² ou MeV/cm²), embora existam métodos para representar também tallies de tipo 6 (energia média depositada em uma célula em MeV/g ou jerks/g) e 7 (energia de fissão média depositada em uma célula em MeV/g ou jerks/g) a partir de tallies de tipo 4. Os resultados da carta FMESH são gravados em um arquivo de saída separado, com o nome padrão MESHTAL (LOS ALAMOS NATIONAL LABORATORY, 2013). Este recurso do MCNP6 será utilizado para avaliar a energia de fissão média depositada numa malha virtual cilíndrica sobreposta a geometria do projeto conceitual de AHR. A partir da energia de fissão média depositada são determinadas as expressões que descrevem a liberação de calor e de bolhas de gás, tendo em consideração que ambas são diretamente dependentes do processo de fissão. A vantagem deste método reside na facilidade com a qual se podem determinar parâmetros em pequenas células de malha distribuídas por todo o núcleo do AHR sem ter que definir geometricamente a célula durante o processo de criação da geometria no ficheiro de entrada do MCNP6.

Um estudo de sensibilidade preliminar para o número de histórias de nêutrons foi realizado. Foram avaliadas cinco quantidades diferentes de número de histórias de nêutrons (5, 10, 20, 40 e 80 milhões) e os resultados dos cálculos comparados de acordo com os erros relativos médios e os tempos de cálculo. Determinou-se que, para vinte milhões de histórias de nêutrons os erros relativos médios atendem aos critérios para serem considerados geralmente confiáveis, que é o patamar superior na escala de confiabilidade de acordo as diretrizes para interpretar o erro relativo no MCNP6 (LOS ALAMOS NATIONAL LABORATORY, 2013).

3.5.4 Dinâmica de Fluidos Computacional

A Dinâmica de Fluidos Computacional (CFD) é uma ferramenta útil no estudo dos fluxos de fluidos, transferência de calor e massa, reações químicas e fenômenos relacionados. A Dinâmica de Fluidos Computacional se baseia na solução numérica das equações diferenciais que governam esses fluxos. A utilização de códigos baseados em CFD começou na década de 1960 com a disponibilidade de computadores, mas foi em meados dos anos

1970, com o desenvolvimento dos primeiros códigos multiuso com base em CFD e no início dos anos 1980, com o rápido desenvolvimento da computação que essa ferramenta se tornou importante para muitas indústrias em que a previsão dos fluxos de fluido é importante. Com a chegada dos anos 1990 e a partir da aplicação dos conceitos de computação de alto desempenho, o uso de CFD se expandiu significativamente. Atualmente é amplamente utilizado em pesquisas básicas e aplicadas como uma ferramenta de desenho industrial e de cálculo de fenômenos geofísicos e ambientais para citar algumas aplicações (ANSYS TEAM, 2019; BLAZEK, 2015; VERSTEEG; MALALASEKERA, 1995).

3.5.5 ANSYS CFX-19

Um exemplo de ferramenta computacional baseada no CFD é o ANSYS CFX-19, software multiuso que permite resolver problemas complexos com alta precisão. Tal é o caso da operação de um AHR, onde se combinam fenômenos complexos da dinâmica dos fluidos e da transferência de calor. Nesta pesquisa a versão 19 de ANSYS CFX lançada em 2017 foi utilizada. ANSYS CFX-19 incorpora novas possibilidades em relação às anteriores distribuições do software, fornecendo novos recursos exclusivos e melhorias que permitem uma abordagem avançada para guiar e otimizar o projeto de modelagem (ANSYS TEAM, 2019).

O ANSYS CFX vai permitir a obtenção de parâmetros termoidrúlicos, tais como, distribuições de temperatura, perfis de velocidade, fração do volume de gás na solução combustível, entre outros. Para alcançar esses parâmetros o CFX aplica as equações de conservação de Navier-Stokes para obter o comportamento do fluido. As equações diferenciais de conservação de continuidade (Equação 12), momentum (Equações 13, 14 e 15) e energia (Equação 16) expressas em coordenadas cartesianas são (T. CEBECI et al., 2007):

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial(\rho u)}{\partial x} + \frac{\partial(\rho v)}{\partial y} + \frac{\partial(\rho w)}{\partial z} = 0 \quad (12)$$

$$\rho \left(\frac{\partial u}{\partial t} + u \frac{\partial u}{\partial x} + v \frac{\partial u}{\partial y} + w \frac{\partial u}{\partial z} \right) = -\frac{\partial P}{\partial x} + \mu \left[\frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} \right] + g \rho_{ref} [1 - \beta(T - T_{ref})] \quad (13)$$

$$\rho \left(\frac{\partial v}{\partial t} + u \frac{\partial v}{\partial x} + v \frac{\partial v}{\partial y} + w \frac{\partial v}{\partial z} \right) = -\frac{\partial P}{\partial y} + \mu \left[\frac{\partial^2 v}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 v}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 v}{\partial z^2} \right] + g \rho_{ref} [1 - \beta(T - T_{ref})] \quad (14)$$

$$\rho \left(\frac{\partial w}{\partial t} + u \frac{\partial w}{\partial x} + v \frac{\partial w}{\partial y} + w \frac{\partial w}{\partial z} \right) = -\frac{\partial P}{\partial z} + \mu \left[\frac{\partial^2 w}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 w}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 w}{\partial z^2} \right] + g \rho_{ref} [1 - \beta(T - T_{ref})] \quad (15)$$

$$\rho C_p \frac{DT}{Dt} = \frac{\partial}{\partial x} \left[k \frac{\partial T}{\partial x} \right] + \frac{\partial}{\partial y} \left[k \frac{\partial T}{\partial y} \right] + \frac{\partial}{\partial z} \left[k \frac{\partial T}{\partial z} \right] + \frac{\partial P}{\partial t} + \Phi \quad (16)$$

Onde u , v e w são as componentes da velocidade (m/s) nas direções x , y e z , respectivamente; t é tempo (s); ρ é densidade (kg/m^3); μ é a viscosidade dinâmica ($\text{Pa}\cdot\text{s}$); P é a pressão (Pa); g é a gravidade da Terra (m/s^2); ρ_{ref} é a densidade na temperatura de referência (kg/m^3); β é o coeficiente de expansão térmica (K^{-1}); T é a temperatura (K), T_{ref} é a temperatura de referência (K); C_p é o calor específico ($\text{J/kg}\cdot\text{K}$); k é a condutividade térmica ($\text{W/m}\cdot\text{K}$) e Φ é a função de dissipação. Portanto, umas das questões mais importantes para a correta modelação e simulação computacional de qualquer sistema com ANSYS CFX é a seleção adequada das bibliotecas de propriedades físico-materiais. Para cada uma das soluções combustíveis de sulfato de uranila modeladas, foram obtidas equações em função da temperatura para as propriedades termofísicas (densidade, viscosidade dinâmica, calor específico e condutividade térmica) usando dados experimentais disponíveis em (LANE, 1962; YOUKER et al., 2014). No Apêndice B resumem-se as equações obtidas para as soluções combustível modeladas.

Outra questão muito importante na modelação e simulação computacional com ANSYS CFX é a seleção adequada dos modelos numéricos, de turbulência e de multifase a serem usados nos cálculos. A avaliação e seleção desses modelos e outras questões foram amplamente estudadas nos AHR pelo autor e os resultados publicados em PÉREZ et al., (2017b). Nesses estudos foram avaliados os efeitos do refinamento da malha, tamanho do passo de tempo, modelos numéricos, transitórios e de turbulência na precisão da solução da simulação do funcionamento em estado estacionário de um projeto conceitual de AHR com ANSYS CFX.

Avaliaram-se os três modelos numéricos de advecção presentes no ANSYS CFX: Upwind, High Resolution e Specified Blend Factor (SBF). O modelo Upwind (primeira ordem) é um esquema convectivo simples e robusto, mas que pode ser bastante difusivo. Pode ser usado em cálculos preliminares, mas, em geral, deve ser evitado. O Specified Blend Factor permite que o usuário insira um valor entre 0 (Upwind) e 1 (segunda ordem), corrigindo a ordem do modelo. O modelo High Resolution tentará definir a ordem mais alta possível automaticamente, mantendo a solução limitada em todos os lugares (ANSYS TEAM, 2019).

Foram avaliados os modelos transitórios disponíveis (First Order Backward Euler e Second Order Backward Euler) e três modelos para o estudo da turbulência (laminar, k-epsilon e SST). K-Epsilon ($k-\epsilon$) é um modelo de turbulência de duas equações, que fornece uma descrição geral da turbulência por meio de duas equações de transporte. Trata-se de um modelo semi-empírico baseado em equações de transporte para a energia cinética da turbulência (k) e sua taxa de dissipação (ϵ). O modelo padrão k-epsilon é usado na previsão da maioria dos cálculos de fluxo turbulento para aplicações industriais devido à sua robustez, economia e precisão razoável para uma ampla gama de fluxos. No entanto, o modelo apresenta um desempenho ruim quando confrontado com camadas limites não-equilibradas. Ele tende a prever o início da separação muito tarde, bem como a menosprezar a quantidade de separação (ANSYS TEAM, 2019). Para resolver esse problema, novos modelos foram desenvolvidos. Um dos mais eficazes é o modelo Shear Stress Transport (SST) de Menter (MENTER; LANGTRY, 2003; MENTER, 1993). O modelo SST é uma combinação do k-epsilon no fluxo livre e nos modelos k-omega perto das paredes com uma função de mistura para garantir uma transição suave entre os dois modelos. O modelo SST nem sempre converge para a solução rapidamente, então os modelos k-epsilon ou k-omega são frequentemente resolvidos primeiro para fornecer boas condições iniciais (ANSYS TEAM, 2019).

Como é esperado, o uso do modelo de advecção numérica de primeira ordem permitiu realizar os cálculos em menos tempo, com melhor convergência e residuais de três ordens de grandeza menores que os residuais com o modelo de advecção numérica de segunda ordem. Mesmo assim, o modelo de advecção numérica de segunda ordem (High Resolution) foi selecionado tendo em consideração as recomendações do ANSYS CFX (ANSYS TEAM, 2019). A comparação dos parâmetros de interesse definidos na pesquisa (temperatura, velocidade e fração volumétrica de gás na solução combustível) para cada um dos modelos estudados mostraram diferenças relativas consideráveis ($> 3\%$) na comparação entre os esquemas transitórios disponíveis (First Order Backward Euler e Second Order Backward Euler). Por essa razão, mesmo com o Euler de primeira ordem tendo o tempo de cálculo menor, o Euler de segunda ordem foi selecionado. Na simulação foi obtido um número de Reynolds $Re > 4000$, portanto, o fluxo foi assumido na região turbulenta e então os cálculos subsequentes foram feitos considerando apenas os modelos de turbulência k-epsilon e SST. O comportamento e os valores dos parâmetros de interesse para esses modelos de turbulência são relativamente semelhantes em todos os casos. Embora, para todos os parâmetros de

interesse o modelo SST estabilizou-se ou chegou ao estado de trabalho estacionário em menor tempo, por isso o modelo SST foi o selecionado (PÉREZ et al., 2017b).

A seleção dos modelos de multifase para estudar a interface solução combustível / bolhas de gás (modelar a transferência de momento, turbulência, massa e calor) foi feita tendo em consideração as recomendações do ANSYS CFX (ANSYS TEAM, 2019) e a experiência de uso dos mesmos durante a modelação e simulação computacional do AHR (KIM; BUECHLER, 2017; PÉREZ, 2015; PÉREZ et al., 2017a, 2017b; SOUTO, 2002; SOUTO; HEGER, 1996; SOUTO; KIMPLAND, 2004; SOUTO et al., 2005). O coeficiente de tensão superficial usado foi 0.1 N/m (SOUTO, 2002; SOUTO; HEGER, 1996; SOUTO; KIMPLAND, 2004; SOUTO et al., 2005).

Para avaliar a transferência de momento, o ANSYS CFX tem em consideração as forças de arraste e as forças que não provocam arraste. Para modelar as forças de arraste conta com 4 modelos possíveis (Schiller-Naumann, Ishii Zuber, Grace e coeficiente de arraste), desses o modelo Schiller-Naumann foi selecionado tendo em consideração que é o aplicável a partículas fluidas que sejam suficientemente pequenas para serem consideradas esféricas (ANSYS TEAM, 2019). O ANSYS CFX tem em consideração 4 forças que não provocam arraste, a força de sustentação, força de massa virtual, força de lubrificação da parede e força de dispersão turbulenta. Para modelar a força de sustentação foi utilizado o modelo Tomiyama tendo em consideração que é o escolhido para bolhas deformáveis elipsoidais ou esféricas (ANSYS TEAM, 2019). A força da massa virtual não foi levada em consideração seguindo as recomendações de (KIM; BUECHLER, 2017). Para modelar a força de lubrificação da parede foi usado o modelo Antal seguindo as recomendações de (KIM; BUECHLER, 2017). Para modelar a força de dispersão turbulenta foi utilizado o modelo Lopez de Bertodano, que é o escolhido para modelar fluxos de bolhas de pequenos diâmetros na ordem dos milímetros para coeficientes de dispersão de 0.1-0.5 (ANSYS TEAM, 2019).

Para avaliar a transferência de turbulência, o ANSYS CFX conta com 3 opções, a primeira é não modelar o efeito, a segunda é o modelo Sato Enhanced Eddy Viscosity e a terceira é o modelo Turbulence Source Term, que é um modelo ainda em fase de teste. Tendo em consideração o interesse da pesquisa em avaliar a turbulência que induzem as bolhas de gás na solução combustível foi selecionado o modelo Sato Enhanced Eddy Viscosity, o que pode ser usado para modelar o aumento da turbulência na fase continua como resultado da presença de ondas atrás das bolhas em movimento (ANSYS TEAM, 2019). Os modelos de transferência de massa não foram levados em consideração, pois se supõe para a modelação e simulação computacional com ANSYS CFX que as fases estudadas (solução combustível /

bolhas de gás) não intercambiam massa. Para avaliar a transferência de calor ANSYS CFX conta com 6 opções (Ranz Marshall, Hughmark, Nusselt Number, Heat Transfer Coefficient, Two Resistance, Interface Flux), dessas foi selecionada a opção Ranz Marshall. Nessa opção, se usa a correlação Ranz Marshall na fase contínua da interface (solução combustível) e resistência zero na fase discreta da interface (bolhas de gás). Na superfície superior da solução combustível foi utilizada uma condição de contorno Degassing, que permite que só a fase discreta (bolhas de gás radiolítico) abandone o domínio (ANSYS TEAM, 2019).

Foi realizado um estudo de sensibilidade para avaliar a independência dos resultados da malha utilizada. Os estudos foram realizados para um modelo preliminar com seis tamanhos de elementos da malha (Tabela 6) em um setor equivalente a um quarto da geometria da solução combustível, tendo em consideração que a geometria é simétrica. Em todos os casos a qualidade da malha foi verificada para garantir que os parâmetros críticos, como Skewness e Orthogonal Quality, permanecessem dentro dos limites recomendados.

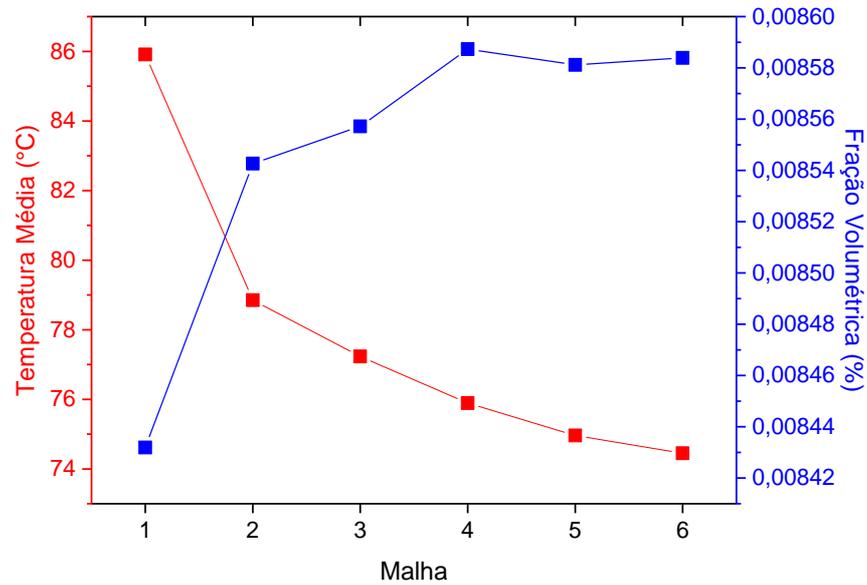
Tabela 6 – Seis malhas estudadas

Malha	Nodos	Elementos
1	370000	2000000
2	485000	2600000
3	620000	3300000
4	743000	4000000
5	968000	5200000
6	1135000	7200000

Fonte: O Autor (2020).

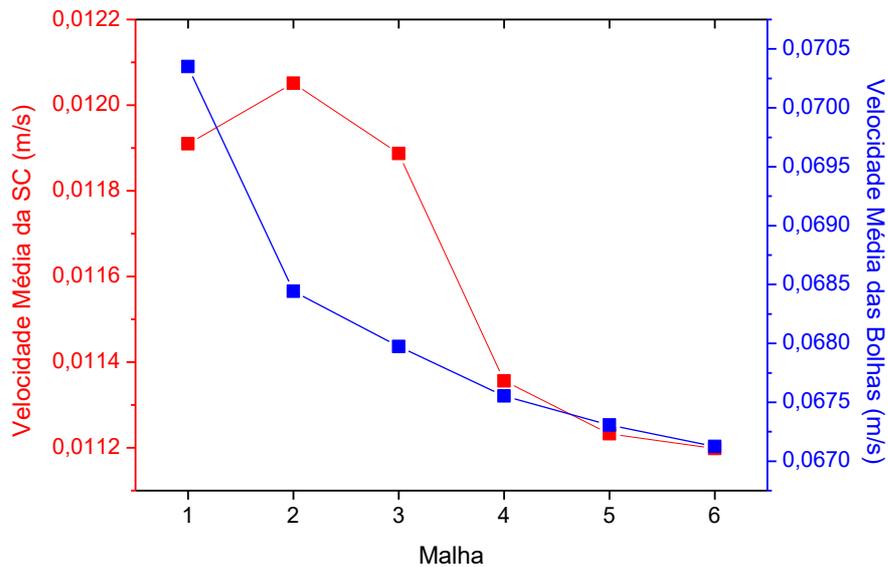
Os parâmetros de interesse estudados para avaliar a independência da malha usada foram temperatura média, velocidade média da solução combustível e das bolhas de gás e fração volumétrica de gás na solução combustível. As Figuras 25 e 26 mostram a variação desses parâmetros de interesse para as seis malhas estudadas. Observa-se que a partir da malha número 4 a variação dos parâmetros de interesse é mínima, inferior a 1,25%, por isso os estudos subsequentes serão realizados usando o tamanho de elemento da malha número 4.

Figura 25 – Variação da temperatura média e da fração volumétrica de gás na solução combustível para as seis malhas estudadas



Fonte: O Autor (2020).

Figura 26 – Variação da velocidade média da solução combustível e das bolhas de gás para as seis malhas estudadas



Fonte: O Autor (2020).

3.6 AVALIAÇÃO DA CAPACIDADE DE PREVISÃO

A investigação científica que é desenvolvida, atualmente, sobre os novos projetos conceituais de AHR para a produção de isótopos médicos baseia-se principalmente na aplicação de códigos computacionais amplamente utilizados e validados para os reatores nucleares heterogêneo e de combustíveis sólidos. A aplicação desses códigos para os AHR,

em que o núcleo é homogêneo e o combustível é uma solução líquida LEU, precisa de validação extensa para demonstrar a capacidade de previsão dos complexos processos físico-neutrônicos e da termoidráulica que acontecem nesse reator. Em (IAEA, 2010b) examinou-se essas questões e concluiu-se que os trabalhos de validação exigem novos dados experimentais e de referência baseados em experimentos, considerando que a atual base experimental, especialmente, para a operação de reatores com valores de densidade de potência superiores a 1 kWt/litro é muito limitada.

Por isso, é vital antes de prosseguir com a concepção do projeto conceitual de AHR, avaliar a capacidade de previsão dos modelos desenvolvidos nos códigos computacionais MCNP6 e ANSYS CFX-19 para os cálculos físico-neutrônicos e da termoidráulica respectivamente para finalmente, ser capaz de avaliar a capacidade de previsão da metodologia computacional.

Para avaliar a capacidade de previsão dos modelos desenvolvidos para os cálculos físico-neutrônicos e da termoidráulica com MCNP6 e ANSYS CFX-19 serão utilizados resultados de experimentos críticos realizados no Instituto Kurchatov nos anos de 1980-1981 para uma densidade de potência de cerca de 1,0 kWt/litro de solução, usando uma solução de sulfato de uranila de alto enriquecimento (GLOUCHKOV; KHVOSTIONOV, 1997).

Para avaliar a capacidade de previsão da metodologia computacional serão utilizados resultados de duas configurações de operação normal do reator russo ARGUS, o primeiro estado será o reator ARGUS utilizando combustível HEU, o segundo estado terá em consideração o reator ARGUS após a conversão para o combustível LEU.

3.6.1 Experimentos críticos Instituto Kurchatov 1980-1981

Os experimentos críticos desenvolvidos no Instituto Kurchatov durante 1980-1981 tiveram como objetivo investigar questões relacionadas com a segurança de um reator compacto e com uma solução aquosa de sulfato de uranila enriquecida em ^{235}U a 20,9% (GLOUCHKOV; KHVOSTIONOV, 1997). Foram estudadas quatro configurações do núcleo com diferentes espessuras do recipiente de reator, densidades da solução combustível volumes críticos e concentrações de urânio. A descrição detalhada da instalação e dos experimentos críticos se apresenta em GLOUCHKOV; KHVOSTIONOV, (1997).

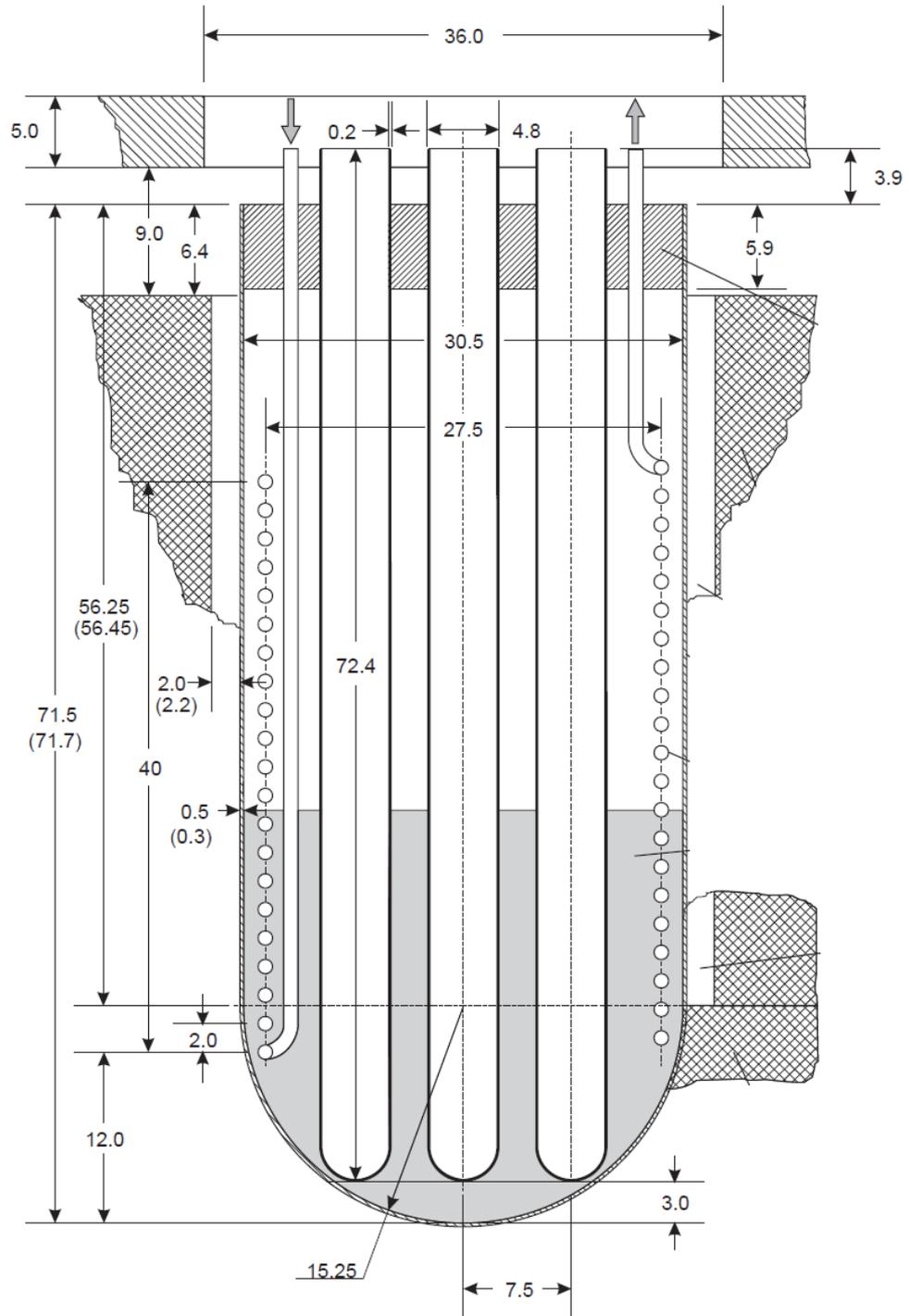
O reator (Figura 27) em que foram realizados os experimentos consiste em um recipiente cilíndrico de fundo semiesférico de 0,5 cm de espessura, e no seu interior estão localizados três canais. Nos dois canais periféricos são inseridas barras de controle e

regulação, enquanto o canal central possui apenas fins experimentais. No interior do núcleo também está localizada uma tubulação helicoidal de 1 cm de diâmetro externo, que constitui o componente principal do sistema de remoção de calor do reator. Em torno do recipiente está localizado um refletor radial e inferior de grafite.

Diagramas de cortes transversais e longitudinais do núcleo do reator, o refletor e os elementos estruturais podem ser vistos nas Figuras 28 e 29. Na Tabela 7, demonstra-se as quatro configurações do núcleo. Para as quatro configurações experimentais o estado crítico ($K_{\text{eff}} = 1,0000$) foi determinado com uma precisão relativamente elevada, dado que a incerteza experimental estimada para K_{eff} foi $0,0050 \pm (0,5\%)$ (GLOUCHKOV; KHVOSTIONOV, 1997). Uma descrição detalhada da instalação e os experimentos críticos desenvolvidos podem ser encontradas em GLOUCHKOV; KHVOSTIONOV, (1997).

Em PÉREZ, (2015); PÉREZ et al., (2015, 2017a, 2019) discutem-se em detalhe o processo de modelação computacional das quatro configurações experimentais para a avaliação da capacidade de previsão dos modelos computacionais desenvolvidos para os cálculos físico-neutrônicos e da termoidráulica com MCNP6 e ANSYS CFX-19 respectivamente.

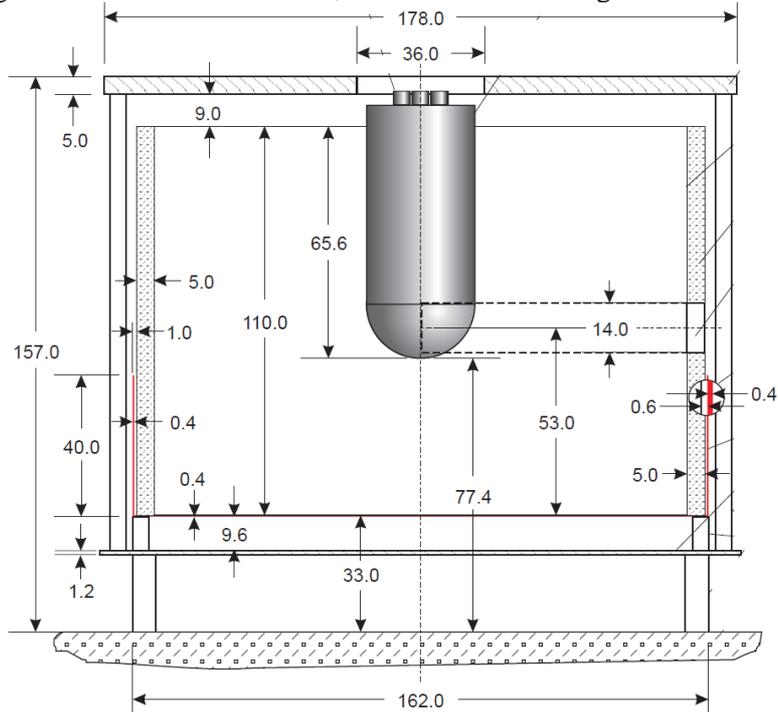
Figura 27 – Vista longitudinal do núcleo do reator, incluindo recipiente, solução combustível, canais do núcleo e tubulação helicoidal



(Dimensões em cm)

Fonte: Glouchkov; Khvostionov (1997).

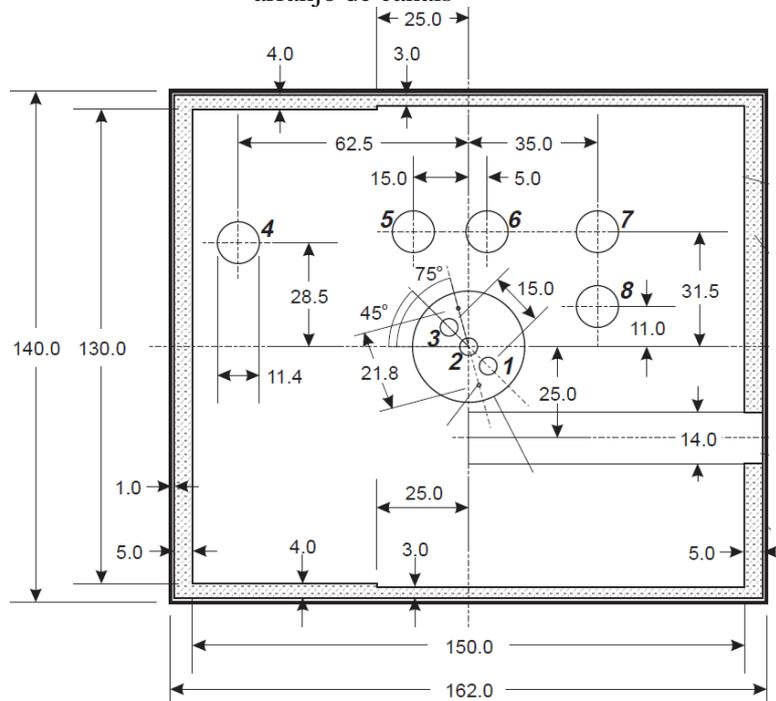
Figura 28 – Vista longitudinal do núcleo do reator, incluindo refletor de grafite e elementos estruturais



(Dimensões em cm)

Fonte: Glouchkov; Khvostionov (1997).

Figura 29 – Vista transversal do núcleo do reator, incluindo refletor de grafite, elementos estruturais e arranjo de canais



(Dimensões em cm)

Fonte: Glouchkov; Khvostionov (1997).

Tabela 7 – Configurações dos quatro experimentos críticos

No.	Concentração da solução (gU/litro)	Espessura do recipiente (cm)	Volume crítico (litro)	Densidade da solução (g/cm ³)
1	263,3 ±0,5	0,50 ±0,01	28,50 ±0,03	1,3373 ±0,0013
2	382,2 ±0,8	0,50 ±0,01	18,40 ±0,03	1,4945 ±0,0014
3	382,2 ±0,8	0,30 ±0,01	17,60 ±0,03	1,4945 ±0,0014
4	505,0 ±1,0	0,50 ±0,01	15,55 ±0,03	1,6527 ±0,0015

Fonte: Glouchkov; Khvostionov (1997).

3.6.2 Configurações de operação normal do reator russo ARGUS

Para avaliar a capacidade de previsão da metodologia computacional serão realizadas comparações com resultados de duas configurações de operação normal do reator russo ARGUS, o primeiro estado será o reator ARGUS utilizando combustível HEU e o segundo estado terá em consideração o reator ARGUS após a conversão à combustível LEU. As características geométricas do reator são as mesmas discutidas em secções precedentes, as principais diferenças estão relacionadas com às propriedades materiais das soluções combustíveis (concentração, volume, massa, enriquecimento) e a potência térmica de trabalho (BOLDYREV et al., 2014; IAEA, 2008a; MYASNIKOV et al., 2012; PIVOVAROV, 2010). Algumas das principais diferenças entre o modelo HEU e LEU do reator ARGUS resumem-se na Tabela 4.

3.7 PROJETO CONCEITUAL DE AHR

Como foi discutido na secção 3.3 (Produção de ⁹⁹Mo e potência térmica do AHR), o projeto conceitual de AHR com combustível LEU para a produção de isótopos médicos que responda à estimativa da demanda do mercado brasileiro para 2025 deve ter uma potência térmica de aproximadamente 150 kWt. Embora, uma opção viável poderia ser a utilização de dois AHR de 75 kWt ou três AHR de 50 kWt, para os quais a densidade de potência no núcleo do reator é muito menor. A opção dos dois AHR de 75 kWt é a mais atrativa tendo em consideração que um AHR desse nível de potência térmica já foi estudado em trabalhos precedentes (PÉREZ, 2015; PÉREZ et al., 2015, 2017a, 2017b) e portanto as bases do projeto conceitual já foram estabelecidas. O projeto conceitual de AHR proposto baseia-se no reator ARGUS e nos outros projetos conceituais da Federação Russa analisados na secção 2.8. As

características geométricas do reator são as mesmas discutidas em seções precedentes (Figuras 27, 28 e 29) e as principais diferenças estão relacionadas com às propriedades materiais da solução combustível (concentração, volume, massa, enriquecimento), a potência térmica de trabalho e o sistema de refrigeração que foi reprojetoado para ter em consideração o aumento na potência térmica de trabalho.

As informações de partida para o projeto conceitual são as informações publicamente disponíveis sobre o reator ARGUS após a conversão à combustível LEU. Nesse sistema a solução combustível a ser utilizada é o sulfato de uranila, com um enriquecimento de ^{235}U a 19,8%, concentração de 380 gramas de urânio por litro de solução e uma densidade de $1,4950 \text{ g/cm}^3$ (a $20 \text{ }^\circ\text{C}$). A carga inicial de urânio metálico é de aproximadamente 9500 gramas, das quais 1880 gramas correspondem a ^{235}U . A altura e volume da solução combustível, sem considerar a expansão volumétrica produto da expansão térmica e o volume de bolhas de gás radiolítico, foi 45,2 cm e 25,7 litros respectivamente. No projeto conceitual de AHR baseado no reator ARGUS a carga inicial de urânio metálico, volume e altura da solução combustível serão variados tendo em consideração a inserção de novos tubos helicoidais e o efeito de reatividade negativo que provocam. A Tabela 8 resume alguns aspectos do projeto conceitual de AHR após as modificações.

Parâmetro	Valor
Solução combustível	Sulfato de uranila
Concentração de urânio (gU/litro)	380
Diâmetro interno do núcleo (cm)	30,5
Altura do núcleo (cm)	65,6
Volume da solução combustível (litros)	29,5
Altura da solução combustível (cm)	52,9
Carga inicial de urânio metálico (gramas)	10737
Material do recipiente	Aço inoxidável
Material do refletor (radial)	Grafite
Densidade da solução (g/cm^3) (a $20 \text{ }^\circ\text{C}$)	1,4950
Potência térmica (kW)	75 ou 50
Densidade de potência (kWt/litro de solução)	2,54 ou 1,70

Fonte: O Autor (2020).

Equações dependentes da temperatura para as propriedades materiais da solução combustível de sulfato de uranila, como densidade, calor específico, viscosidade dinâmica, condutividade térmica e coeficiente de expansão térmica, foram obtidas usando dados experimentais disponíveis em (LANE, 1962; YOUKER et al., 2014). No Apêndice B resumem-se as equações obtidas. A composição isotópica e outras considerações sobre o urânio, grafite, polietileno com boro e aço inoxidável usados na instalação foram obtidas de (GLOUCHKOV; KHVOSTIONOV, 1997).

3.7.1 Modelo em MCNP6 do projeto conceitual de AHR

Utilizando o código computacional MCNP6 foi desenvolvido um modelo geométrico do projeto conceitual de AHR (Figuras 30 e 31), o qual pode ser modificado para incluir um número maior de tubos helicoidais (Figura 32) e incluir a presença de bolhas de gás radiolítico de vários diâmetros, usando estruturas repetitivas (Figura 33). Na modelagem e simulação do projeto conceitual de AHR, teve-se em consideração várias aproximações, as que estão resumidas abaixo:

1. Uso da biblioteca de dados nucleares ENDF/B-VII.1 avaliadas para 20 °C.
2. Exclusão da modelagem de alguns elementos estruturais na periferia do refletor.
3. A tubulação helicoidal não forma um tubo helicoidal contínuo.
4. Distribuição uniforme das bolhas de gás radiolítico no volume do AHR.

A primeira aproximação resulta do uso de uma biblioteca de dados nucleares avaliadas para 20 °C (293,6 K), que é a mais próxima disponível para o valor da temperatura média relatada no núcleo do AHR, (~80 °C). A segunda aproximação parte do fato de que em GLOUCHKOV; KHVOSTIONOV, (1997) foi determinado que a incidência da exclusão de elementos tais como: as estruturas de suporte, os canais e tubos de resfriamento acima da cobertura do núcleo e as barras de controle suspensas acima da solução é insignificante e sua incidência no K_{eff} é inferior a -0,0005 (0,05%). A terceira aproximação é resultado de não existir um modelo geométrico que permita a geração da geometria dos tubos helicoidais contínuos no código MCNP6. Por isso, eles serão modelados como de 21 toróides independentes os quais foram projetados de forma que contenham a mesma massa de água e aço inoxidável que o tubo helicoidal original. A quarta aproximação considera uma distribuição ordenada e uniforme das bolhas de gás radiolítico no núcleo do AHR. Essa aproximação não é muito relevante tendo em consideração que já foi demonstrado em trabalhos precedentes (PÉREZ, 2015), que desde o ponto de vista da modelação com MCNP,

tanto o tamanho das bolhas de gás radiolítico (em uma faixa de 0,5 a 500 μm), como a forma a qual elas são distribuídas no núcleo (homogeneizadas na solução combustível ou mediante uma representação detalhada) não são relevantes para o resultado final.

Para a representação geométrica detalhada das bolhas de gás radiolítico no núcleo do projeto conceitual de AHR utilizou-se uma estrutura repetitiva. Para isso, determinou-se o número de esferas que garantiam um determinado volume de gás calculado, determinando nesse ponto a fração de empacotamento de bolhas no núcleo. As esferas foram representadas usando uma rede cúbica, esse arranjo foi feito colocando uma bolha dentro de uma célula cúbica a que é utilizada para preencher a parte do núcleo ocupada pela solução combustível. Os parâmetros de controle utilizados na simulação com MCNP6 foram:

Número de histórias por ciclo: 20000

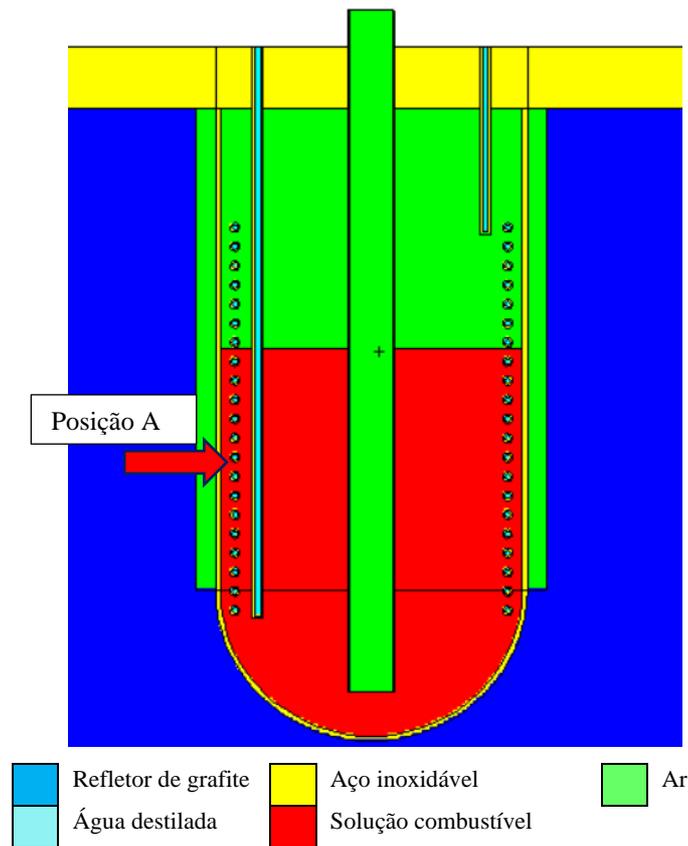
Aproximação inicial para o coeficiente de multiplicação efetivo (K_{eff}): 1,0

Número de ciclos inativos: 50

Número total de ciclos: 1050

Total de histórias: 20000000

Figura 30 – Vista longitudinal do projeto conceitual de AHR no Editor Visual do MCNP



Fonte: O Autor (2020).

Figura 31 – Vista transversal do projeto conceitual de AHR no Editor Visual do MCNP

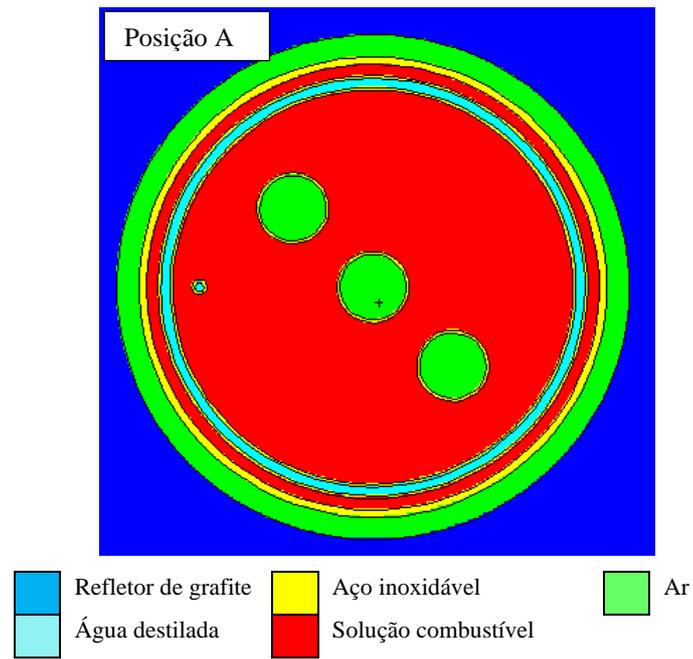


Figura 32 – Vista longitudinal do projeto conceitual de AHR com dois tubos helicoidais no Editor Visual do MCNP

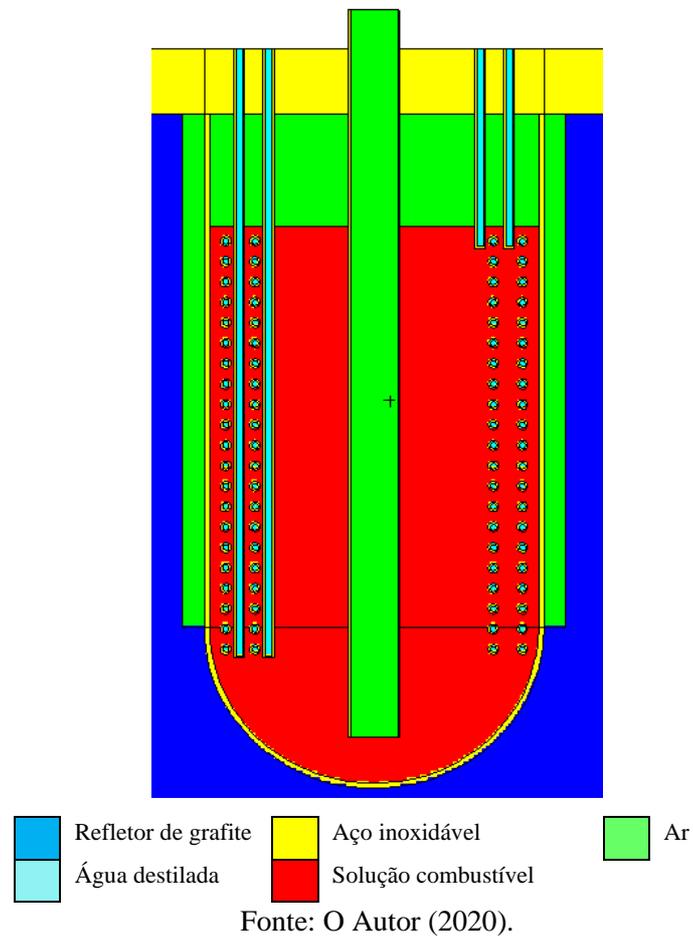
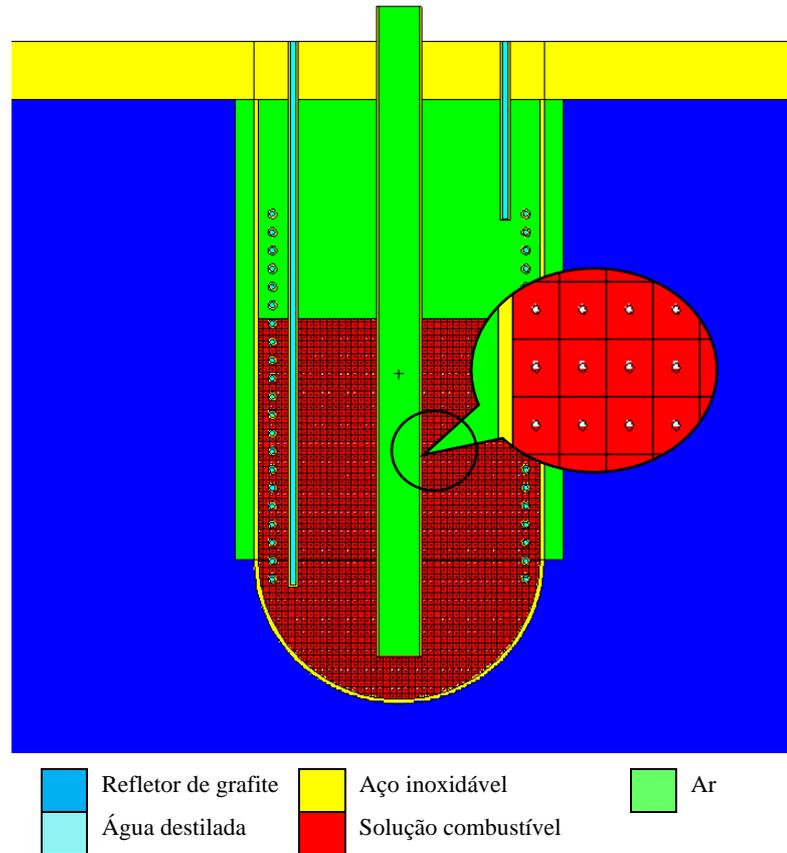


Figura 33 – Vista longitudinal do projeto conceitual de AHR com representação explícita das bolhas de gás radiolítico no Editor Visual do MCNP



3.7.2 Modelo em ANSYS-CFX-19 do projeto conceitual de AHR

Utilizando o módulo ANSYS SpaceClaim foi desenvolvido um modelo geométrico do núcleo de um AHR baseado no reator ARGUS, o qual pode ser modificado para representar os diversos projetos de AHR estudados na pesquisa (quatro correspondentes aos experimentos críticos realizados no Instituto Kurchatov nos anos de 1980-1981, dois correspondentes aos duas configurações de operação normal do reator russo ARGUS e finalmente, o correspondente ao projeto conceitual para a produção de isótopos médicos para suprir a demanda regional projetado nessa pesquisa). Na Figura 34, observa-se o núcleo do projeto conceitual de AHR para suprir a demanda regional desenvolvido no módulo ANSYS SpaceClaim e na Figura 35 o projeto após a renderização com a ferramenta Keyshot 6. Como pode-se observar nas Figuras 34 e 35, dois tubos helicoidais foram localizados na periferia do núcleo próximo à parede do vaso. O novo tubo helicoidal tem como objetivo contribuir para a refrigeração da solução combustível, tendo em consideração o aumento na potência térmica do projeto. A Figura 36, demonstra uma imagem da malha da solução combustível do núcleo

do projeto conceitual de AHR usando o módulo ANSYS Meshing. O número total de nodos e elementos gerados na malha do projeto conceitual foram de aproximadamente 8,3 milhões de nodos e 29,8 milhões de elementos. Nos diversos projetos de AHR estudados na pesquisa, as características da malha foram selecionadas para garantir um equilíbrio adequado entre a qualidade da malha e a carga computacional. A qualidade da malha foi verificada para garantir que os parâmetros críticos, como Skewness e Orthogonal Quality, estejam dentro dos limites recomendados (ANSYS TEAM, 2019).

Figura 34 – Núcleo do projeto conceitual de AHR para suprir a demanda regional desenvolvido no módulo ANSYS SpaceClaim



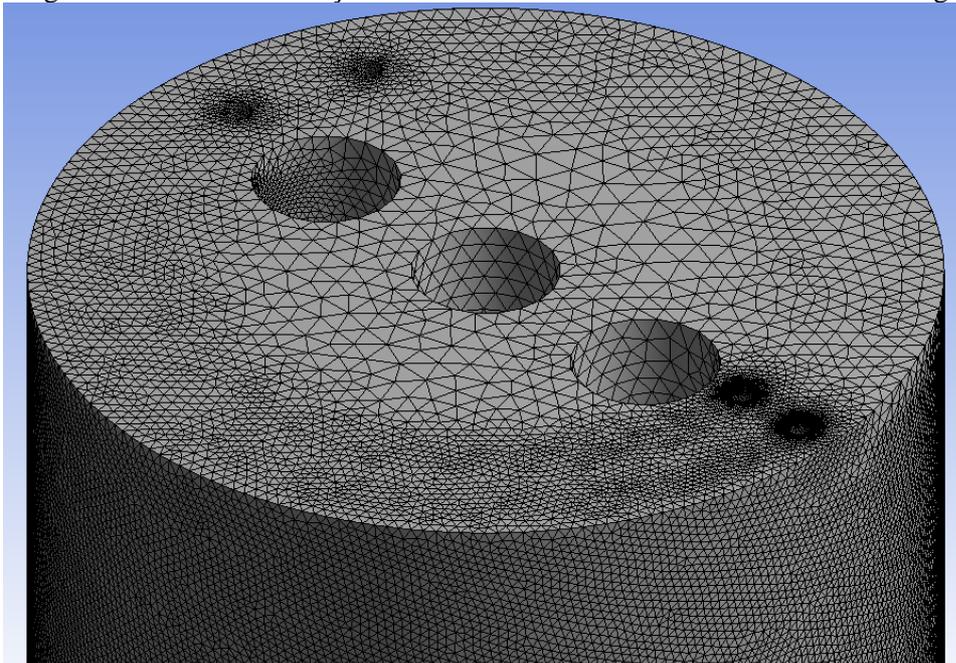
Fonte: O Autor (2020).

Figura 35 – Renderização do núcleo do projeto conceitual de AHR para suprir a demanda regional na ferramenta Keyshot 6



Fonte: O Autor (2020).

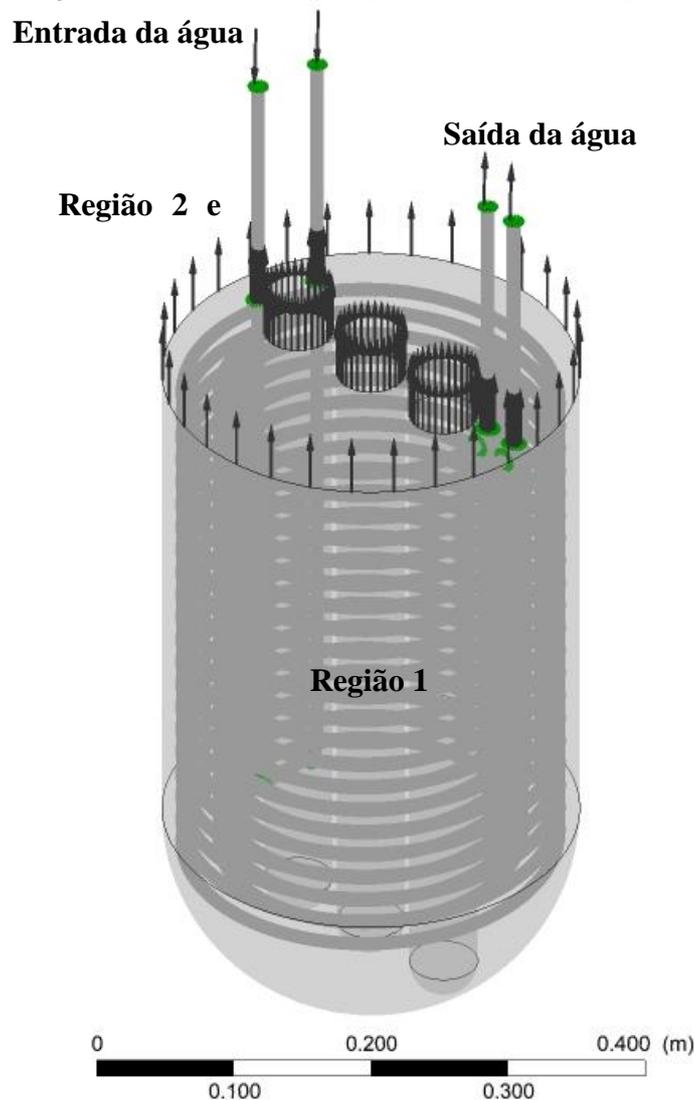
Figura 36 – Malha da solução combustível usando o módulo ANSYS Meshing



Fonte: O Autor (2020).

Uma vez que, os modelos geométricos desenvolvidos foram malhados, passou-se a trabalhar no módulo ANSYS CFX-19-Pre para a definição dos domínios, materiais, condições de contorno, parâmetros de convergência da solução numérica e modelos físicos, numéricos, de turbulência e de multifase. O processo de seleção desses modelos já foi discutido em detalhe na secção 3.6.5. As diferentes regiões que compõem o núcleo do projeto conceitual de AHR são mostradas na Figura 37. A região 1, localizada na zona inferior do reator, contém a solução combustível. A região 2, localizada dentro da região 1, é formada pelos tubos helicoidais de aço inoxidável. A região 3, localizada dentro da região 2, é a água de refrigeração que flui pelos tubos helicoidais de aço inoxidável.

Figura 37 – Regiões de interesse que compõem o núcleo do projeto conceitual de AHR



Fonte: O Autor (2020).

A temperatura e o fluxo volumétrico de entrada da água de refrigeração (25 °C e 0,3 m³/h, respectivamente no projeto original), foram os parâmetros que variaram em conjunto com o aumento da quantidade de tubos helicoidais para garantir que a temperatura da solução combustível seja mantida em todo momento abaixo do limite de segurança fixado (90 °C).

3.8 CONCLUSÕES DO CAPÍTULO

1. As soluções combustíveis desempenham um papel fundamental na concepção, construção, operação e segurança do AHR. Foi selecionada uma solução combustível de sulfato de uranila para o projeto conceitual de AHR tendo em consideração: (1) existência de uma considerável experiência de funcionamento durante décadas, (2) considerável quantidade de estudos e resultados experimentais em anos recentes, (3) produção de apenas hidrogênio e oxigênio a partir da decomposição radiolítica e (4) a operação bem-sucedida do reator ARGUS, sistema no qual se baseia nosso projeto conceitual.

2. Um AHR de 100 kWt, utilizando ciclos de operação de 5 dias satisfaz a demanda de ⁹⁹Mo relatada para o atual mercado brasileiro (~475 seis dias Curie por semana de ⁹⁹Mo). No entanto, quando se levam em conta as previsões de crescimento de 8% ao ano, seria atraente aumentar a produção a cerca de 700 seis dias Curie por semana de ⁹⁹Mo (estimativa da demanda para 2025), o que implica uma potência térmica do projeto conceitual de AHR de aproximadamente 150 kWt.

3. Uma característica distintiva dos AHRs é a decomposição radiolítica da água na solução combustível, produzindo nesse processo bolhas de gás, compostas principalmente por hidrogênio e oxigênio. Foram identificados e discutidos modelos no estado da arte para avaliar a produção e o diâmetro das bolhas de gás.

4. Propõe-se na concepção do sistema de remoção de calor do projeto conceitual de AHR a utilização de tubos helicoidais localizados no interior do núcleo do reator, semelhante ao utilizado no reator ARGUS. A quantidade de tubos helicoidais, sua localização no interior do núcleo e a taxa de fluxo de líquido de refrigeração são alguns dos aspectos a serem avaliados para garantir que a temperatura da solução combustível seja mantida, em todos os momentos, abaixo de 90 °C.

5. Foi descrita e discutida a metodologia computacional para o estudo das características físico-neutrônicas e termoidráulicas do núcleo do projeto conceitual de AHR. A metodologia computacional pode ser descrita como um processo iterativo que inclui avançados modelos e códigos de computador, que permitirão o intercâmbio de informações e dados entre si para

atingir um nível suficiente de detalhe e precisão sem precedentes nos estudos desse tipo de reatores de combustível líquido para a produção de radioisótopos médicos. Os códigos computacionais MCNP6 e ANSYS CFX-19 constituem as principais ferramentas de cálculo. Um sistema de códigos computacionais adicionais (desenvolvidos no âmbito da pesquisa) foi usado para o pré-processamento, pós-processamento e intercâmbio de informações e dados entre os códigos principais.

6. Foram definidas as tarefas de testes a serem utilizadas na avaliação da capacidade de previsão dos modelos e metodologia computacional para os estudos físico-neutrônicos e da termoidráulica do núcleo do projeto conceitual de AHR. As tarefas de testes incluem experimentos críticos realizados no Instituto Kurchatov nos anos de 1980-1981 e duas configurações de operação normal do reator russo ARGUS.

4 AVALIAÇÃO DA CAPACIDADE DE PREVISÃO

Nesse capítulo avalia-se a capacidade de previsão da metodologia computacional e dos modelos desenvolvidos para os cálculos físico-neutrônicos e da termoidráulica com MCNP6 e ANSYS CFX-19. Para avaliar a capacidade de previsão da metodologia computacional foram utilizados resultados de duas configurações de operação normal do reator russo ARGUS, o primeiro estado será o reator ARGUS utilizando combustível HEU e o segundo utilizando combustível LEU. A capacidade de previsão dos modelos desenvolvidos para cálculos físico-neutrônicos e da termoidráulica foi examinada através da resolução de um benchmark baseado em experimentos críticos realizados no Instituto Kurchatov nos anos de 1980-1981.

4.1 CAPACIDADE DE PREVISÃO DOS MODELOS DESENVOLVIDOS

Como foi descrito na secção 3.7, os cálculos realizados na atualidade sobre novos projetos conceituais de AHR para a produção de isótopos médicos utilizam códigos computacionais amplamente utilizados e validados para os reatores nucleares heterogêneos e de combustíveis sólidos. Por isso, a aplicação desses códigos para os AHR, em que o núcleo é homogêneo e o combustível é uma solução líquida, precisa de validação extensa para demonstrar a capacidade de previsão dos complexos processos físico-neutrônicos e da termoidráulica presentes nos AHR.

Lamentavelmente, foi identificado que a base experimental disponível, especialmente, para a operação de reatores com valores de densidade de potência superiores a 1 kWt/litro é muito limitada. Consequentemente, realizar rigorosos estudos de validação é praticamente impossível e apenas estudos comparativos para avaliar a capacidade de previsão das faixas de operação reportadas na literatura científica podem ser realizados. Será precisamente esse tipo de estudo comparativo o que será feito com o objetivo de avaliar a capacidade dos modelos desenvolvidos para predizer de forma aceitável os estados críticos e distribuições de temperatura de soluções combustíveis em AHR

A capacidade de previsão dos modelos desenvolvidos para os cálculos físico-neutrônicos com MCNP6 foi examinada através da resolução de um benchmark baseado em experimentos críticos realizados no Instituto Kurchatov nos anos de 1980-1981. Foram estudadas quatro configurações do núcleo, para as quais o estado crítico ($K_{eff} = 1,0000$) foi determinado com uma precisão relativamente elevada, dado que a incerteza experimental

estimada para K_{eff} foi $0,0050 \pm (0,5\%)$ (GLOUCHKOV; KHVOSTIONOV, 1997). Os resultados dos cálculos obtidos na presente investigação com o MCNP6 e os relatados por outros autores (GLOUCHKOV; KHVOSTIONOV, 1997) usando o código MCU (MCU TEAM, 1982) para as quatro configurações são demonstrados na Tabela 9. Como pode ser observado na Tabela 9, os resultados obtidos com MCNP6 podem ser qualificados como aceitáveis. Em três das quatro configurações, os resultados obtidos com o código MCNP6 estão mais próximos do valor experimental ($K_{eff} = 1,0000$) do que os obtidos com o código MCU em (GLOUCHKOV; KHVOSTIONOV, 1997). Os resultados das configurações 1 e 4 estão dentro da faixa de incerteza experimental estimada para o K_{eff} ($0,0050 \pm (0,5\%)$), enquanto nas configurações 2 e 3 os valores de K_{eff} obtidos diferem do experimental em 1,5% e 2,4%, respectivamente.

Tabela 9 – Resultado dos cálculos com os códigos MCNP6 e MCU

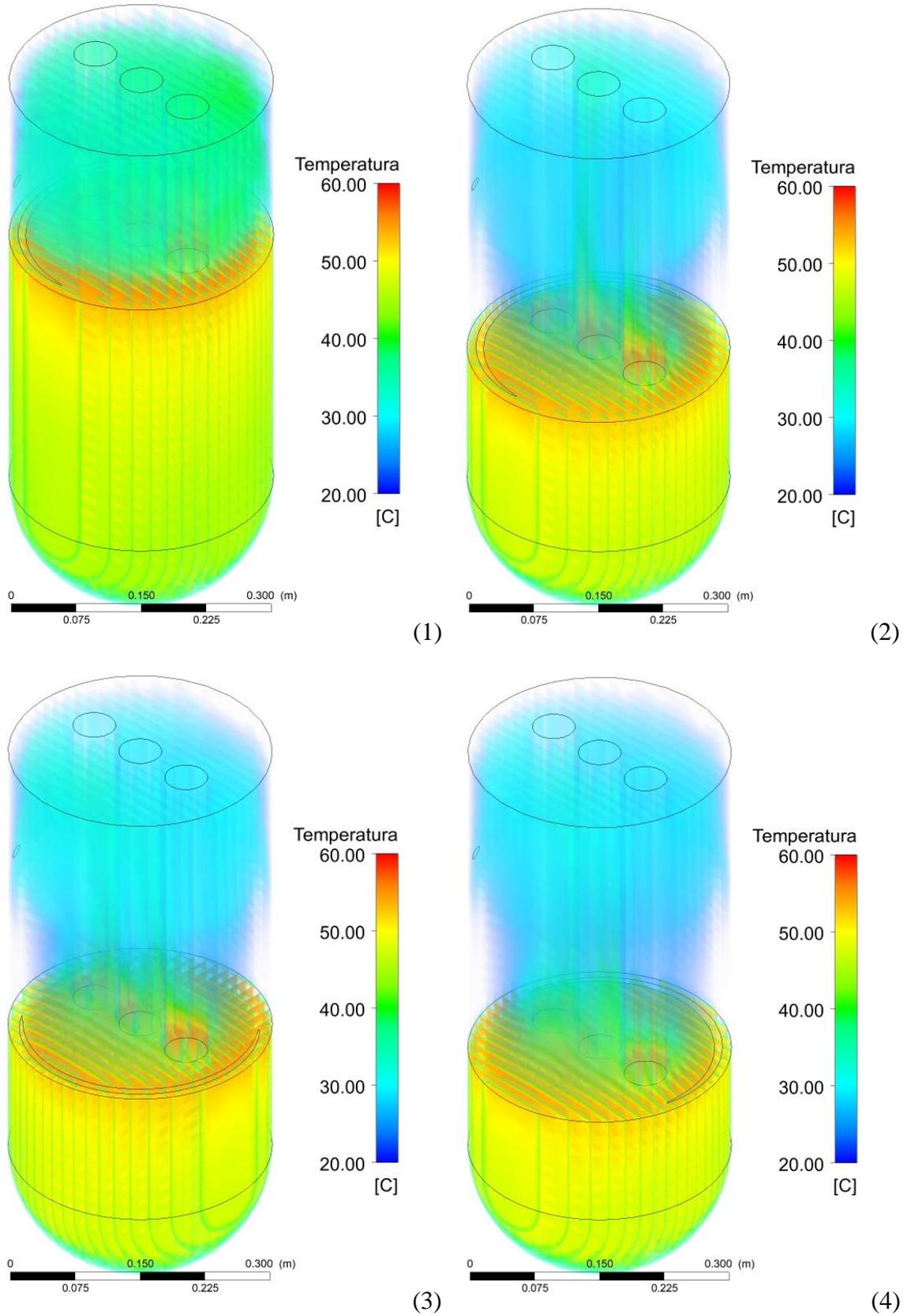
Configuração	MCNP6	MCU
Experimental	$K_{eff} \pm$ desvio padrão	$K_{eff} \pm$ desvio padrão
1	$1,00071 \pm 0,00014$	$0,9855 \pm 0,0013$
2	$0,98523 \pm 0,00014$	$0,9807 \pm 0,0013$
3	$0,97631 \pm 0,00014$	$0,9777 \pm 0,0013$
4	$1,00490 \pm 0,00014$	$0,9735 \pm 0,0014$

Fonte: O Autor (2020).

A capacidade de previsão dos modelos desenvolvidos para os cálculos termoidráulicos com ANSYS CFX-19 foi examinada através da comparação das distribuições de temperatura obtidas a partir da modelação e simulação do reator ARGUS com os dados experimentais, os quais reportam que a temperatura da solução combustível está no intervalo de 30-65 °C (CHUVILIN et al., 2005). Os cálculos foram feitos para as soluções de combustível correspondentes às quatro configurações já estudadas.

A Tabela 10 demonstra os resultados dos cálculos das temperaturas mínima, máxima e média obtidos com o ANSYS CFX-19 para as quatro configurações do núcleo e na Figura 38 (1, 2, 3, 4) as distribuições volumétricas de temperatura. As distribuições de temperatura calculadas com ANSYS CFX-19 para as quatro configurações do núcleo do reator ARGUS estão na faixa de temperatura reportada na literatura científica (CHUVILIN et al., 2005).

Figura 38 – Distribuições volumétricas de temperatura das quatro configurações experimentais



Fonte: O Autor (2020).

Tabela 10 – Temperaturas nas quatro configurações experimentais

Configuração Experimental	Temperatura Mínima (°C)	Temperatura Máxima (°C)	Temperatura Média (°C)
1	39,65	55,73	48,41
2	41,13	55,35	49,31
3	39,98	55,19	49,68
4	41,57	54,59	49,71

Fonte: O Autor (2020).

Em resumo, pode-se afirmar que os modelos desenvolvidos para os cálculos físico-neutrônicos e da termoidráulica com MCNP6 e ANSYS CFX-19 predizem de forma aceitável os estados críticos e as distribuições de temperatura das soluções combustíveis em AHR.

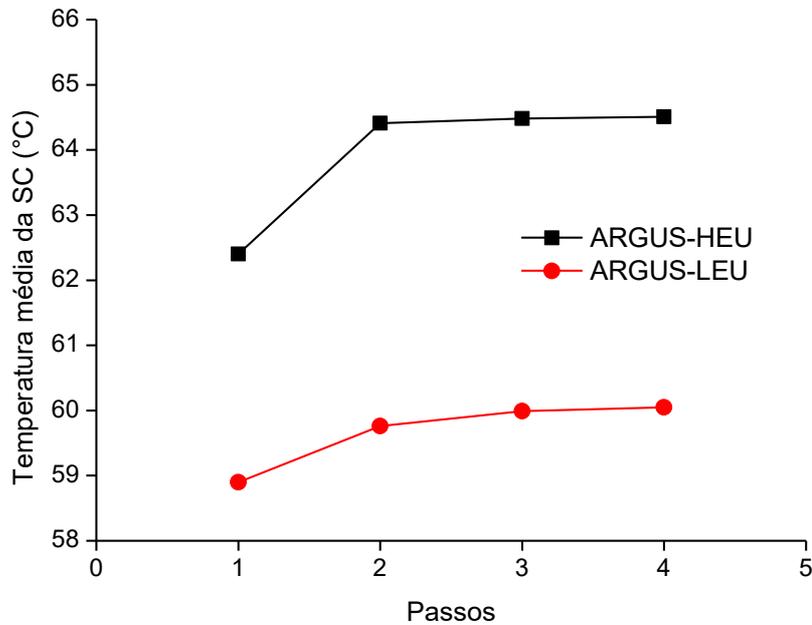
4.2 CAPACIDADE DE PREVISÃO DA METODOLOGIA COMPUTACIONAL

Para avaliar a capacidade de previsão da metodologia computacional foram estudadas duas configurações de operação normal do reator russo ARGUS. Na primeira configuração, o reator ARGUS utiliza a solução combustível de HEU com a qual trabalhou durante muitos anos até sua conversão em 2014. Na segunda configuração, o reator ARGUS utiliza a solução combustível de LEU com a qual trabalha atualmente. No estudo das duas configurações de operação normal do reator russo ARGUS dois objetivos serão cumpridos. Primeiro, a avaliação da capacidade da metodologia computacional para prever os estados de operação (comparação com valores de temperaturas reportados). Segundo, demonstrar como a metodologia computacional permite obter resultados com um nível de detalhe e precisão superior aos obtidos através de simulações físico-neutrônicas e termoidráulicas separadamente.

Foi implementado o cálculo acoplado iterativo contemplado na metodologia computacional, tal e como foi descrito na secção 3.6. Foi estudada ao final de cada passo de cálculo termoidráulico a convergência dos parâmetros de interesse (temperatura média, velocidade média da solução combustível e das bolhas de gás e fração volumétrica de gás na solução combustível), definidos como critério de parada do processo iterativo entre os códigos físico-neutrônico e da termoidráulica. As Figuras 39, 40, 41 e 42 mostram a evolução desses parâmetros de interesse com os passos de cálculo iterativo, para as duas configurações de operação do reator ARGUS. Pode-se observar que a convergência dos parâmetros de

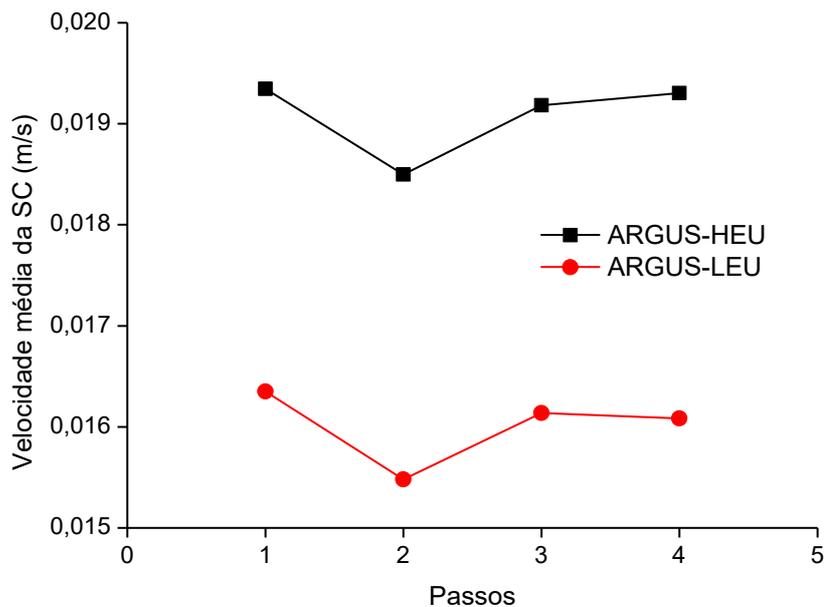
interesse (diferença relativa entre os parâmetros ser menor ou igual a 1%) é alcançada após quatro passos de cálculo com exceção do parâmetro da temperatura média da solução combustível que converge após três passos.

Figura 39 – Variação da temperatura média da solução combustível para as duas configurações de operação do reator ARGUS



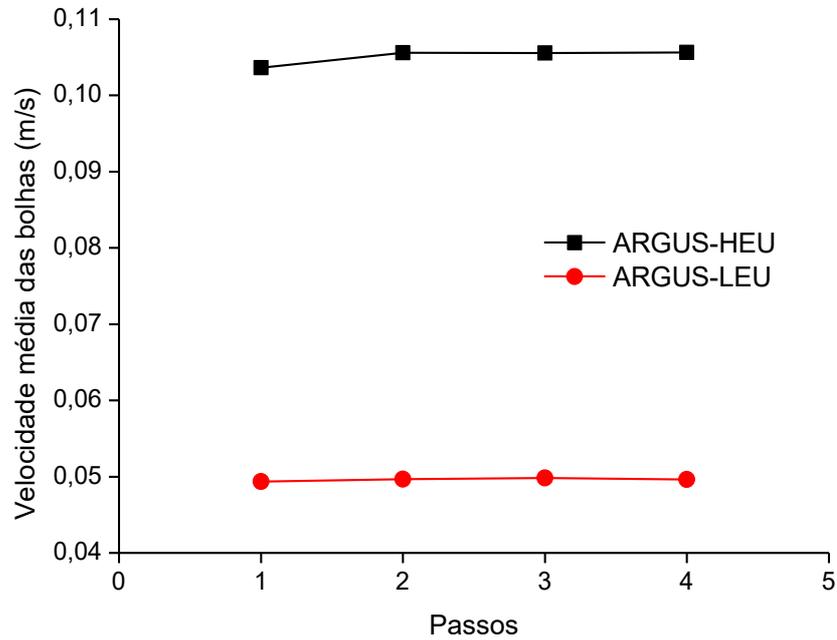
Fonte: O Autor (2020).

Figura 40 – Variação da velocidade média da solução combustível para as duas configurações de operação do reator ARGUS



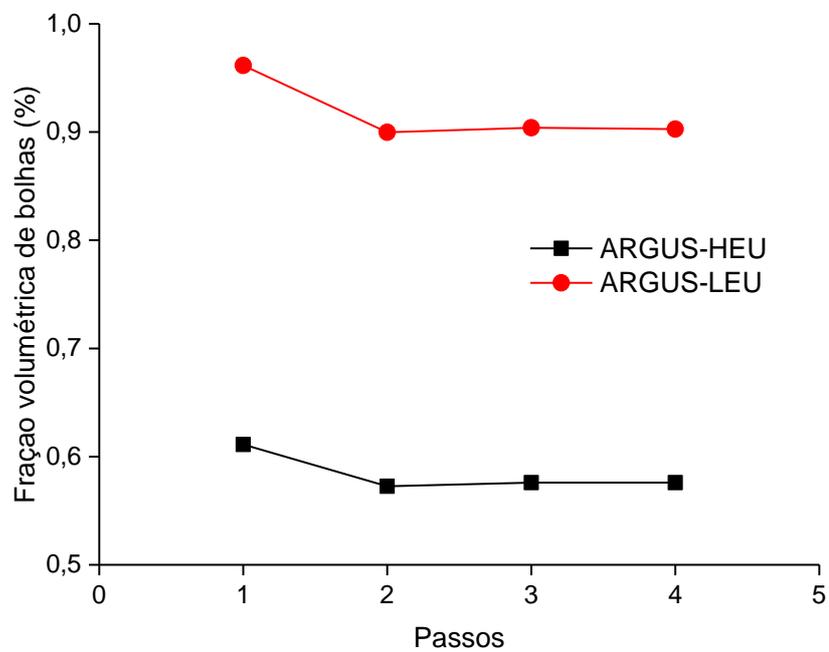
Fonte: O Autor (2020).

Figura 41 – Variação da velocidade média das bolhas de gás radiolítico para as duas configurações de operação do reator ARGUS



Fonte: O Autor (2020).

Figura 42 – Variação da fração volumétrica de gás na solução combustível para as duas configurações de operação do reator ARGUS



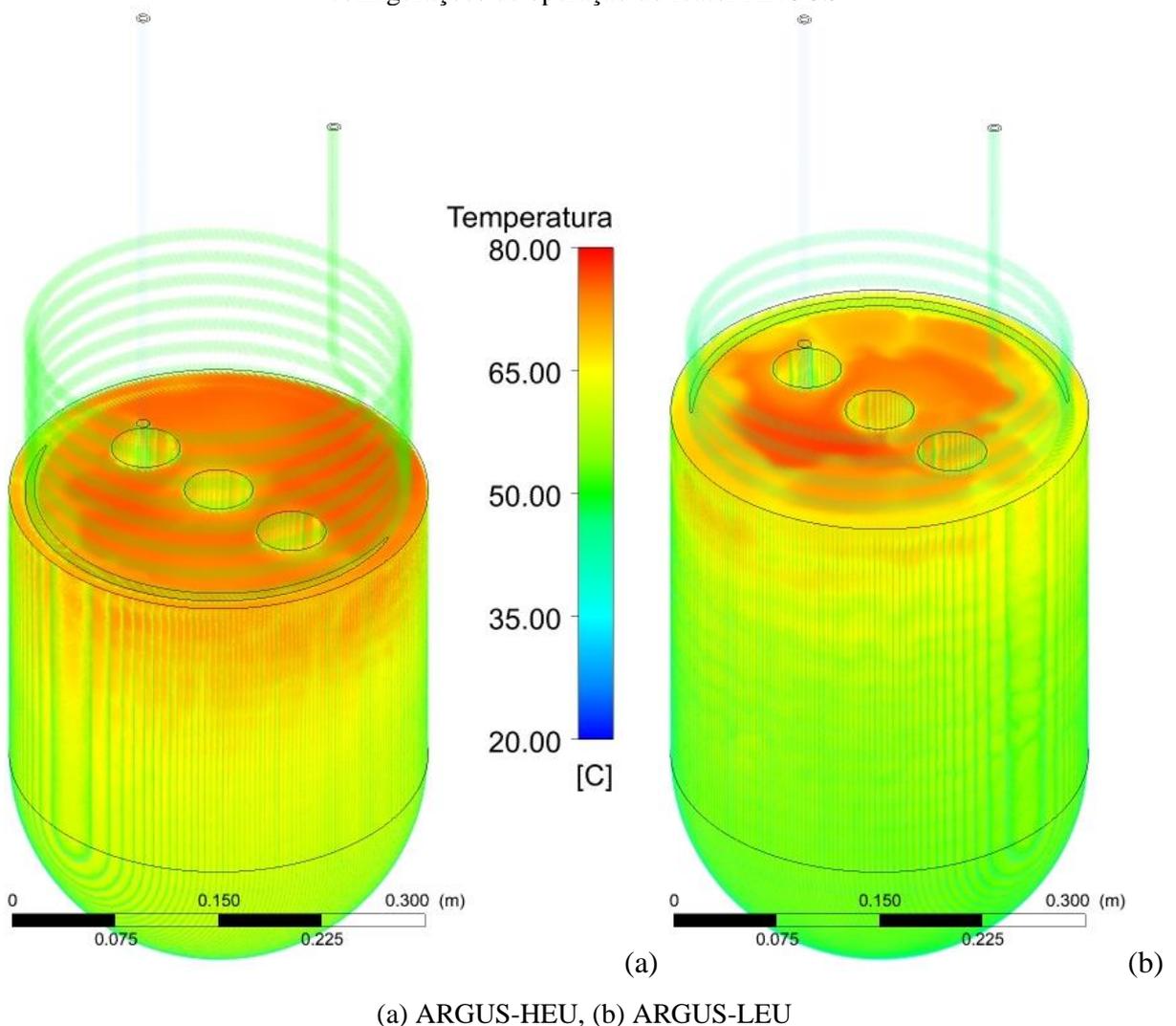
Fonte: O Autor (2020).

É notável a diferença entre os valores obtidos no primeiro passo (equivalentes a um cálculo independente e não acoplado) e os valores “convergidos” após o quarto passo. O que

contribuiu para demonstrar como a metodologia computacional prevê resultados com um nível de detalhes e precisão superior aos obtidos através de simulações físico-neutrônicas e termoidráulicas, separadamente.

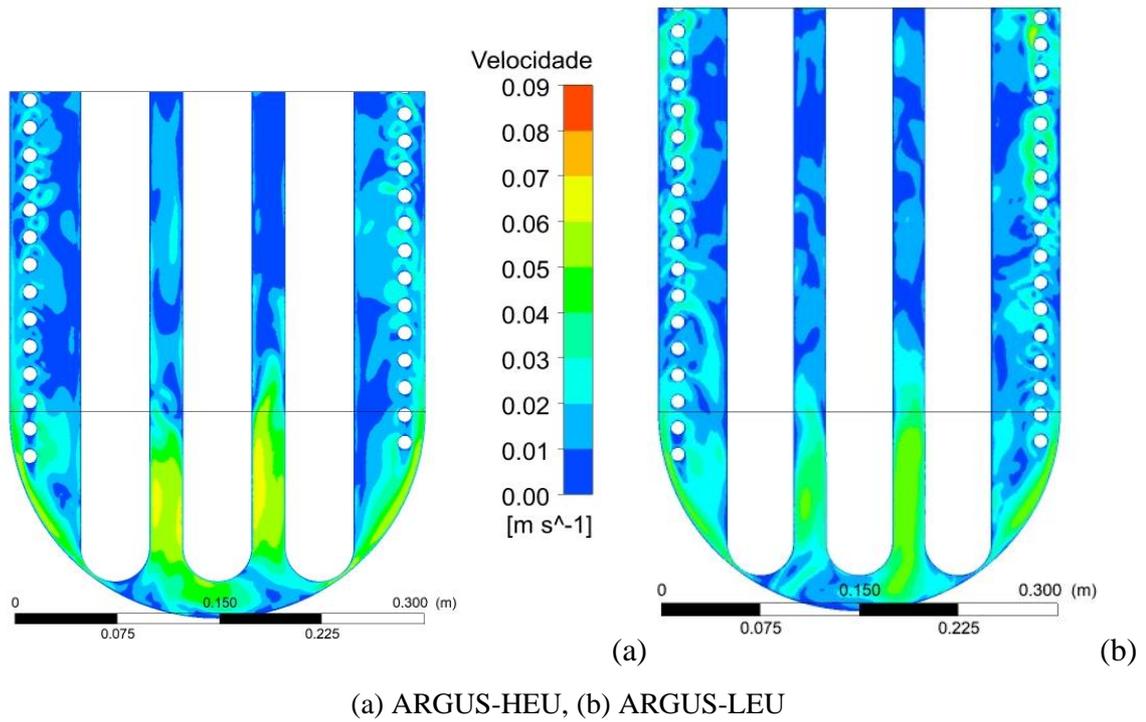
A Figura 43 demonstra as distribuições volumétricas de temperatura da solução combustível, as Figuras 44 e 45 os perfis de velocidade da solução combustível e das bolhas de gás radiolítico e a Figura 46 as distribuições volumétricas da fração volumétrica de gás na solução combustível para as duas configurações de operação do reator ARGUS. Os valores obtidos para a temperatura da solução combustível e a temperatura de saída da água de refrigeração se encontram na faixa de temperaturas reportadas na literatura científica para esses sistemas, na Tabela 11 esses valores são resumidos.

Figura 43 – Distribuições volumétricas de temperatura da solução combustível para as duas configurações de operação do reator ARGUS



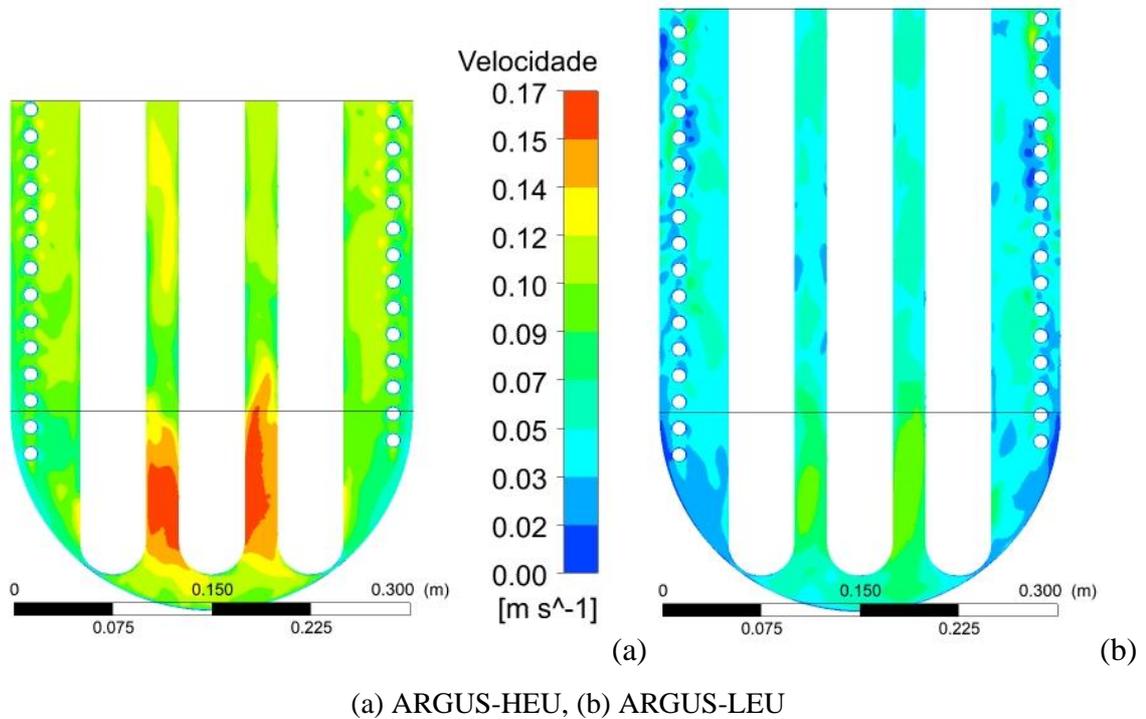
Fonte: O Autor (2020).

Figura 44 – Vista longitudinal dos perfis de velocidade da solução combustível para as duas configurações de operação do reator ARGUS



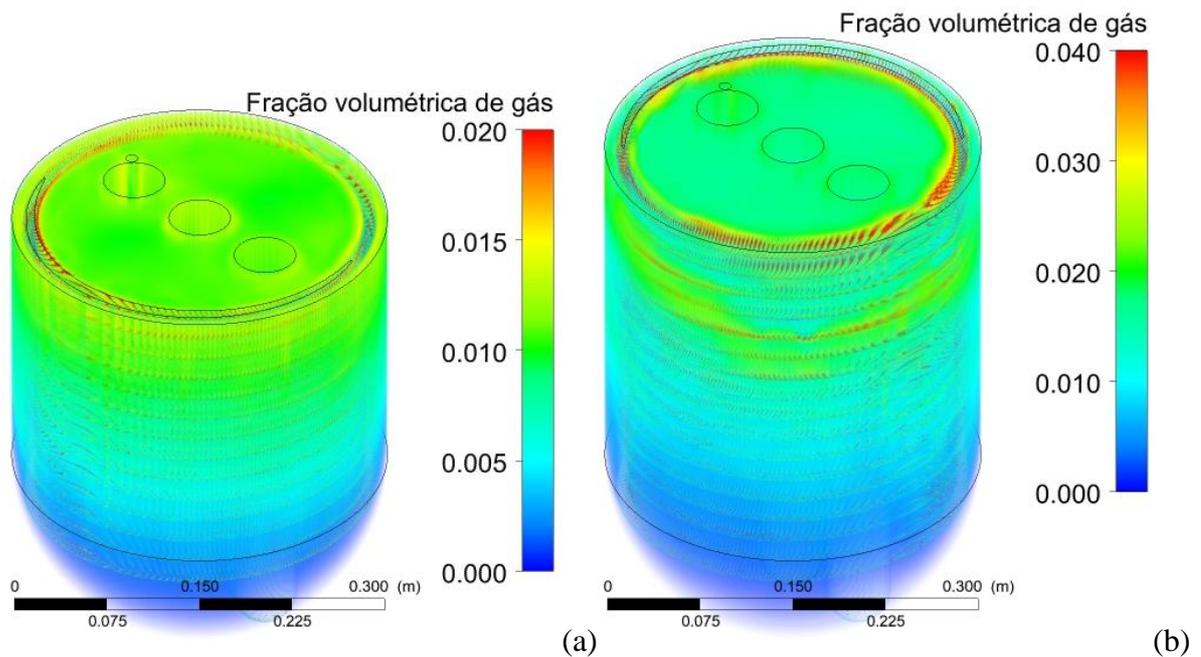
Fonte: O Autor (2020).

Figura 45 – Vista longitudinal dos perfis de velocidade das bolhas de gás radiolítico para as duas configurações de operação do reator ARGUS



Fonte: O Autor (2020).

Figura 46 – Distribuições volumétricas da fração volumétrica de gás na solução combustível para as duas configurações de operação do reator ARGUS



(a) ARGUS-HEU, (b) ARGUS-LEU

Fonte: O Autor (2020).

Tabela 11 – Temperaturas nas duas configurações de operação do reator ARGUS

Parâmetro (°C)	ARGUS-HEU	ARGUS-LEU
Temperatura média da solução combustível	64,51	60,05
Temperatura máxima da solução combustível	76,46	77,31
Temperatura média da água de refrigeração	42,36	38,11
Temperatura de saída da água de refrigeração	53,41	49,10

Fonte: O Autor (2020).

4.3 CONCLUSÕES DO CAPÍTULO

1. Os cálculos realizados, atualmente, sobre novos projetos conceituais de AHR para a produção de isótopos médicos utilizam códigos computacionais amplamente utilizados e validados para os reatores nucleares heterogêneo e de combustíveis sólidos. Portanto,

precisam de validação extensa para demonstrar a capacidade de previsão dos complexos processos físico-neutrônicos e da termoidráulica que acontecem nos AHR, onde o núcleo é homogêneo e o combustível é uma solução líquida.

2. A capacidade de previsão da metodologia computacional e dos modelos desenvolvidos para os cálculos físico-neutrônicos e da termoidráulica com MCNP6 e ANSYS CFX-19 foi avaliada utilizando resultados de duas configurações de operação normal do reator russo ARGUS e um benchmark baseado em experimentos críticos realizados no Instituto Kurchatov nos anos de 1980-1981.

3. Os modelos desenvolvidos para os cálculos físico-neutrônicos e da termoidráulica com MCNP6 e ANSYS CFX-19 predizem de forma aceitável os estados críticos e as distribuições de temperatura das soluções combustíveis em AHR a partir da comparação dos resultados obtidos com os disponíveis na literatura científica.

4. Os parâmetros de interesse para avaliar a convergência dos resultados da metodologia computacional convergem com diferenças relativas menores que 1% após quatro passos de cálculo. Os valores de temperatura da solução combustível e da água de refrigeração se encontram na faixa de temperaturas reportadas na literatura científica para esses sistemas.

5. É notável a diferença entre os valores obtidos no primeiro passo (equivalentes a um cálculo independente e não acoplado) e os valores “convergidos” após quatro passos. O que contribui para demonstrar como a metodologia computacional prevê resultados com um nível de detalhes e precisão superior aos obtidos através de simulações físico-neutrônicas e termoidráulicas, separadamente.

5 RESULTADOS E DISCUSSÃO

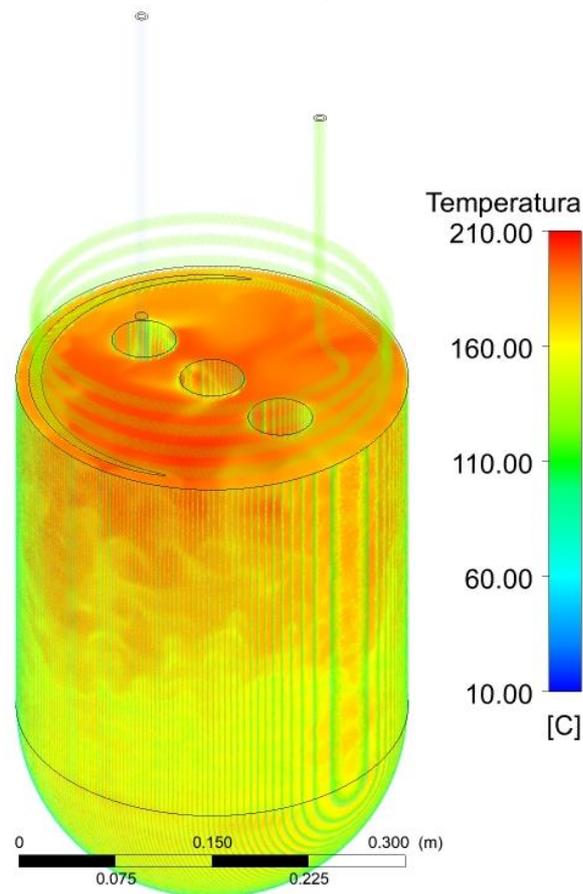
Nesse capítulo, são apresentados e discutidos os resultados da simulação computacional termoidráulica e físico-neutrônica do projeto conceitual de AHR baseado no reator ARGUS para a produção de isótopos médicos que responda à demanda regional utilizando a metodologia computacional. A projeção do novo sistema de remoção de calor, após o aumento da potência térmica do reator, foi o primeiro dos assuntos levados em consideração. Após esse passo inicial foi aplicada a metodologia computacional apresentada e descrita no Capítulo 3 e a sua capacidade de previsão avaliada no Capítulo 4, com o objetivo de estudar as características físico-neutrônicas e termoidráulicas do núcleo do projeto conceitual de AHR num estado de operação estável. Foram obtidos e discutidos parâmetros físico-neutrônicos e termoidráulicos de interesse, tais como distribuições de temperatura, velocidade, fração volumétrica de bolhas de gás, dependência do K_{eff} com a queima do combustível nuclear, consumo de urânio, produção de plutônio e isótopos médicos, os efeitos da reatividade causados pela expansão volumétrica do combustível, entre outros parâmetros.

5.1 PROJEÇÃO DO NOVO SISTEMA DE REMOÇÃO DE CALOR

Conforme discutido no Capítulo 3, o projeto conceitual de AHR com combustível LEU para a produção de isótopos médicos que responda à estimativa da demanda do mercado brasileiro para 2025 deve ter uma potência térmica de aproximadamente 150 kWt. Um AHR baseado no reator ARGUS, com potência térmica de 150 kWt, teria uma densidade de potência superior a 5 kWt/litro. Embora, nesses níveis de densidade de potência a solução combustível é muito instável e propensa a ferver. Por isso, uma opção viável seria o uso de dois AHR de 75 kWt ou três AHR de 50 kWt, para os quais a densidade de potência é muito menor. Mesmo assim, o projeto conceitual de AHR baseia-se no reator ARGUS, cujo sistema de remoção de calor foi projetado para uma potência térmica de 20 kWt para combustível de HEU e 14 kWt para combustível de LEU, enquanto o projeto conceitual apresentado operaria a uma potência de 50 kWt ou 75 kWt. Diante disso, o primeiro dos estudos termoidráulicos (antes de aplicar a metodologia computacional) foi à projeção de um novo sistema de remoção de calor que garanta a operação segura do núcleo do reator mantendo a temperatura da solução combustível abaixo de 90 °C para evitar a ebulição da água que faz parte da solução combustível. Trabalhos precedentes (PÉREZ, 2015; PÉREZ et al., 2015, 2017a, 2017b) tem estudado e estabelecido as bases de um projeto conceitual de AHR de 75 kWt, por

esse motivo, primeiro se precedeu a estudar essa opção. A distribuição volumétrica de temperatura obtida para o projeto conceitual de AHR de 75 kWt, usando o sistema de remoção de calor do reator ARGUS, é demonstrada na Figura 47. No pós-processamento dos resultados do ANSYS-CFX foi determinado que a temperatura máxima alcançada pela solução combustível é 204,91 °C, enquanto a temperatura média é 178,38 °C. Esses valores de temperatura não cumprem com o critério de temperatura predefinido.

Figura 47 – Distribuição volumétrica de temperatura da solução combustível do projeto conceitual de AHR de 75 kWt



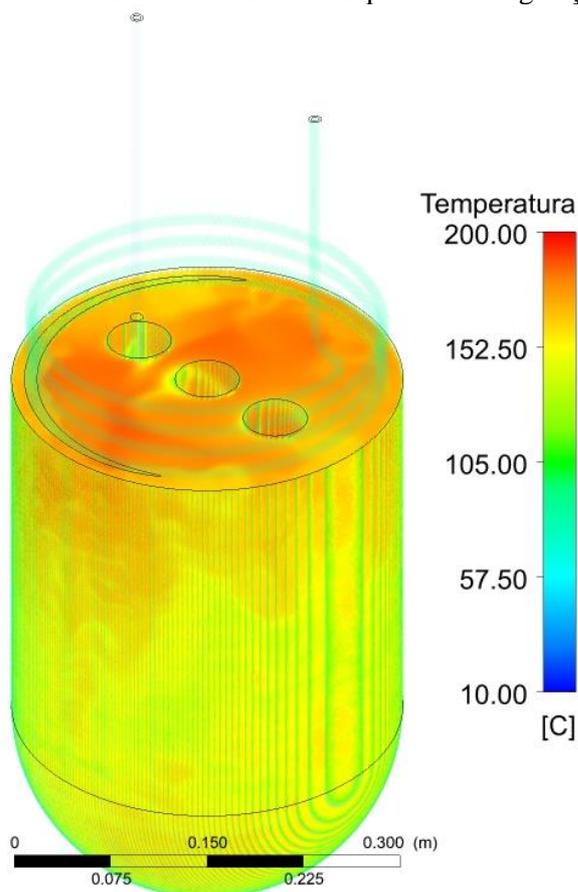
Fonte: O Autor (2020).

Para resolver esse problema, foram implementadas três alternativas ou soluções, relacionadas com o aumento da taxa de fluxo de líquido de refrigeração, a diminuição da temperatura de entrada do líquido de refrigeração e o aumento da área de transferência de calor. Na primeira alternativa, a taxa de fluxo de líquido de refrigeração foi duplicada de 0,3 m³/h para 0,6 m³/h. Na segunda alternativa, a temperatura de entrada do líquido de refrigeração foi diminuída de 25 °C para 10 °C. Na terceira alternativa, foi aumentada a

quantidade de tubos helicoidais no interior do núcleo do reator, os quais aumentaram de um para dois (aumentando a área de transferência de calor em 81,5%).

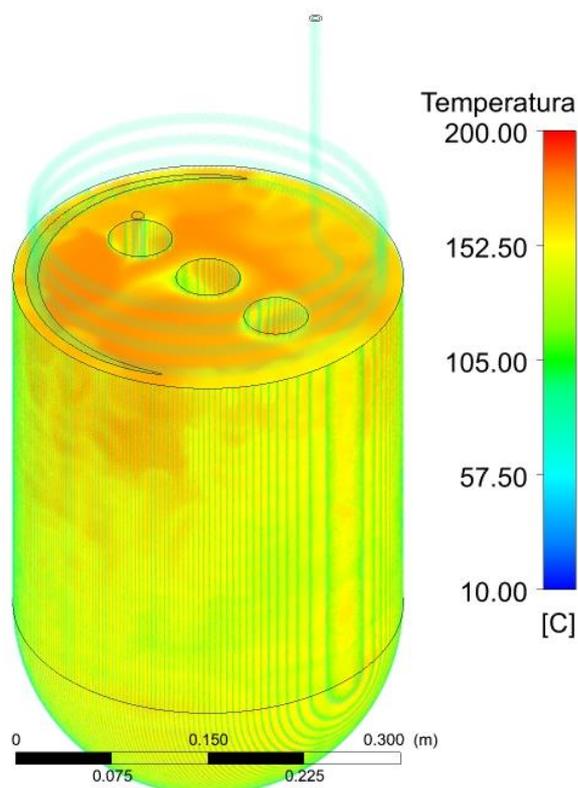
Na Figura 48 é mostrada a distribuição volumétrica de temperatura após duplicar a taxa de fluxo de líquido de refrigeração, o que permitiu uma diminuição da temperatura máxima e média em 15,70 °C e 13,00 °C, respectivamente. A temperatura máxima alcançada pela solução combustível diminuí a 189,21 °C, enquanto a temperatura média diminuí a 165,38 °C, mas esses valores de temperatura ainda são superiores ao critério de temperatura predefinido, o que levou a aplicação da segunda alternativa, na Figura 49 é possível observar a distribuição volumétrica da temperatura usando as duas alternativas discutidas. Como pode ser visto na Figura 49, a temperatura máxima alcançada pela solução combustível diminuí a 188,21 °C, enquanto a temperatura média diminuí a 162,16 °C, resultando em valores de temperatura ainda superiores ao critério de temperatura predefinido.

Figura 48 – Distribuição volumétrica de temperatura da solução combustível do projeto conceitual de AHR de 75 kWt com uma taxa de fluxo de líquido de refrigeração de 0,6 m³/h



Fonte: O Autor (2020).

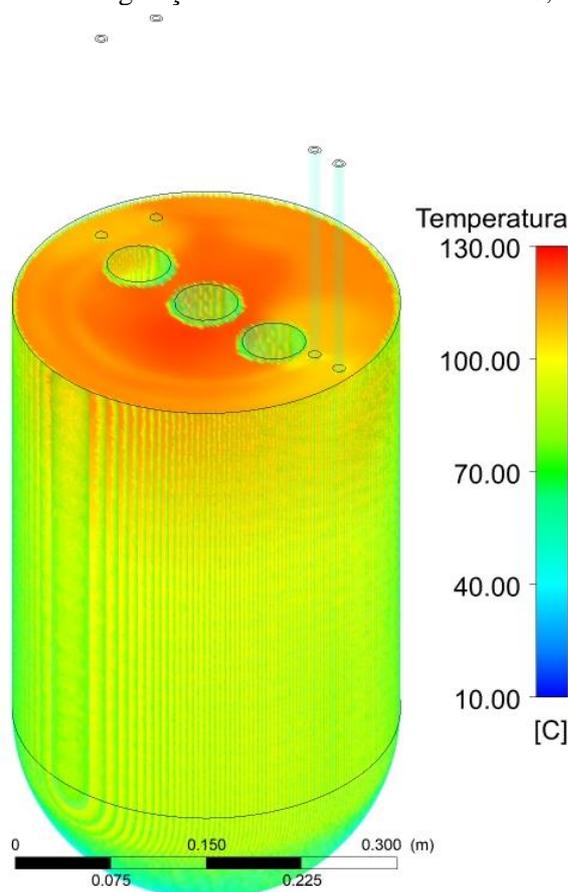
Figura 49 – Distribuição volumétrica de temperatura da solução combustível do projeto conceitual de AHR de 75 kWt com uma taxa de fluxo de líquido de refrigeração de 0,6 m³/h a 10 °C



Fonte: O Autor (2020).

Por isso, foi implementada em conjunto com as duas anteriores, a terceira alternativa. Para esse novo projeto conceitual com dois tubos helicoidais a temperatura máxima e média obtidas, (124,44 °C e 98,65 °C) são ainda superiores ao critério de temperatura predefinido. Na Figura 50 é demonstrada a distribuição volumétrica de temperatura do projeto conceitual de AHR de 75 kWt, usando o sistema de remoção de calor com dois tubos helicoidais pelos quais circula líquido de refrigeração com uma taxa de fluxo de 0,6 m³/h a 10 °C. Uma última tentativa para usar o projeto conceitual de 75 kWt foi realizada mediante o aumento da taxa de fluxo de líquido de refrigeração até 1,0 m³/h. Com essa nova taxa de fluxo de líquido de refrigeração a temperatura máxima e média diminuem a 115,23 °C e 91,35 °C, respectivamente. Tendo em consideração que apesar das tentativas realizadas o projeto conceitual de 75 kWt continua a manter temperaturas superiores aos 90 °C, decidiu-se estudar então o projeto conceitual de 50 kWt.

Figura 50 – Distribuição volumétrica de temperatura da solução combustível do projeto conceitual de AHR de 75 kWt, usando um sistema de remoção de calor com dois tubos helicoidais pelos quais circula líquido de refrigeração com uma taxa de fluxo de 0,6 m³/h a 10 °C



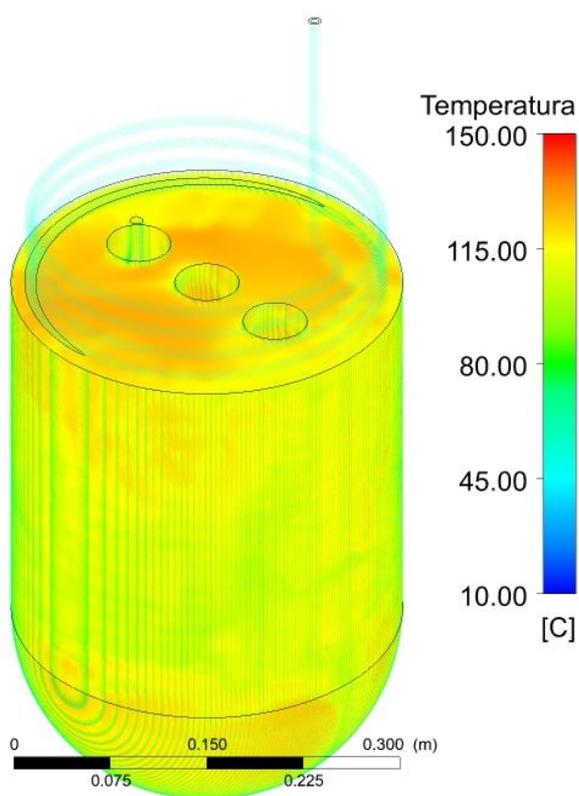
Fonte: O Autor (2020).

Na Figura 51 é apontada a distribuição volumétrica de temperatura do projeto conceitual de AHR de 50 kWt usando o sistema de remoção de calor do reator ARGUS com uma taxa de fluxo de líquido de refrigeração de 0,6 m³/h a 10 °C. A temperatura máxima alcançada pela solução combustível é 141,79 °C, enquanto a temperatura média é 120,81 °C. Esses valores de temperatura não cumprem com o critério de temperatura predefinido. Assim sendo foi aumentada a quantidade de tubos helicoidais usados no núcleo do reator de um para dois. Para esse novo projeto conceitual com dois tubos helicoidais os valores da temperatura máxima e média (98,14 °C e 75,84 °C), são inferiores a temperatura de ebulição da água (100 °C). Embora, o valor máximo é bem próximo a 100 °C, o recomendável é que a temperatura seja inferior aos 90 °C. Diante disso decidiu-se aumentar a taxa de fluxo de líquido de refrigeração de 0,6 m³/h para 1,0 m³/h. Com essa modificação, a temperatura máxima alcançada pela solução combustível diminuí a 89,42 °C (Figura 52). Como a temperatura máxima para essa configuração do projeto conceitual de AHR de 50 kWt é inferior a 90 °C, se

assegura uma faixa de segurança na temperatura de pelo menos 10 °C para evitar a ebulição da água da solução combustível.

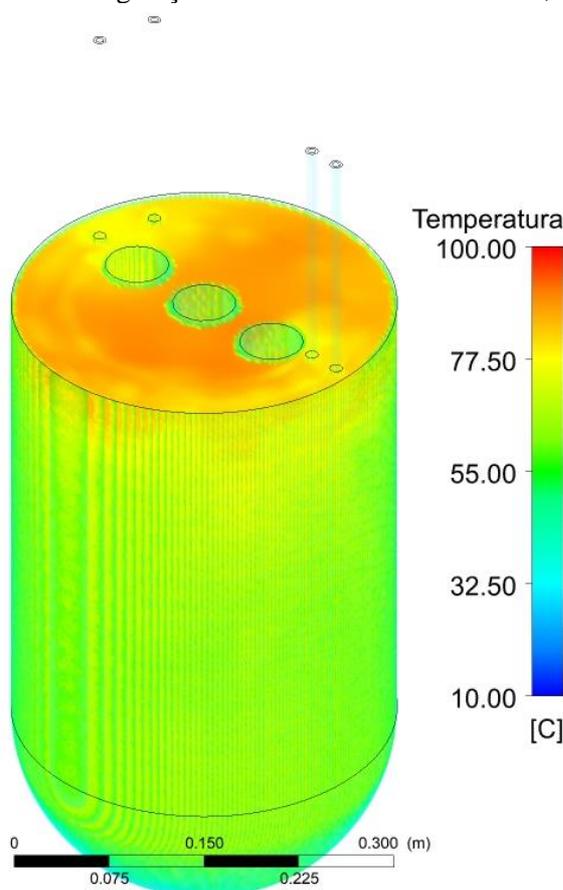
Com a projeção do novo sistema de remoção de calor que permite o aumento da potência térmica do projeto conceitual de AHR para 50 kWt, garantindo a operação segura com a temperatura da solução combustível abaixo de 90 °C, já é possível começar a aplicação da metodologia computacional para estudar as características físico-neutrônicas e termoidráulicas do núcleo do projeto conceitual de AHR num estado de operação estável.

Figura 51 – Distribuição volumétrica de temperatura da solução combustível do projeto conceitual de AHR de 50 kWt com uma taxa de fluxo de líquido de refrigeração de 0,6 m³/h a 10 °C



Fonte: O Autor (2020).

Figura 52 – Distribuição volumétrica de temperatura da solução combustível do projeto conceitual de AHR de 50 kWt, usando um sistema de remoção de calor com dois tubos helicoidais pelos quais circula líquido de refrigeração com uma taxa de fluxo de 1,0 m³/h a 10 °C

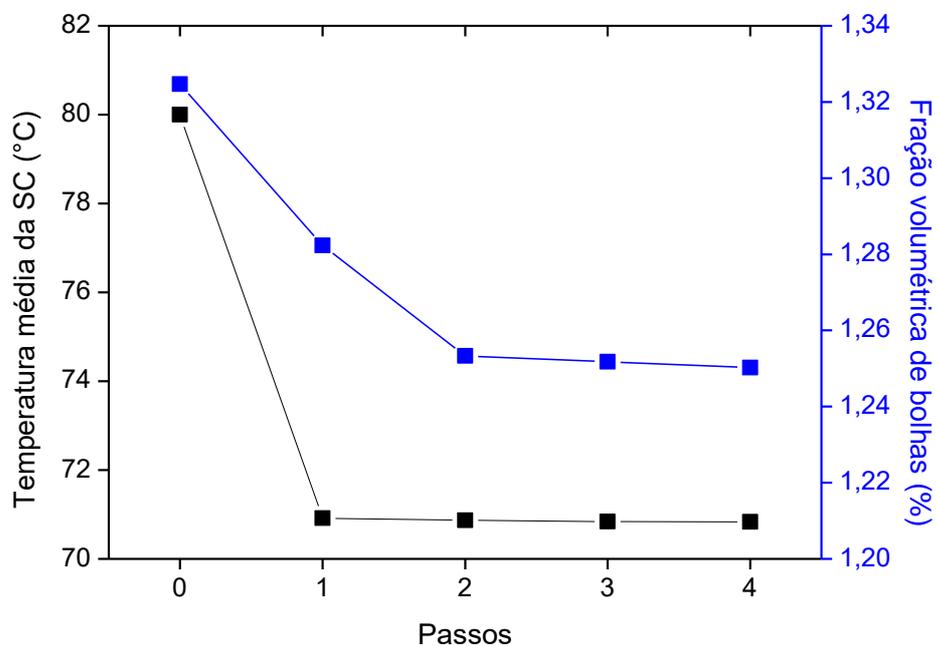


Fonte: O Autor (2020).

5.2 ESTUDO DAS CARACTERÍSTICAS FÍSICO-NEUTRÔNICAS E TERMOIDRÁULICAS

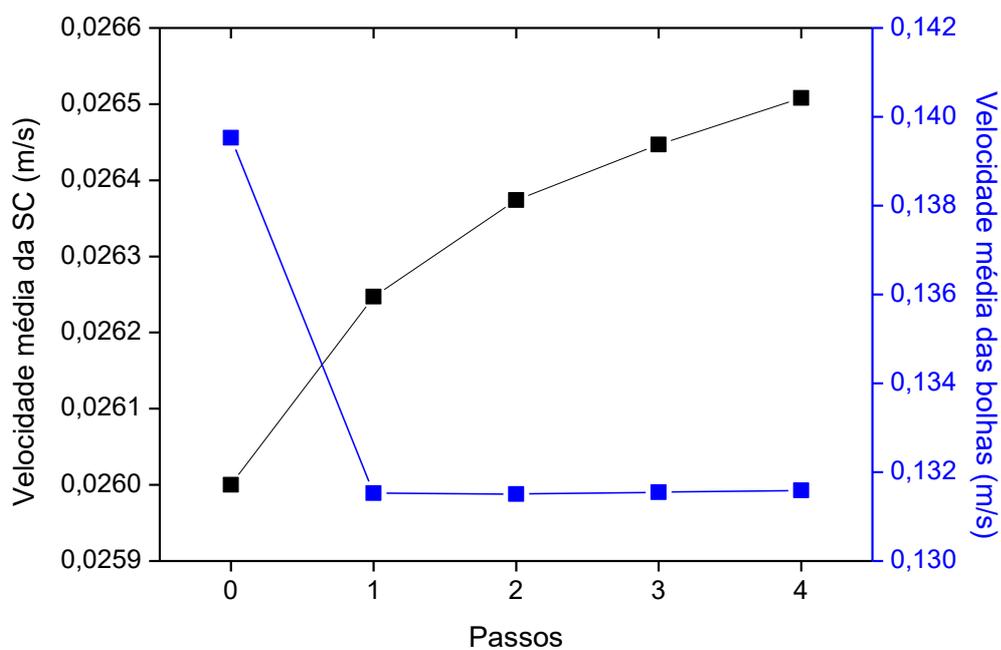
Após a projeção do novo sistema de remoção de calor que permite o aumento da potência térmica do projeto conceitual de AHR para 50 kWt mantendo a temperatura da solução combustível abaixo de 90 °C, já é possível implementar o cálculo acoplado iterativo contemplado na metodologia computacional, tal e como foi descrito na secção 3.6. Foi estudado ao final de cada passo de cálculo termoidráulico a convergência dos parâmetros de interesse (temperatura média, velocidade média da solução combustível e das bolhas de gás e fração volumétrica de gás na solução combustível) definidos como critério de parada do processo iterativo entre os códigos físico-neutrônico e da termoidráulica. As Figuras 53 e 54 demonstram a evolução desses parâmetros de interesse com os passos de cálculo iterativo.

Figura 53 – Variação da temperatura média e da fração volumétrica de gás na solução combustível no projeto conceitual de AHR de 50 kWt



Fonte: O Autor (2020).

Figura 54 – Variação da velocidade média da solução combustível e das bolhas de gás radiolítico no projeto conceitual de AHR de 50 kWt



Fonte: O Autor (2020).

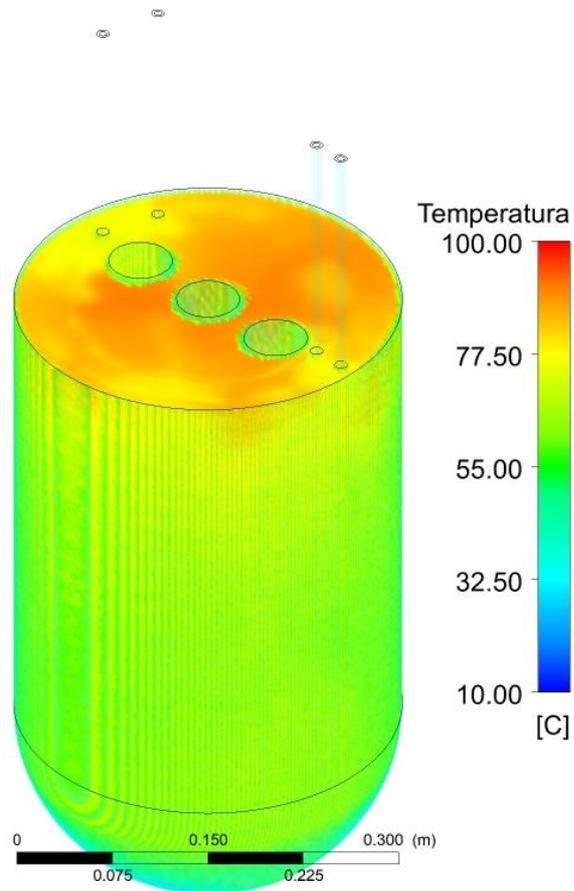
O critério de parada estabelecido para o processo de cálculo iterativo entre os códigos físico-neutrônico e da termoidrúlica (diferença relativa entre os parâmetros ser menor ou igual a 1%) foi alcançado após quatro passos de cálculo. Nos quatro parâmetros estudados foram obtidas diferenças notáveis entre os valores iniciais e os valores “convergidos” após o quarto passo. As diferenças absolutas e relativas obtidas entre eles foram de 9,17 °C (11,46%) para a temperatura média, 0,07% (5,63%) para a fração volumétrica de gás, 0,0005 m/s (1,95%) para a velocidade média da solução combustível e 0,0079 m/s (5,69%) para a velocidade média das bolhas de gás radiolítico. Essas diferenças notáveis contribuem para demonstrar como a metodologia computacional prevê resultados com um nível de detalhes e precisão superior aos obtidos através de simulações físico-neutrônicas e termoidrúlicas, separadamente. Após a determinação do estado de operação estável inicial do projeto conceitual de AHR de 50 kWt mediante a aplicação da metodologia computacional, já podem ser estudadas as características físico-neutrônicas e termoidrúlicas do núcleo.

5.2.1 Resultados termoidrúlicos do projeto conceitual de AHR

Os cálculos termoidrúlicos realizados focaram em três parâmetros fundamentais, temperatura, velocidades e frações volumétricas de gás e da solução combustível. O objetivo desses cálculos foi demonstrar que a temperatura máxima da solução combustível é mantida em todos os momentos abaixo de 90 °C, o que assegura uma faixa de segurança na temperatura para evitar a ebulição da água da solução combustível. Na Figura 55 é demonstrada a distribuição volumétrica da temperatura do projeto conceitual de AHR de 50 kWt. A temperatura média da solução combustível é de 70,83 °C, enquanto a temperatura máxima é de 90,99 °C. Apesar do valor máximo de temperatura ser superior aos 90 °C em quase 1,00 °C, o valor está suficientemente abaixo da temperatura de ebulição da água (100 °C).

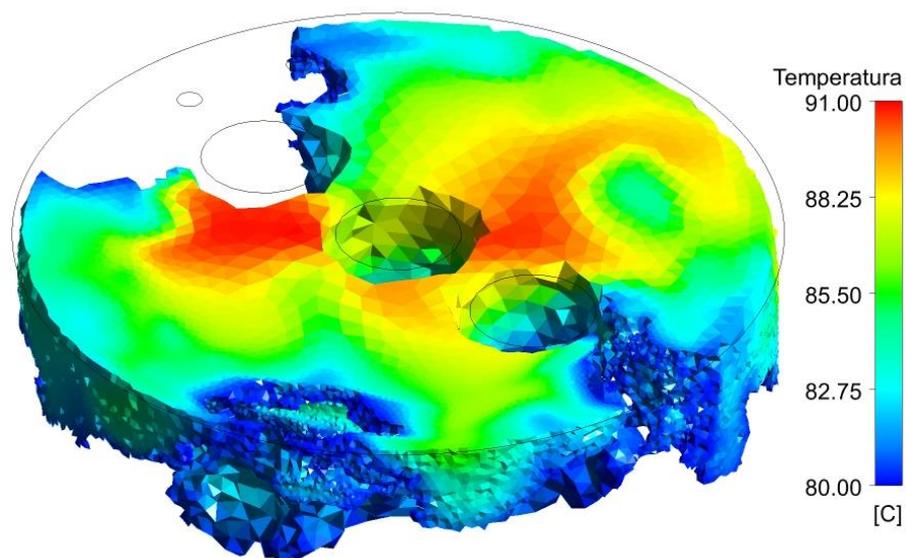
A Figura 56 demonstra a localização das zonas da solução combustível com temperaturas acima de 80 °C, enquanto na Figura 57 é possível observar os perfis de temperatura da solução combustível nos planos centrais XY e YZ. Observa-se que os pontos mais quentes da solução combustível estão localizados na zona superior, esse comportamento é o esperado, levando em consideração que por convecção natural a solução combustível mais quente sobe por diferença de densidade e a solução combustível mais fria desce para substituí-la, gerando um movimento circular.

Figura 55 – Distribuição volumétrica de temperatura da solução combustível do projeto conceitual de AHR de 50 kWt



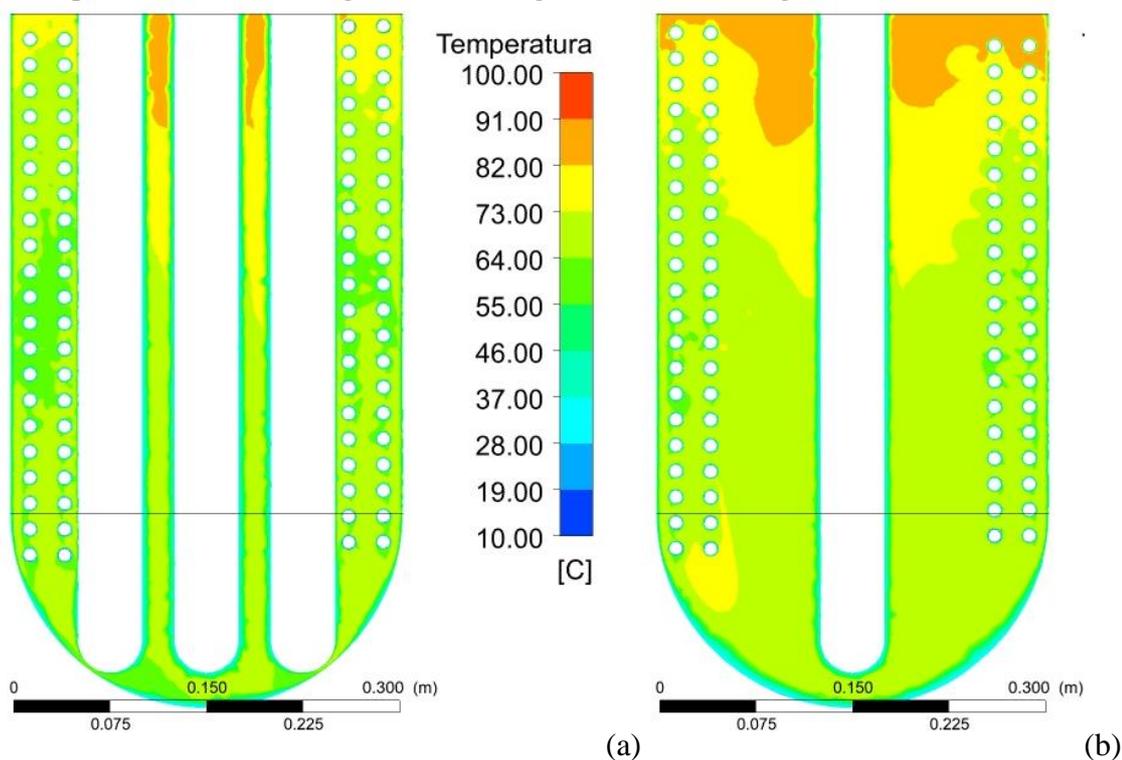
Fonte: O Autor (2020).

Figura 56 – Localização das zonas da solução combustível com temperaturas acima de 80 °C



Fonte: O Autor (2020).

Figura 57 – Perfis de temperatura da solução combustível nos planos centrais XY e YZ

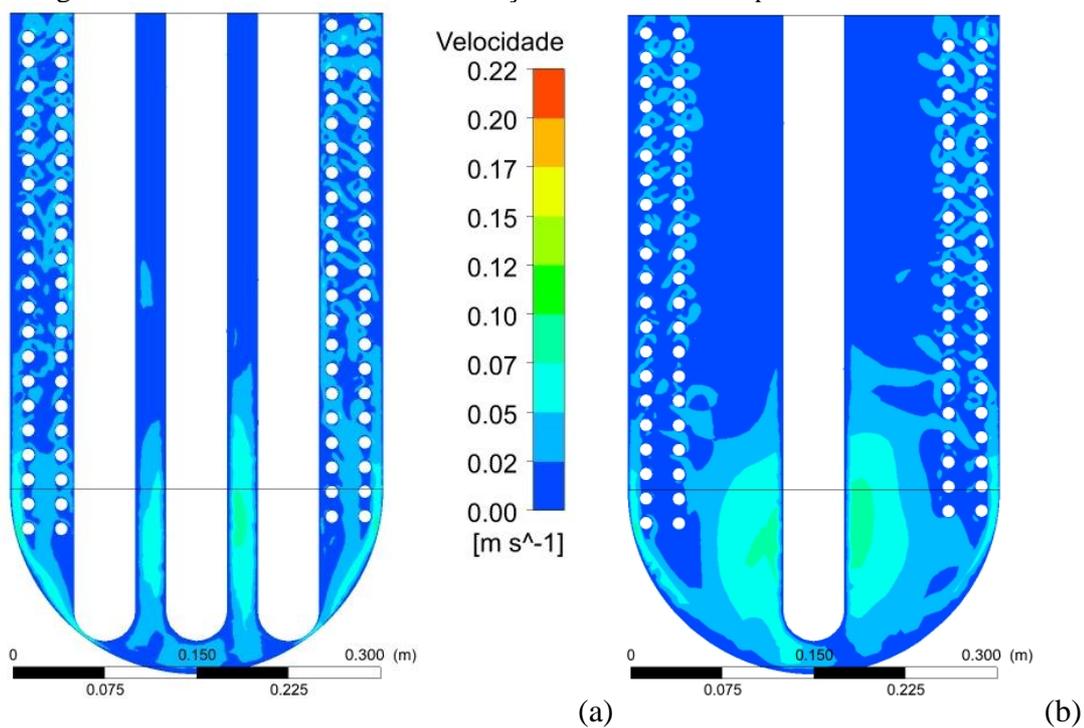


(a) Plano central XY, (b) Plano central YZ.

Fonte: O Autor (2020).

O constante movimento da solução combustível dentro do núcleo do AHR, com base nas mudanças de densidade devido às variações de temperatura (PITTS; SISSOM, 2011) e o movimento ascendente das bolhas de gás radiolítico, desempenha um papel fundamental na remoção de calor do núcleo (PÉREZ, 2015), sendo as grandezas da velocidade da solução combustível e das bolhas de gás radiolítico uma das mais importante a caracterizar. As Figura 58 e 59 demonstram os perfis de velocidade da solução combustível e das bolhas de gás radiolítico nos planos centrais XY e YZ, respectivamente. Os valores médios da velocidade da solução combustível e das bolhas de gás radiolítico são 0,027 m/s e 0,132 m/s, respectivamente. Os valores máximos da velocidade da solução combustível e das bolhas de gás radiolítico são 0,107 m/s e 0,224 m/s, respectivamente. É apreciável a diferença de velocidades entre a solução combustível e as bolhas de gás radiolítico, a velocidade média das bolhas de gás radiolítico é quase cinco vezes maior que a da solução combustível, o que contribui para reforçar a importância delas para a manutenção do constante movimento da solução combustível. Observa-se que os valores mais altos de velocidade estão concentrados na zona central e inferior. O que justifica por que as temperaturas na zona inferior são menores em comparação com a zona superior.

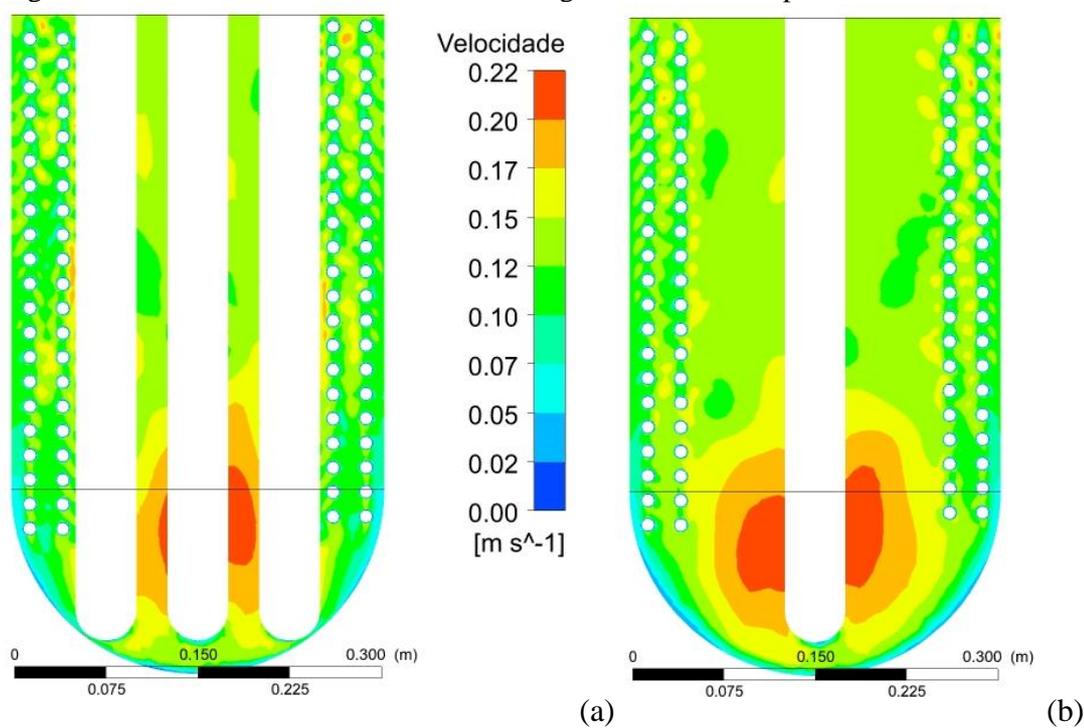
Figura 58 – Perfis de velocidade da solução combustível nos planos centrais XY e YZ



(a) Plano central XY, (b) Plano central YZ

Fonte: O Autor (2020).

Figura 59 – Perfis de velocidade das bolhas de gás radiolítico nos planos centrais XY e YZ



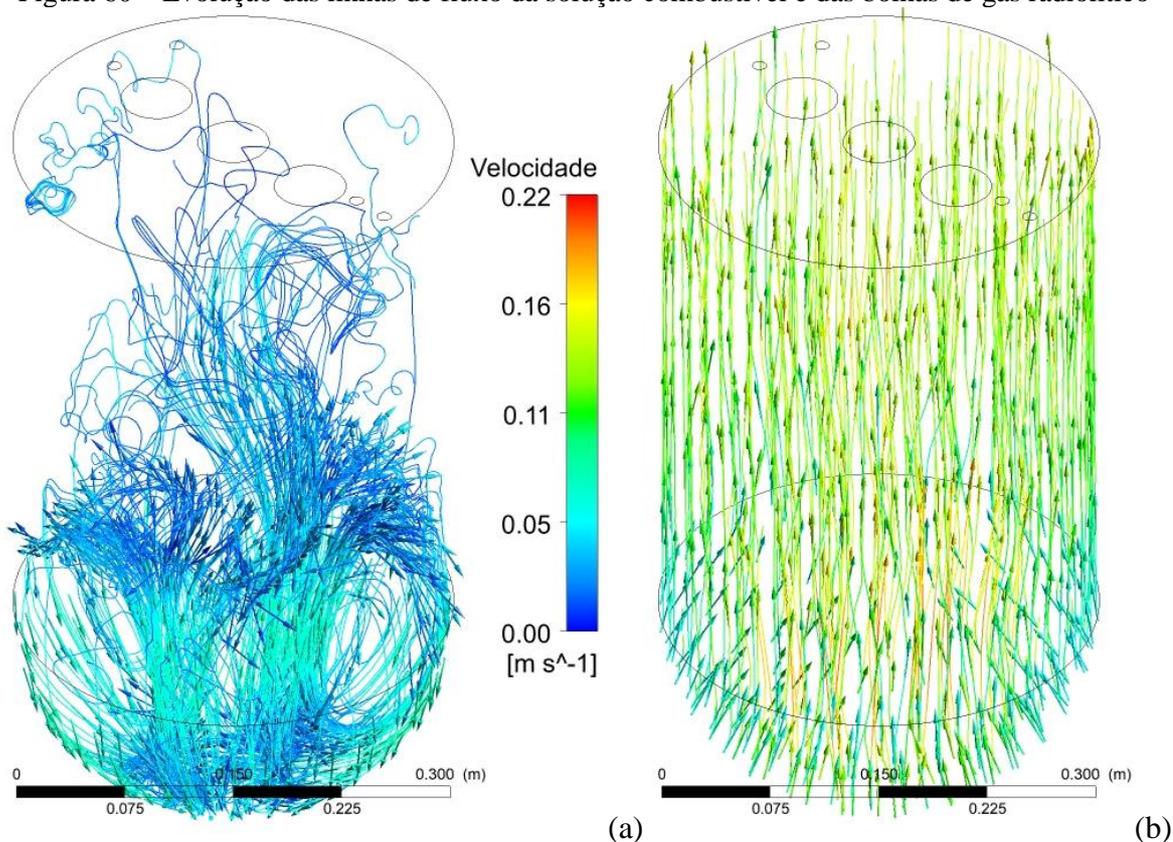
(a) Plano central XY, (b) Plano central YZ.

Fonte: O Autor (2020).

A Figura 60 demonstra a evolução das linhas de fluxo da solução combustível e das bolhas de gás radiolítico no núcleo do projeto conceitual de AHR. Observa-se que as linhas de fluxo das bolhas de gás radiolítico não apresentam recirculação, são bem lineares e ascendentes, enquanto as linhas de fluxo da solução combustível apresentam recirculação na zona inferior e quase nenhum movimento na zona superior. Assim sendo, a transferência de calor é maior na zona inferior e menor na zona superior, justificando a presença de zonas mais quentes na parte superior do núcleo.

Finalmente, foi estudado o comportamento e distribuição das bolhas de gás radiolítico no núcleo do AHR. Na Figura 61 é demonstrada a distribuição da fração volumétrica das bolhas de gás radiolítico, observa-se como as bolhas de gás radiolítico estão quase homogeneamente distribuídas no núcleo do AHR, com a fração volumétrica na zona superior sendo ligeiramente maior a partir do movimento ascendente das bolhas. As bolhas de gás radiolítico ocupam um volume equivalente ao 1,25% do volume total.

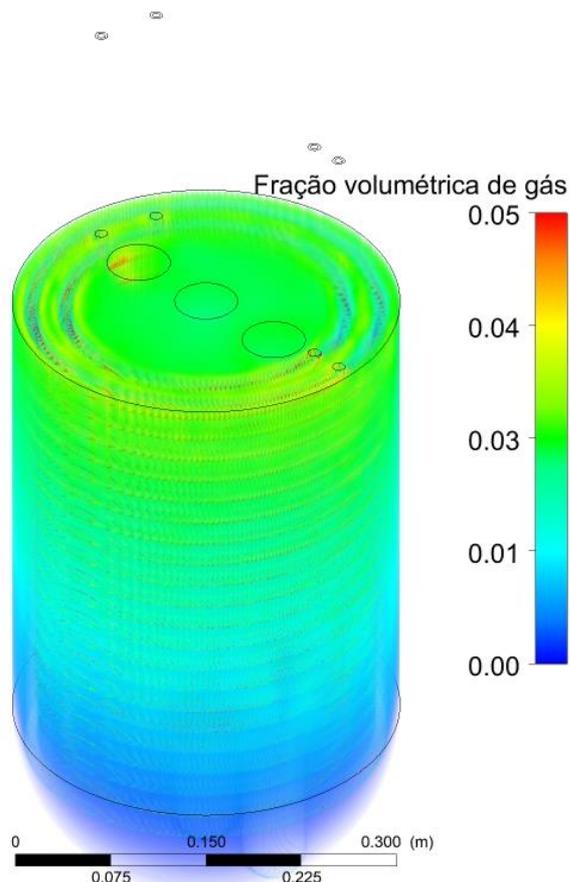
Figura 60 – Evolução das linhas de fluxo da solução combustível e das bolhas de gás radiolítico



(a) Solução combustível, (b) Bolhas de gás radiolítico

Fonte: O Autor (2020).

Figura 61 – Distribuição da fração volumétrica das bolhas de gás radiolítico no núcleo do projeto conceitual de AHR de 50 kWt



Fonte: O Autor (2020).

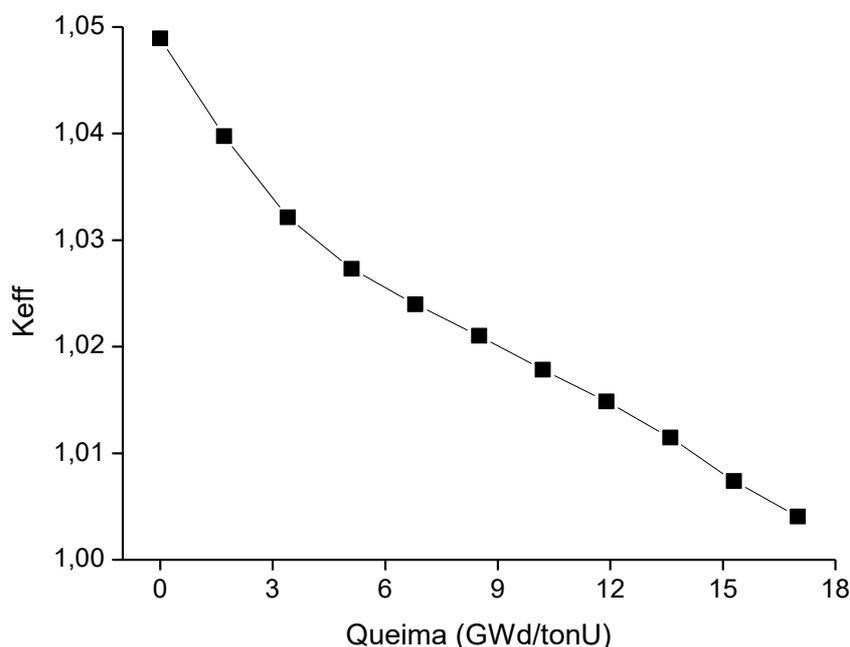
5.2.2 Resultados físico-neutrônicos do projeto conceitual de AHR

Os cálculos físico-neutrônicos foram realizados com o objetivo de avaliar o projeto conceitual de AHR proposto e especialmente, a sua capacidade de produzir isótopos médicos utilizando combustível LEU em condições de operação seguras. Foram determinadas características importantes do núcleo do reator, tais como, a reserva de reatividade para a operação sem recarga do reator por vários anos, a queima do combustível nuclear, o consumo de urânio, a produção de plutônio, a quantidade de isótopos médicos produzidos, especialmente a de ^{99}Mo , por fim a determinação de importantes parâmetros cinéticos do núcleo do reator.

O primeiro dos cálculos físico-neutrônicos teve como objetivo avaliar a reserva de reatividade disponível no reator, para isso foi estudado o comportamento do coeficiente de multiplicação efetivo (K_{eff}) durante dez anos de operação a potência nominal (50 kWt). A Figura 62 demonstra a evolução do K_{eff} com a queima do combustível nuclear. Os resultados

dos cálculos com MCNP indicam que existe no núcleo do projeto conceitual de AHR proposto uma reserva de reatividade inicial de 4942 pcm, o que permite a operação sem recarga do combustível nuclear por pelo menos 10 anos. Essa reserva de reatividade inicial é equivalente a 6,8 vezes o β_{eff} do projeto conceitual de AHR. Observa-se também que após os 10 anos de operação a queima do combustível nuclear chega a 17,0 GWd/tonU.

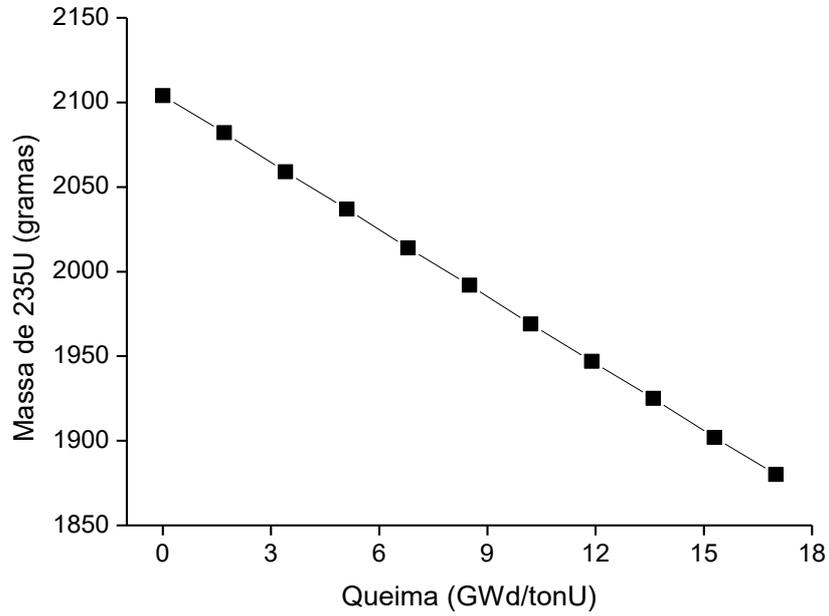
Figura 62 – Evolução do K_{eff} com a queima do combustível nuclear durante dez anos de operação a potência nominal



Fonte: O Autor (2020).

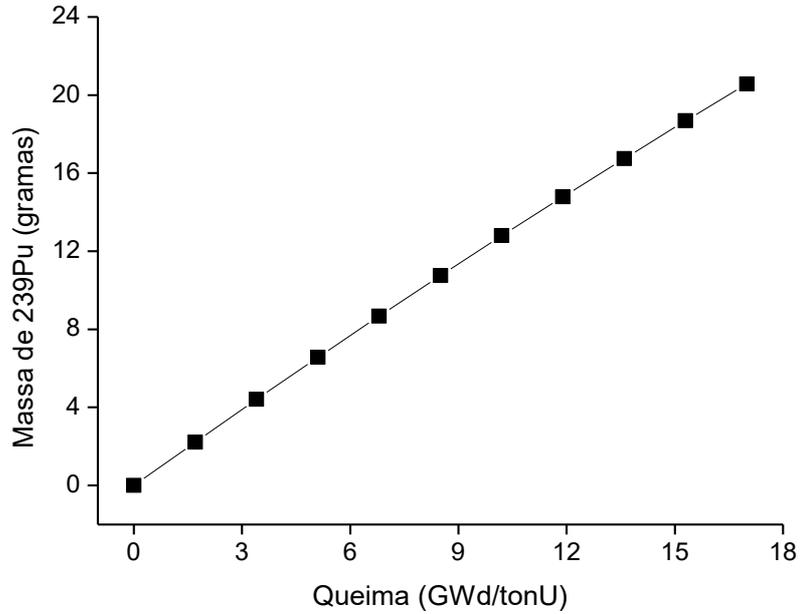
Outras questões analisadas foram o consumo do combustível físsil ^{235}U e a produção de ^{239}Pu no núcleo do projeto conceitual de AHR durante os dez anos de operação a potência nominal. A Figura 63 demonstra a evolução da massa de ^{235}U no núcleo do projeto conceitual de AHR com a queima do combustível nuclear. Observa-se que apenas 10,65% do ^{235}U inicialmente carregado é consumido, o que é equivalente a uma taxa de consumo de aproximadamente 0,31 gramas de ^{235}U por ciclo de operação de 5 dias. Enquanto os resultados obtidos para a massa de ^{239}Pu (Figura 64) indicam um crescimento linear com o aumento da queima do combustível nuclear no núcleo do projeto conceitual de AHR, acumulando apenas aproximadamente 0,02 kg de ^{239}Pu ao final dos dez anos de operação. O que constitui um resultado vantajoso desde o ponto de vista da resistência à proliferação de armas nucleares.

Figura 63 – Evolução da massa de ^{235}U no núcleo do projeto conceitual de AHR com a queima do combustível nuclear



Fonte: O Autor (2020).

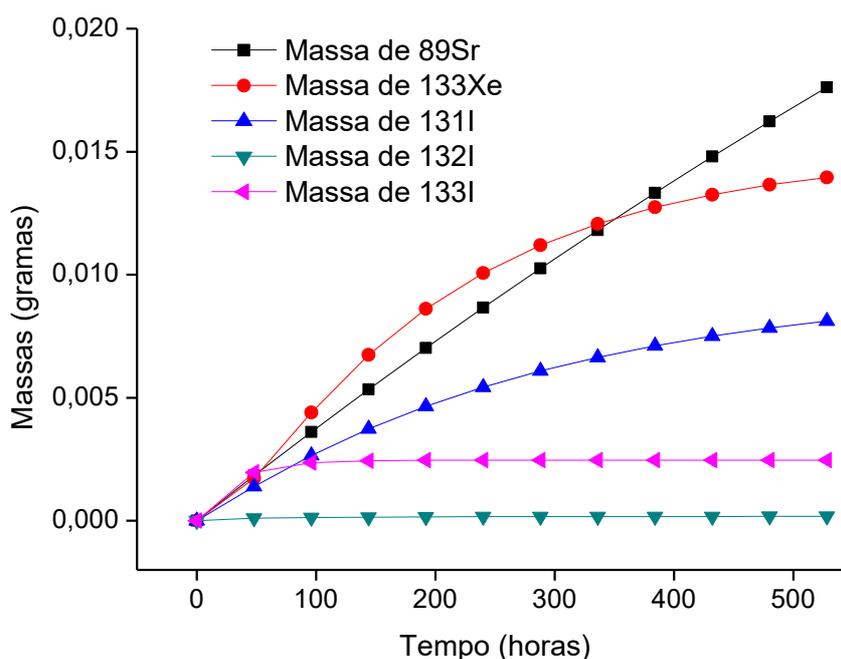
Figura 64 – Evolução da massa de ^{239}Pu no núcleo do projeto conceitual de AHR com a queima do combustível nuclear



Fonte: O Autor (2020).

Após a análise das questões acima, foi avaliada a capacidade de produção de isótopos médicos no projeto conceitual de AHR. A Figura 65 demonstra a acumulação dos isótopos médicos ^{89}Sr , ^{133}Xe , ^{131}I , ^{132}I e ^{133}I durante 528 horas de operação do projeto conceitual de AHR e observa-se que em todos os casos, exceto o ^{89}Sr , a massa dos isótopos tende a atingir uma massa de equilíbrio. Os valores das massas de isótopos médicos demonstrados são uma ilustração do nível de produção desses isótopos no interior da solução combustível. Estudos subsequentes, fora dos objetivos da presente pesquisa, devem ser realizados para avaliar qual parte dessa massa escapa da solução combustível para a zona gasosa acima da solução de combustível por diferença de densidade e pode ser processada pelos sistemas de extração e purificação.

Figura 65 – Acumulação dos isótopos médicos ^{89}Sr , ^{133}Xe , ^{131}I , ^{132}I e ^{133}I durante 528 horas de operação do projeto conceitual de AHR

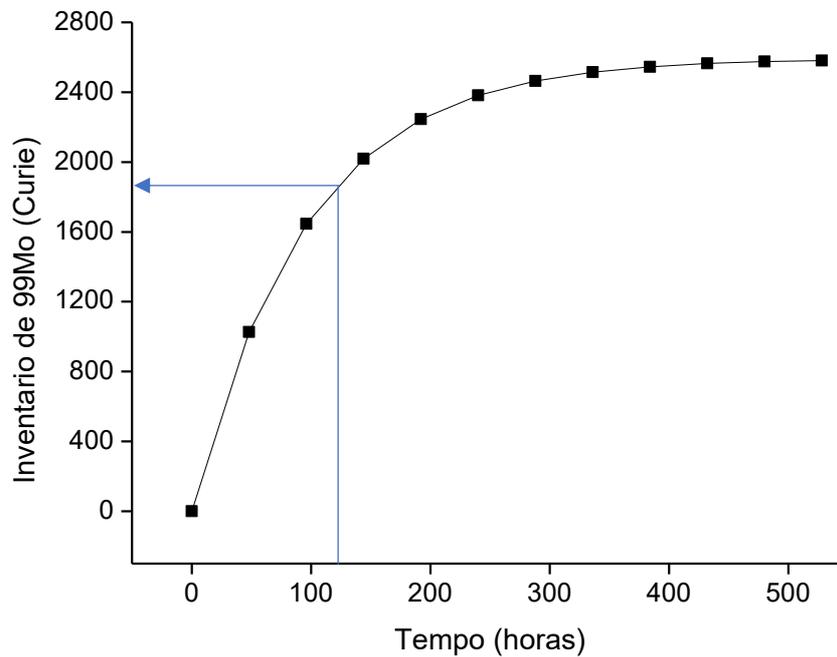


Fonte: O Autor (2020).

A Figura 66 ilustra a acumulação do isótopo médico ^{99}Mo durante 528 horas de operação do projeto conceitual de AHR. Observa-se que o inventário de ^{99}Mo , expressado em Curie, cresce exponencialmente até atingir uma atividade de saturação de 2580 Curie. Para esse nível de produção do isótopo médico ^{99}Mo , que é fornecido pela potência térmica do projeto conceitual de AHR, a simulação com o código MCNPX demonstrou que trabalhando em ciclos de operação de cinco dias com dois dias de refrigeração e extração (Figura 67),

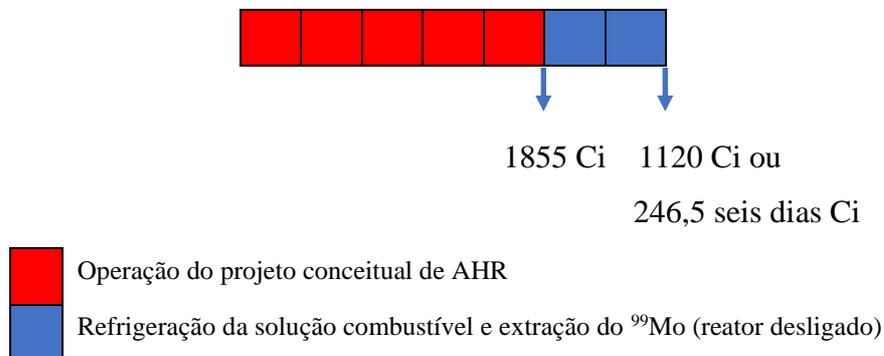
podem ser produzidos 246,5 seis dias Curie de ⁹⁹Mo. Esse valor é consistente com a estimativa realizada, na qual o projeto conceitual de AHR de 50 kWt deveria produzir pelo menos o equivalente a um terço da estimativa da demanda brasileira para 2025 (700 seis dias Curie por semana de ⁹⁹Mo). Logo, três AHR de 50 kWt produzem 739,5 seis dias Curie de ⁹⁹Mo, o que permite cobrir o 105,6% da estimativa da demanda brasileira para 2025.

Figura 66 – Acumulação do isótopo médico ⁹⁹Mo durante 528 horas de operação do projeto conceitual de AHR



Fonte: O Autor (2020).

Figura 67 – Esquema de operação do projeto conceitual de AHR para a produção de ⁹⁹Mo



Fonte: O Autor (2020).

O próximo passo foi a determinação de importantes parâmetros cinéticos do projeto conceitual de AHR. Esses parâmetros são a fração efetiva de nêutrons atrasados (β_{eff}), o tempo médio de geração de nêutrons (Λ), o tempo de remoção dos nêutrons prontos (τ_r), o tempo médio efetivo de geração de nêutrons (incluindo os atrasados - Λ_{eff}) e finalmente a relação β_{eff}/Λ . Os parâmetros cinéticos dependem fortemente da quantidade de combustível no núcleo, do enriquecimento em ^{235}U , da configuração do núcleo (dimensões) e da biblioteca de dados nucleares utilizada nos cálculos. Esses parâmetros geralmente são fornecidos pelo fabricante na fase de projeto dos reatores de pesquisa. O principal parâmetro cinético dos reatores nucleares é a fração efetiva de nêutrons atrasados (β_{eff}), que pode ser definida como a razão entre o número de fissões induzidas por nêutrons atrasados e o número de fissões induzidas por todos os nêutrons. Geralmente, num reator nuclear, mais de 99% dos nêutrons são emitidos instantaneamente nas fissões e só uma pequena fração dos nêutrons emitidos nos eventos de fissão são nêutrons atrasados ($\sim 1\%$), os quais são emitidos por decaimento de precursores. O tempo médio desde a emissão de um nêutron imediato na fissão até a remoção do nêutron por fissão é chamado tempo médio de geração de nêutrons (Λ). A diferença entre Λ e τ_r é que Λ leva em consideração apenas as absorções de nêutrons que induzem a fissão, enquanto τ_r considera além da fissão a remoção de nêutron por outros processos físicos, como captura ou escape (HASSANZADEH et al., 2013; KHAN et al., 2013; STARFELT, 1965).

A fração efetiva de nêutrons atrasados (β_{eff}) do projeto conceitual de AHR é calculada com o código MCNPX usando o chamado método instantâneo (“prompt method” em inglês) que requer a realização de dois cálculos (HENRY et al., 2015; MEULEKAMP; VAN DER MARCK, 2006). O procedimento do método inclui o cálculo do fator de multiplicação efetivo com (K_{eff}) e sem (K_p) nêutrons atrasados, com os quais β_{eff} é calculado de acordo com a Equação 17.

$$\beta_{eff} = 1 - \frac{K_p}{K_{eff}} \quad (17)$$

O fator de multiplicação efetivo, considerando os nêutrons prontos e atrasados (K_{eff}), foi obtido no cálculo convencional com código MCNPX, utilizando a carta KCODE. Para calcular o fator de multiplicação, considerando apenas a contribuição dos nêutrons prontos (K_p), foi utilizada a carta TOTNU com a entrada NO. O resultado dos cálculos do β_{eff} é demonstrado na Tabela 12.

Tabela 12 – Fração efetiva de nêutrons atrasados (β_{eff}) do projeto conceitual de AHR

K_{eff}	K_p	β_{eff}	β_{eff} (pcm)
1,04942 \pm 0,00012	1,04180 \pm 0,00012	0,00726	726

Fonte: O Autor (2020).

Para a determinação do tempo médio de geração de nêutrons (Λ) foi utilizada a técnica de nêutrons pulsados (“pulsed neutron technique” em inglês) (SIMMONS; KING, 1958). Nessa técnica, um pulso de nêutrons é injetado num sistema levemente subcrítico e o decaimento da população de nêutrons é quantificada em função do tempo. A desvantagem fundamental desse método é que ele requer uma grande quantidade de tempo de cálculo para a obtenção de estatísticas suficientes. Para o estudo de três milhões de pulsos da fonte foi necessário calcular por aproximadamente vinte dias. Após a termalização dos nêutrons, a constante de decaimento, α_0 pode ser medida utilizando uma aproximação de cinética pontual. A partir das equações da cinética pontual, a relação entre α_0 e a reatividade (ρ') pode ser expressa através da Equação 18.

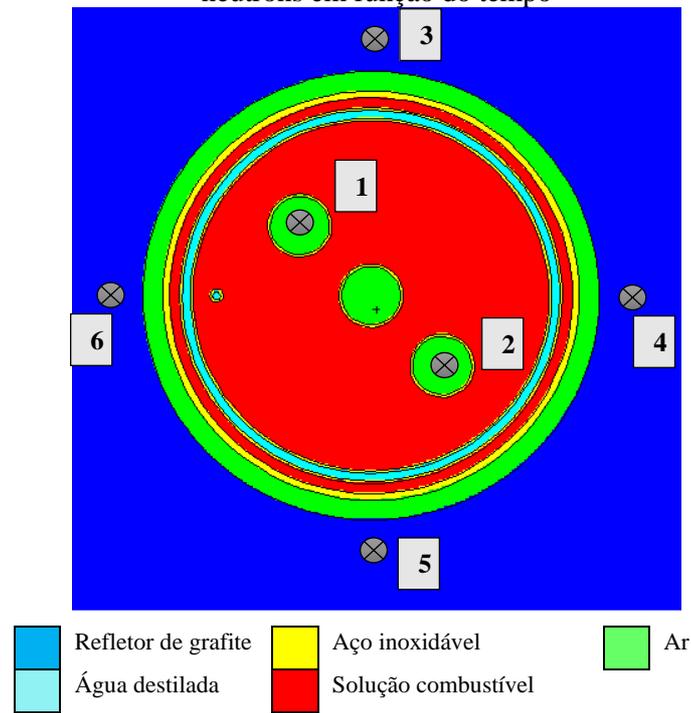
$$\alpha_0 = \frac{1}{n} \frac{dn}{dt} = \frac{\rho' - \beta_{eff}}{\Lambda} \quad (18)$$

Como os parâmetros ρ' e β_{eff} são conhecidos, o tempo médio de geração de nêutrons pode ser facilmente determinado. Uma descrição detalhada da aplicação da técnica de nêutrons pulsados para o cálculo do tempo médio de geração de nêutrons com o MCNP pode ser encontrada em HENRY et al. (2015). A Figura 68 demonstra a localização dos seis detectores utilizados para avaliar o decaimento da população de nêutrons em função do tempo. Uma fonte de nêutrons com espectro de fissão foi colocada no canal experimental central. Após a obtenção do fluxo de nêutrons, α_0 foi obtida ajustando a curva de decaimento com uma função de decaimento exponencial de primeira ordem (Equação 19). A Figura 69 aponta o fluxo de nêutrons em unidades relativas em função do tempo para os seis detectores após três milhões de pulsos da fonte. A Figura 70 permite observar o fluxo médio de nêutrons utilizando um eixo logarítmico. A Tabela 13 mostra o resultado dos cálculos de β_{eff} e Λ .

$$n(t) = n_0 e^{-\alpha_0 t} + N \quad (19)$$

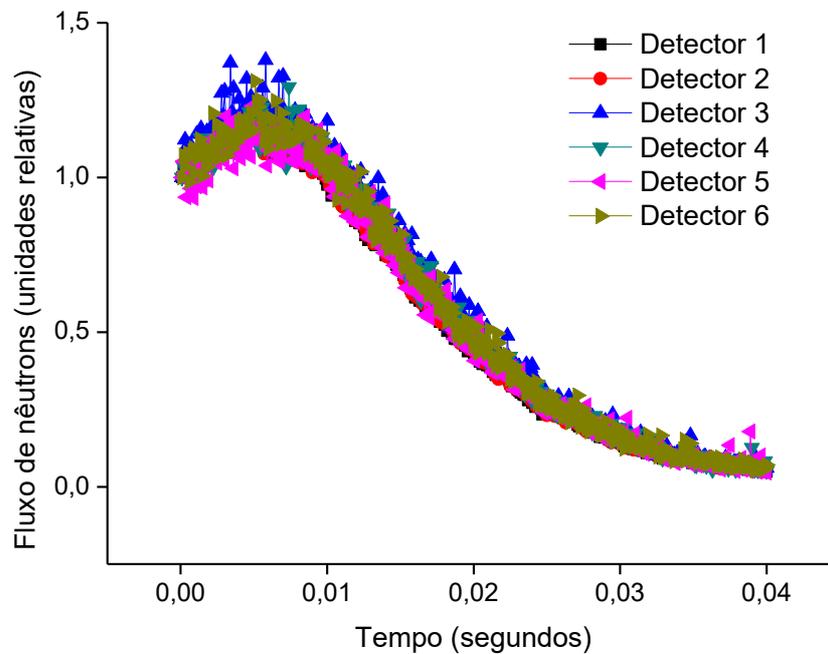
Onde, n é o número médio de nêutrons registrados e N é uma constante.

Figura 68 – Localização dos seis detectores usados para avaliar o decaimento da população de nêutrons em função do tempo



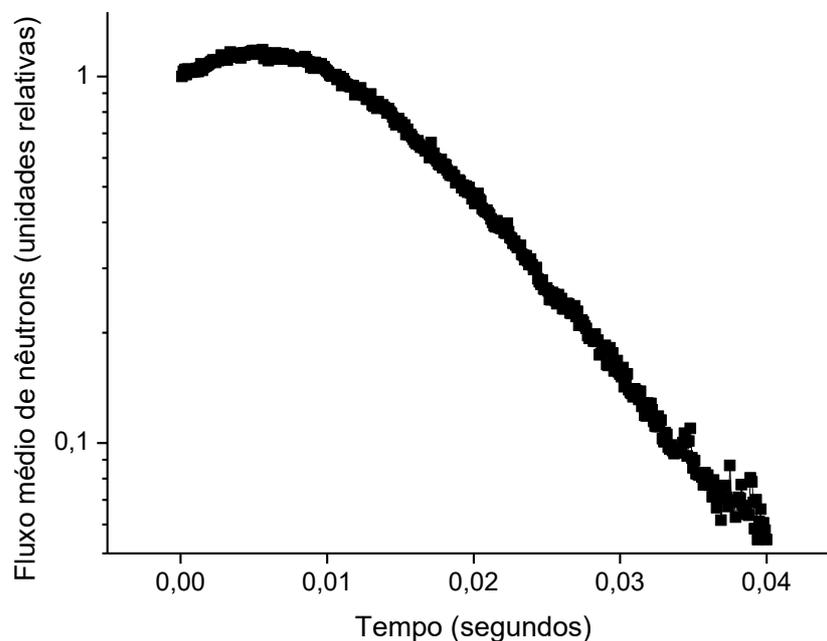
Fonte: O Autor (2020).

Figura 69 – Fluxo de nêutrons nos seis detectores após três milhões de pulsos da fonte no núcleo do projeto conceitual de AHR



Fonte: O Autor (2020).

Figura 70 – Fluxo médio de nêutrons nos seis detectores após três milhões de pulsos da fonte no núcleo do projeto conceitual de AHR



Fonte: O Autor (2020).

Tabela 13 – Resultado dos cálculos de β_{eff} e Λ

Parâmetro	Valor
β_{eff}	0,00768
$\beta_{eff}(\text{pcm})$	768
$\Lambda_1 (\mu\text{s})$	154,11
$\Lambda_2 (\mu\text{s})$	154,72
$\Lambda_3 (\mu\text{s})$	157,86
$\Lambda_4 (\mu\text{s})$	160,11
$\Lambda_5 (\mu\text{s})$	158,27
$\Lambda_6 (\mu\text{s})$	158,86
$\Lambda_{m\u00e9dio} (\mu\text{s})$	157,75
$\beta_{eff}/\Lambda (\text{s}^{-1})$	48,68
MCNP non-adjoint-weighted $\tau_r (\mu\text{s})$	568

Fonte: O Autor (2020).

Nas Figuras 69 e 70 observa-se como durante os primeiros 0,02 segundos, há um período em que o fluxo diminui rapidamente. Após esse período inicial, há outro período (de

aproximadamente 0,01 segundos) em que o fluxo de nêutrons nos seis detectores se aproxima de uma taxa de decaimento comum. Finalmente, o fluxo de nêutrons atinge o modo fundamental de decaimento característico das propriedades inerentes do reator e descrito pelas equações da cinética pontual. Durante esse processo, o fluxo de nêutrons diminui com, aproximadamente, a mesma taxa em todos os detectores, atingindo um nível constante, devido aos nêutrons de fundo.

Como pode ser observado na Tabela 13, o β_{eff} não varia significativamente em comparação com o β_{eff} que inicialmente foi calculado para o modelo que não é levemente subcrítico (Tabela 12). Esse resultado é consistente, considerando que as dimensões do núcleo não variam significativamente. Como esperado, foi obtido que o Λ é relativamente independente da localização em que o fluxo de nêutrons foi medido. As diferenças relativas entre os valores absolutos obtidos são inferiores a 2,30%. O valor médio de Λ é consistente com o esperado, tendo em consideração que nos reatores moderados a água, os nêutrons tendem a existir no intervalo entre 10^{-4} a 10^{-5} segundos antes de serem absorvidos. Foi comprovado que o valor de τ_r reportado pelo MCNP (568 μ s), o chamado “non-adjoint-weighted τ_r ”, é uma aproximação distante do valor real. Para a determinação do tempo de remoção dos nêutrons prontos (τ_r) partimos da definição matemática do parâmetro cinético Λ (Equação 20) (STARFELT, 1965). Para o qual foi obtido que o τ_r é 156,87 μ s, apenas ligeiramente inferior ao valor de Λ .

$$\Lambda = \frac{\tau_r}{K_{eff}} \quad (20)$$

Um tempo médio de geração de nêutrons (Λ) de 157,75 μ s pode resultar em excursões de energia muito rápidas, e o controle do AHR não seria possível sem a dependência dos nêutrons atrasados para diminuir a velocidade da reação. O tempo médio efetivo de geração de nêutrons (Λ_{eff}) e, portanto, a taxa em que a energia pode aumentar, é determinado em grande parte pelos nêutrons atrasados, a Equação 21 mostra isso matematicamente.

$$\Lambda_{eff} = \Lambda(1 - \beta_{eff}) + \ell\beta_{eff} \quad (21)$$

Onde, ℓ é o tempo médio de decaimento dos precursores do ^{235}U ($\sim 12,5$ segundos).

Logo, o valor do tempo médio efetivo de geração de nêutrons (incluindo os atrasados - Λ_{eff}) é de 0,096 segundos. Isso demonstra o efeito que tem os nêutrons atrasados no tempo de geração de nêutrons e, portanto, no controle do reator. Se o projeto conceitual de AHR fosse operado em uma reação em cadeia autossustentada usando apenas nêutrons prontos ($\beta_{eff} = 0$), o tempo de geração seria 0,00015775 segundos. Já, ao operar o reator de modo que uma fração de 0,00768 nêutrons seja retardada, o tempo de vida da geração é estendido para 0,096 segundos (mais de 600 vezes a mais que só com a presença dos prontos). Ou seja, embora sejam apenas uma pequena fração da população total de nêutrons, os nêutrons atrasados são extremamente importantes para o controle e manutenção da reação de fissão em cadeia autossustentada no núcleo do projeto conceitual de AHR.

5.3 CONCLUSÕES DO CAPÍTULO

1. Foi projetado o novo sistema de remoção de calor do projeto conceitual de AHR com combustível LEU, após o aumento da potência térmica do reator até 50 kWt, garantindo a operação segura com a temperatura da solução combustível abaixo de 90 °C. O novo sistema de remoção de calor faz uso de dois tubos helicoidais pelos quais circula líquido de refrigeração com uma taxa de fluxo de 1,0 m³/h e temperatura na entrada de 10 °C.

2. Foi implementado o cálculo acoplado iterativo contemplado na metodologia computacional, e estudada, ao final de cada passo do cálculo termoidrúlico, a convergência dos parâmetros de interesse definidos como critério de parada do processo iterativo entre os códigos físico-neutrônico e da termoidrúlica. O critério de parada estabelecido para o processo do cálculo iterativo foi alcançado após quatro passos de cálculo, resultando diferenças notáveis entre os valores iniciais e os valores “convergidos” após o quarto passo.

3. Foram estudados parâmetros termoidrúlicos fundamentais do projeto conceitual de AHR (temperatura, velocidades e frações volumétricas do gás e da solução combustível). Concluiu-se que a temperatura máxima da solução combustível é de 90,99 °C, e que embora o valor seja superior aos 90 °C, ele está suficientemente abaixo da temperatura de ebulição da água (100 °C). Como era esperado a velocidade média das bolhas de gás radiolítico (0,132 m/s) está bem acima da velocidade média da solução combustível (0,027 m/s), o que contribui para aumentar o constante movimento da solução combustível e com isso a transferência de calor. Para o nível de potência térmica do projeto conceitual de AHR foi determinado que a fração volumétrica média de bolhas de gás radiolítico é equivalente ao 1,25% do volume total.

4. Foram determinados e discutidos parâmetros físico-neutrônicos de interesse do projeto conceitual de AHR, tais como, dependência do K_{eff} com a queima do combustível nuclear, consumo de urânio, produção de plutônio e isótopos médicos, em especial a produção de ^{99}Mo , além disso, foi obtido um grupo de importantes parâmetros cinéticos do projeto conceitual de AHR, que possuem uma grande influência na análise do controle e da segurança de um reator nuclear.

5. Foi demonstrado que o projeto conceitual de AHR com combustível LEU de 50 kWt, trabalhando em ciclos de operação de cinco dias com dois dias de refrigeração e extração, é capaz de produzir 246,5 seis dias Curie de ^{99}Mo . O que é equivalente a mais de um terço da estimativa da demanda brasileira para 2025 (700 seis dias Curie por semana de ^{99}Mo). Logo, três AHR de 50 kWt produzem 739,5 seis dias Curie de ^{99}Mo , o que permite cobrir 105,6% da estimativa da demanda brasileira para 2025.

6 CONCLUSÃO

Foram analisados aspectos físicos, químicos, de engenharia, operação, licenciamento e soluções inovadoras que têm permitido identificar a tecnologia dos Reatores Homogêneos Aquosos (AHR), como uma alternativa atraente em comparação com o método tradicional de irradiação de alvos em reatores de pesquisa heterogêneos multiuso para a produção de isótopos médicos, principalmente o ^{99}Mo .

Foi estimado que um AHR de 100 kWt, utilizando ciclos de operação de 5 dias satisfaz a demanda de ^{99}Mo do mercado brasileiro atual (~475 seis dias Curie por semana de ^{99}Mo). No entanto, levando em consideração as previsões de crescimento (8% ao ano), seria necessário um AHR de aproximadamente 150 kWt para suprir a estimativa da demanda para 2025 (~700 seis dias Curie por semana de ^{99}Mo).

Foi definida a plataforma computacional disponível e desenvolvida a metodologia computacional para o estudo das características físico-neutrônicas e termoidráulicas do núcleo do projeto conceitual de AHR. A metodologia computacional pode ser descrita como um processo iterativo que inclui avançados modelos e códigos de computador, que permitirão o intercâmbio de informações e dados entre si para atingir um nível suficiente de detalhes e precisão sem precedentes nos estudos desse tipo de reatores de combustível líquido para a produção de radioisótopos médicos. Os códigos computacionais MCNP6 e ANSYS CFX-19 constituem as principais ferramentas de cálculo utilizadas na metodologia. Um sistema de códigos computacionais adicionais (desenvolvidos no âmbito da pesquisa) foi usado para o pré-processamento, pós-processamento e intercâmbio de informações e dados entre os códigos principais.

Foram definidas as tarefas de testes a serem utilizadas na avaliação da capacidade de previsão dos modelos e a metodologia computacional para os estudos físico-neutrônicos e da termoidráulica do núcleo do projeto conceitual de AHR. Para isso foram utilizados resultados de duas configurações de operação normal do reator russo ARGUS e um benchmark baseado em experimentos críticos realizados no Instituto Kurchatov nos anos de 1980-1981. A comparação dos resultados obtidos com os dados experimentais permitiu concluir que os modelos desenvolvidos para os cálculos físico-neutrônicos e da termoidráulica com MCNP6 e ANSYS CFX-19 e a metodologia computacional predizem de forma aceitável os estados críticos e as distribuições de temperatura da solução combustível.

Foi desenvolvido um projeto conceitual de AHR para suprir a estimativa da demanda de ^{99}Mo no Brasil para 2025 com segurança, mostrando que é garantida a capacidade de

refrigeração suficiente para evitar o superaquecimento da solução combustível durante os regimes de operação do reator. Para isso, foi projetado um novo sistema de remoção de calor do projeto conceitual de AHR após o aumento da potência térmica do reator até 50 kWt, garantindo a operação segura com a temperatura da solução combustível abaixo de 90 °C. O novo sistema de remoção de calor faz uso de dois tubos helicoidais pelos quais circula líquido de refrigeração com uma taxa de fluxo de 1,0 m³/h e temperatura na entrada de 10 °C.

Foi estudado o projeto conceitual de AHR desenvolvido utilizando o cálculo acoplado iterativo contemplado na metodologia computacional. Foram observadas diferenças notáveis entre os valores iniciais e os valores “convergidos” após o quarto passo. O que contribui para demonstrar como a metodologia computacional prevê resultados com um nível de detalhes e precisão superior aos obtidos através de simulações físico-neutrônicas e termohidráulicas, separadamente.

Foram estudados, após a determinação do estado de operação estável inicial do projeto conceitual de AHR de 50 kWt, alguns parâmetros físico-neutrônicos tais como, dependência do K_{eff} com a queima do combustível nuclear, consumo de urânio, produção de plutônio e isótopos médicos, fração efetiva de nêutrons atrasados (β_{eff}), o tempo médio de geração de nêutrons (Λ), o tempo de remoção dos nêutrons prontos (τ_r), o tempo médio efetivo de geração de nêutrons (Λ_{eff}) e termoidráulicos tais como, temperatura, velocidades e frações volumétricas do gás e da solução combustível.

Foi demonstrado que o projeto conceitual de AHR com combustível LEU de 50 kWt, trabalhando em ciclos de operação de cinco dias com dois dias de refrigeração e extração, é capaz de produzir 246,5 seis dias Curie de ⁹⁹Mo. O que é equivalente a mais de um terço da estimativa da demanda brasileira para 2025 (700 seis dias Curie por semana de ⁹⁹Mo). Logo, três AHR de 50 kWt produzem 739,5 seis dias Curie de ⁹⁹Mo, o que permite cobrir 105,6% da estimativa da demanda brasileira para 2025.

7 PERSPECTIVAS

Os estudos realizados na presente pesquisa contribuem para demonstrar a viabilidade do uso de AHR para a produção de isótopos médicos, em especial a produção de ^{99}Mo . Os resultados obtidos são consistentes com os resultados esperados e com os resultados de outros estudos. No entanto, mais estudos são necessários para a complementação desses resultados e para contribuir com o desenvolvimento e a demonstração da viabilidade técnica, da segurança e economia dos AHR para a produção de isótopos médicos. Alguns desses estudos adicionais incluem cálculos acoplados iterativos físico-neutrônicos e termodrúlicos dependentes do tempo e estudo de fenômenos transitórios tais como, falha do sistema principal de remoção de calor, vazamento dos tubos helicoidais e mistura da água de refrigeração com a solução combustível, inserção acidental de reatividade positiva, avaliação dos sistemas de proteção passiva entre outros.

REFERÊNCIAS

- ANSYS TEAM. **ANSYS CFD 19.0 Documentation, User's Guide manual**. 2019. Disponível em: <http://www.ansys.com>. Acesso em: 1 jul. 2019.
- AUDI, G.; BERSILLON, O.; BLACHOT, J.; WAPSTRA, A. H. The NUBASE Evaluation of Nuclear and Decay Properties. **Nuclear Physics A**, v. 624, p. 1–124, 1997.
- BAJOREK, S.; BAKEL, A.; DIAMOND, D.; FLANAGAN, G.; MUBAYI, V.; SKARDA, R.; STAUDENMEIER, J.; TAIWO, T.; TONOIKE, K.; TRIPP, C.; WEI, T.; YARSKY, P. **Aqueous Homogeneous Reactor Technical Panel Report**. Brookhaven: 2010. 109 p.
- BARANAEV, Y. .; NEROZIN, N. .; PIVOVAROV, V. .; SMETANIN, E. Y. **Medical Complex for Radioisotope Production**. Vienna: 2007. 20–22 p.
- BARBRY, F. **French solution reactor experience and contribution to the Feasibility of the Use of LEU Fuelled Homogenous Aqueous Solution Nuclear Reactors for the Production of Short Lived Fission Product Isotopes**. Vienna: 2010. 37 p.
- BELL, G. I.; GLASSTONE, S. **Nuclear Reactor Theory**. Los Alamos: Litton Educational Publishing, INC., 1970. 637 p.
- BLAZEK, J. **Computational Fluid Dynamics: Principles and Applications: Third Edition**. Baden-Daettwil: ELSEVIER, 2015. 1–447 p.
- BOLDYREV, P. P.; GOLUBEV, V. S.; MYASNIKOV, S. V.; PAVLOV, A. K.; PETRUNIN, N. V.; PAVSHOOK, V. A. **The Russian ARGUS Solution Reactor HEU-LEU Conversion: LEU Fuel Preparation, Loading and First Criticality**. In: RERTR 2014 - 35th International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test reactors. **Anais...** Vienna: 2014. p. 8.
- BUECHLER, C. E. **Argonne Bubble Experiment Thermal Model Development II**. Los Alamos: 2016. 18 p.
- BUNKER, M. E. **Status Report on the Water Boiler Reactor**. Los Alamos: 1963. 74 p.
- CHEMERISOV, S.; GROMOV, R.; MAKARASHVILI, V.; HELTEMES, T.; SUN, Z.; WARDLE, K.; BAILEY, J.; STEPINSKI, D.; JERDEN, J.; VANDEGRIFT, G. F. **Experimental Results For Direct Electron Irradiation Of A Uranyl Sulfate Solution: Bubble Formation And Thermal Hydraulics Studies**. Argonne: 2015. 52 p.
- CHEMERISOV, S.; YOUKER, A. J.; HEBDEN, A.; SMITH, N.; TKAC, P.; JONAH, C. D.; BAILEY, J.; MICKLICH, B.; KALENSKY, M.; VANDEGRIFT, G. F. **Development of the mini-SHINE / MIPS experiments**. In: Molybdenum-99 2011 Topical Meeting. **Anais...** Santa Fe, New Mexico: 2011. p. 12.
- CHUVILIN, D. Y.; BROWN, R. W.; KHVOSTIONOV, V. E.; THOME, L. A.; MARKOVSKIJ, D. V.; PAVSHOOK, V. A.; UDOVENKO, A. N.; VERESCHAGIN, Y. I. **Experimental Demonstration of the New Tecnology of Medical Sr-89 Production in**

solution reactor. In: 5th International Conference on Isotopes. **Anais...** Brussels: Institute for Energy and Transport, 2005.

CNEN. **Relatório De Gestão Do Exercício De 2015.** Rio de Janeiro: 2016. 309 p.

CNEN. **Relatório De Gestão Do Exercício De 2017.** RIO DE JANEIRO: 2018. 331 p.

COOLING, C. M. **Development of a Point Kinetics Model with Thermal Hydraulic Feedback of an Aqueous Homogeneous Reactor for Medical Isotope Production.** 2014. 210 p. Tese (Doutorado em Engenharia Nuclear) - Imperial College London, London, 2014.

D.YU., C.; J.D., M.; S.S., A.; R.M., B.; G.YU., G.; V.E., K.; D.V., M.; H.W., N.; V.A., P. An interleaved approach to production of ⁹⁹Mo and ⁸⁹Sr medical radioisotopes. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 257, n. 1, p. 59–63, 2003.

GLOUCHKOV, E. S.; KHVOSTIONOV, V. E. **Graphite-reflected uranyl sulphate (20.9% ²³⁵U) solutions.** Moscow: 1997. 41 p.

GOORLEY, J. T.; JAMES, M. R.; BOOTH, T. E.; BROWN, F. B.; BULL, J. S.; COX, L. J.; DURKEE, J. W. J.; ELSON, J. S.; FENSIN, MICHAEL LORNE FORSTER, ROBERT A. III HENDRICKS, J. S.; HUGHES, H. G. I.; JOHNS, R. C.; KI, A. J. **Initial MCNP6 Release Overview - MCNP6 version 1.0.** Los Alamos: 2013. 0–42 p.

HASSANZADEH, M.; FEGHHI, S. A. H.; KHALAFI, H. Calculation of kinetic parameters in an accelerator driven subcritical TRIGA reactor using MCNIC method. **Annals of Nuclear Energy**, v. 59, p. 188–193, set. . 2013.

HENRY, R.; TISELJ, I.; SNOJ, L. Analysis of JSI TRIGA MARK II reactor physical parameters calculated with TRIPOLI and MCNP. **Applied Radiation and Isotopes**, v. 97, p. 140–148, mar. . 2015.

HUISMAN, M. V. **Medical Isotope Production Reactor Reactor design for a small sized Aqueous Homogeneous Reactor for producing molybdenum-99 for regional demand.** 2013. 79 p. Dissertação (Mestrado em Engenharia Nuclear) - Delft University of Technology, Delft, 2013.

IAEA. **Homogeneous Aqueous Solution Nuclear Reactors for the Production of Mo-99 and other Short Lived Radioisotopes.** Vienna: 2008a. 1–93 p.

IAEA. **Technetium-99m Radiopharmaceuticals: Manufacture Of Kits.** Vienna: 2008b. 202 p.

IAEA. **Technetium-99m Radiopharmaceuticals: Status And Trends.** Vienna: 2009. 137–156 p.

IAEA. **Research Reactors: Purpose and Future.** Vienna: 2010a. 1–20 p.

IAEA. **IAEA Coordinated Research Project (CRP) Feasibility Evaluation of the Use of Low Enriched Uranium Fuelled Homogeneous Aqueous Solution Nuclear Reactors for the Production of Short Lived Fission Product Isotopes.** Vienna: 2010b. 1–14 p.

IAEA. **Non-HEU Production Technologies for Molybdenum-99 and Technetium-99m**. Vienna: 2013. 1–75 p.

IAEA. **Feasibility Of Producing Molybdenum-99 On A Small Scale Using Fission Of Low Enriched Uranium Or Neutron Activation Of Natural Molybdenum**. Vienna: 2015a. 1–188 p.

IAEA. **ARCAL Perfil Estratégico Regional para América Latina y el Caribe (PER) 2016–2021**. Vienna: 2015b.

IAEA. **Research Reactor Database (RRDB)**. 2019. Disponível em: <<https://nucleus.iaea.org/RRDB/RR/ReactorSearch.aspx?filter=0>>. Acesso em: 1 jul. 2019.

JWB. **ThermalFissionYield**. 2008. Disponível em: <<https://commons.wikimedia.org/w/index.php?curid=16479803>>. Acesso em: 1 ago. 2019.

KHAN, M. J. H.; SARKER, M. M.; ISLAM, S. M. A. Analysis of kinetic parameters of 3MW TRIGA Mark-II research reactor using the SRAC2006 code system. **Annals of Nuclear Energy**, v. 60, p. 181–186, out. . 2013.

KIM, S. J.; BUECHLER, C. E. **Development of Multi-physics (Multiphase CFD + MCNP) simulation for generic solution vessel power calculation**. Los Alamos: 2017. 47 p.

KIMPLAND, R. H.; KLEIN, S. K.; ROYBAL, M. M. **Dynamic System Simulation of Fissile Solution Systems**. Los Alamos: 2014. 10 p.

KING, L. D. P. **Design and Description of Water Boiler Reactors**. In: International Conference Peaceful Uses Atomic Energy,. **Anais...** Geneva: 1955. p. 372–391.

LANE, J. A. AQUEOUS HOMOGENEOUS REACTORS. In: **Fluid Fuel Reactors**. Oak Ridge: 1962. p. 30.

LEE, S. K.; BEYER, G. J.; LEE, J. S. Development of Industrial-Scale Fission 99Mo Production Process Using Low Enriched Uranium Target. **Nuclear Engineering and Technology**, v. 48, n. 3, p. 613–623, 2016.

LI, Y.; WU, H.; CAO, L.; CHEN, Q.; LU, H.; PENG, S.; SONG, X.; YAO, D. FMSR: A code system for in-core fuel management calculation of aqueous homogeneous solution reactor. **Nuclear Engineering and Design**, v. 240, n. 4, p. 763–770, 2010.

LOS ALAMOS NATIONAL LABORATORY. **Rsicc Computer Code Collection MCNP4C**. Los Alamos: 2001.

LOS ALAMOS NATIONAL LABORATORY. **MCNP6.1/MCNP5/MCNPX User Manual**. Los Alamos: 20013.

MCKINNEY, G. W. **Physics and Algorithm Enhancements for a Validated MCNPX Monte Carlo Simulation Tool**. Los Alamos: 2009.

MCKINNEY, G. W. **Physics and Algorithm Enhancements for a Validated MCNP/X Monte Carlo Simulation Tool, Phase VII**. Los Alamos: 2012. 62 p.

MCU TEAM. **MCU Code**. 1982. Disponível em: <<https://mcuproject.ru/eabout.html>>. Acesso em: 5 ago. 2019.

MENTER, F. R. Zonal two equation $k-\omega$ turbulence models for aerodynamic flows. **American Institute of Aeronautics and Astronautics journal**, v. 93, n. 2906, 1993.

MENTER, F. R.; M. K.; LANGTRY, R. Ten Years of Industrial Experience with the SST Turbulence Model. **Turbulence, Heat and Mass Transfer**, p. 8, 2003.

METROPOLIS, N. The Beginning of the Monte Carlo Method. **Los Alamos Science**, v. Special Is, n. Special Issue, p. 125–130, 1987.

MEULEKAMP, R. K.; VAN DER MARCK, S. C. Calculating the Effective Delayed Neutron Fraction with Monte Carlo. **Nuclear Science and Engineering**, v. 152, n. 2, p. 142–148, 10 fev. . 2006.

MYASNIKOV, S. V. **New Nuclear Technologies Will Help To Ensure the Public Trust and Further Development of Research Reactors**. Moscow: 1990. 51–55 p.

MYASNIKOV, S. V; PAVLOV, A. K.; PETRUNIN, N. V; PAVSHOOK, V. A. **Conversion of the ARGUS Solution Reactor to LEU Fuel : Results of Feasibility Studies and Schedule**. In: RERTR 2012 - 34th International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test reactors. **Anais...** Warsaw: 2012. p. 8.

NATIONAL RESEARCH COUNCIL. **Medical Isotope Production Without Highly Enriched Uranium**. Washington, DC: The National Academies Press, 2009. 220 p.

NEA. **The Supply of Medical Radioisotopes: Review of Potential Molybdenum-99 / Technetium-99m Production Technologies**. Paris: 2010. 74 p.

NEA. **A Supply and Demand Update of the Molybdenum-99 Market**. Paris: 2012. 11 p.

NEA. **The Supply of Medical Radioisotopes 2015 Medical Isotope Supply Review: 99 Mo/99m Tc Market Demand and Production Capacity Projection 2015-2020**. Paris: 2015. 28 p.

NEA. **The Supply of Medical Radioisotopes Results from the Third Self-assessment of the Global Mo-99/Tc-99m Supply Chain**. Paris: 2017. 15–53 p.

NEA. **The Supply of Medical Radioisotopes 2018 Medical Isotope Demand and Capacity Projection for the 2018-2023 Period**. Paris: 2018.

PAIN, C. C.; DE OLIVEIRA, C. R. E.; GODDARD, A. J. H.; UMPLEBY, A. P. Non-linear space-dependent kinetics for the criticality assessment of fissile solutions. **Progress in Nuclear Energy**, v. 39, n. 1, p. 53–114, 2001.

PASQUALINI, E. E. **Semi-homogeneous Reactor for 99 Mo Production: Conceptual**

Design. In: RERTR 2011 — 33 rd International Meeting On Reduced Enrichment For Research And Test Reactors. **Anais...** Santiago de Chile: 2011. p. 10.

PÉREZ, D. M. **Diseño conceptual de un AHR de 75 kWt que utiliza combustible LEU para la producción de isótopos médicos.** 2015. 82 p. Dissertação (Mestrado em Engenharia Nuclear) - FCTN, Instituto Superior de Tecnologías y Ciencias Aplicadas, La Habana, 2015.

PÉREZ, D. M.; LORENZO, D. E. M.; BRAYNER, C. A.; LIRA, D. O.; GARCIA, L. P. R. **Neutronic And Thermal-Hydraulic Studies Of Aqueous Homogeneous Reactor For Medical Isotopes Production.** In: International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2017. **Anais...** Belo Horizonte: Associação Brasileira De Energia Nuclear – ABEN, 2017a. p. 22.

PÉREZ, D. M.; LORENZO, D. E. M.; DE OLIVEIRA LIRA, C. A. B.; GARCIA, L. P. R. Neutronic evaluation of the steady-state operation of a 20 kWth Aqueous Homogeneous Reactor for Mo-99 production. **Annals of Nuclear Energy**, v. 128, p. 148–159, 2019.

PÉREZ, D. M.; LORENZO, D. E. M.; DE OLIVEIRA LIRA, C. A. B.; HERNÁNDEZ, C. R. G.; RODRÍGUEZ, M. C.; GARCIA, L. P. R. Effects of some calculation parameters on the computational modelling of temperature, velocity and gas volume fraction during steady-state operation of an aqueous homogeneous reactor. **International Journal of Nuclear Energy Science and Technology**, v. 11, n. 1, p. 1, 2017b.

PÉREZ, D. M.; MILIAN LORENZO, D. E.; BRAYNER DE OLIVEIRA LIRA, C. A.; CADAVID RODRÍGUEZ, M.; GARCÍA HERNÁNDEZ, C. R.; RODRIGUEZ GARCIA, L. P.; SALOMÓN LLANES, J. Thermal-Hydraulics Study of a 75 kWth Aqueous Homogeneous Reactor for 99 Mo Production. **Journal of Thermodynamics**, v. 2015, p. 1–11, 2015.

PIEFER, G. R.; PITAS, K. M.; VAN ABEL, E. N.; T.R.MACKIE; HELTEMES, T. A.; BYNUM, R. V.; GRIBB, T. T.; RADEL, R. F. **Mo-99 Production Using a Subcritical Assembly.** In: 1st Annual Molybdenum-99 Topical Meeting. **Anais...** Santa Fe, New Mexico: Disponível em: <https://mo99.ne.anl.gov/2011/pdfs/Mo99_2011_Web_Papers/S6-P3_Pieffer-Paper.pdf> (Accessed 31st December 2018)> 2011. p. 7.

PITTS, D. R.; SISSOM, L. E. **Theory and Problems of Heat Transfer.** Knoxville: McGraw-Hill, v. 84. 2011. 198 p.

PIVOVAROV, V. **Activities of the Institute for Physics and Power engineering (IPPE).** Obninsk: 2010. 22–26 p.

PORTAL DA TRANSPARÊNCIA. **Documentos de execução da despesa pública. The Open Joint Stock Company “ISOTOPE” JSC.** 2014. Disponível em: <<http://www.portaltransparencia.gov.br/despesas/favorecido?faseDespesa=3&favorecido=35690377&ordenarPor=data&direcao=asc>>. Acesso em: 29 jul. 2019.

REYNOLDS, E. **Medical Isotope Production System.** 2007. 13 p.

REYNOLDS, W. E. **Babcock & Wilcox Medical Isotope Production System Status.** In: RERTR 2008 - 30th International Meeting On Reduced Enrichment For Research And Test Reactors. **Anais...** Washington, D.C.: 2008. p. 4.

RIJNSDORP, S. **Design of a small Aqueous Homogeneous Reactor for production of 99 Mo**. 2014. 87 p. Tese (Doutorado em Engenharia Nuclear) - Delft University of Technology, Delft, 2014.

ROSATOM. **Creación de centros de medicina nuclear**. Moscow: 2014. 19 p.

ROSATOM. **The first-of-the-kind nuclear technological complex for production of medical isotopes (Mo-99, Sr-89) based on an innovative solution technology**. Moscow: 2015a.

ROSATOM. **Rosatom Nuclear Technologies for Healthcare Medical Development Case**. Moscow: 2015b. 12 p.

SIMMONS, B. E.; KING, J. S. A Pulsed Neutron Technique for Reactivity Determination. **Nuclear Science and Engineering**, v. 3, n. 5, p. 595–608, 1958.

SOUTO, F. J. **Investigation of the Effects of Radiolytic-Gas Bubbles on the Long-Term Operation of Solution Reactors for Medical-Isotope Production**. 2002. Los Alamos, , 2002.

SOUTO, F. J.; HEGER, A. S. **A Model to Estimate Volume Change due to Radiolytic Gas Bubbles and Thermal Expansion in Solution Reactors**. Los Alamos: 1996. 19–20 p.

SOUTO, F. J.; KIMPLAND, R. H. Reactivity analysis of solution reactors for medical-radioisotope production. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms**, v. 213, n. 3, p. 369–372, 2004.

SOUTO, F. J.; KIMPLAND, R. H.; HEGER, A. S. Analysis of the Effects of Radiolytic-Gas Bubbles on the Operation of Solution Reactors for the Production of Medical Isotopes. **Nuclear Science and Engineering**, v. 150, n. 3, p. 322–335, 2005.

SPIEGLER, P.; C. F. BUMPUS, J.; NORMAN, A. **Production Of Void And Pressure By Fission Track Nucleation Of Radiolytic Gas Bubbles During Power Bursts In A Solution Reactor**. Canoga Park: 1962. 41 p.

STAPLES, P. **Global Threat Reduction Initiative GTRI's Mo-99 Program**. 2011. 12 p.

STARFELT, N. Physics of Nuclear kinetics. **Nuclear Instruments and Methods**, v. 36, p. 355, set. . 1965.

T. CEBECI; J. RSHAO; KAFYEKE, F.; LAURENDEAU, E. **Computational Fluid Dynamics for Engineers**. Long Beach: Horizons Publishing, 2007. 1–402 p.

TNM. **Obtención de parámetros físico neutrónicos para optimizar la gestión del combustible en el núcleo de un reactor homogéneo de solución acuosa (AHR) para la producción de Mo-99 con destino a la medicina nuclear**. 2014a.

TNM. **Application Form Financing Line “ High Technology Business Innovation ” Tecnología Nuclear Médica SpA**. 2014b. 62 p.

VAKULENKO, A. **ROSATOM's vision of Russia's role in global molybdenum-99 supply**. Vienna: 2017. 11 p.

VERSTEEG, H. K.; MALALASEKERA, W. **Introduction to Computational Fluid Dynamic**. Longman Scientific & Technical, 1995. 267 p.

WASS, A. J. **Supo Thermal Model Development II**. Los Alamos: 2017. 16 p.

WESTMACOTT, C. Explaining the shortage of medical radioisotopes. **NEA News**, Paris, v. 28, n.2, p. 16–19, 2010.

WU, H.; CAO, L. **Neutronics Design of Low Enriched Uranium (LEU) Fueled Aqueous Homogeneous Reactor (AHR) by Using 3D Transport Calculation**. Xi'an Jiaotong: 2016. 14 p.

YOUKER, A. J.; CHEMERISOV, S. D.; KALENSKY, M.; TKAC, P.; BOWERS, D. L.; VANDEGRIFT, G. F. A Solution-Based Approach for Mo-99 Production: Considerations for Nitrate versus Sulfate Media. **Science and Technology of Nuclear Installations**, v. 2013, p. 1–10, 2013.

YOUKER, A. J.; STEPINSKI, D. C.; LING, L.; VANDEGRIFT, G. F. **Mo Recovery Updates and Physical Properties of Uranyl Sulfate Solutions**. Argonne: 2014. 26 p.

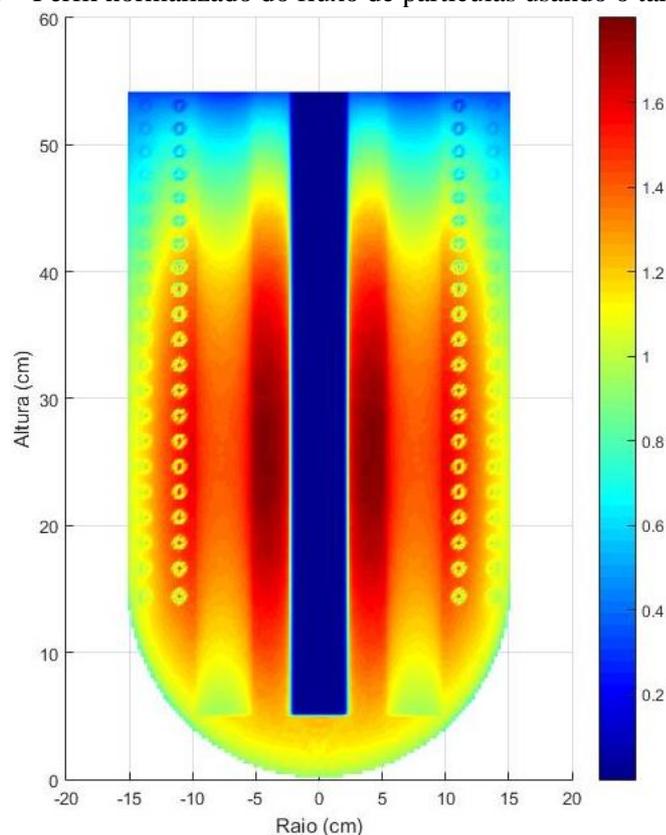
APÊNDICE A – FUNÇÕES NORMALIZADAS

As funções normalizadas para descrever a energia depositada na solução combustível e a formação de bolhas de gás radiolítico são funções polinomiais de ordem cinco que respondem à forma (Equação A1):

$$f(x,y) = p00 + p10x + p01y + p20x^2 + p11xy + p02y^2 + p30x^3 + p21x^2y + p12xy^2 + p03y^3 + p40x^4 + p31x^3y + p22x^2y^2 + p13xy^3 + p04y^4 + p50x^5 + p41x^4y + p32x^3y^2 + p23x^2y^3 + p14xy^4 + p05y^5 \quad (A1)$$

Onde, os coeficientes “*p*” são os termos que variam de uma simulação para outra. Na Figura A1, observa-se o perfil normalizado do fluxo de partículas usando o tally FMESH para o último passo do cálculo iterativo da metodologia computacional.

Figura A1 – Perfil normalizado do fluxo de partículas usando o tally FMESH



Fonte: O Autor (2020).

APÊNDICE B – PROPRIEDADES TERMOFÍSICAS DA SC

Uma questão importante na correta modelação e simulação computacional de qualquer sistema com ANSYS CFX é a seleção adequada das propriedades físico-materiais. Para cada uma das soluções combustíveis de sulfato de uranila modeladas, foram obtidas equações em função da temperatura para as propriedades termofísicas (densidade, viscosidade dinâmica, calor específico e condutividade térmica) usando dados experimentais disponíveis em (LANE, 1962; YOUKER et al., 2014). As Equações B1, B2, B3 e B4 são as equações dependentes da temperatura para as propriedades termofísicas: Densidade, viscosidade dinâmica, calor específico e condutividade térmica da solução combustível do projeto conceitual de AHR.

Densidade (kg/m³):

$$\rho = -0,5714 * T + 1506,4 \quad (B1)$$

Viscosidade dinâmica (Pa s):

$$\mu = -1,1326 * 10^{-5} * T + 2,3050 * 10^{-3} \quad (B2)$$

Calor específico (J/kg K):

$$Cp = -0,4857 * T + 2051,1 \quad (B3)$$

Condutividade térmica (W/m K):

$$k = 0,0010 * T + 0,4113 \quad (B4)$$