

Universidade Federal Fluminense

VICTOR VIEIRA DA COSTA PEREIRA

Separação Isotópica de Metais Pesados por
Centrifugação

VOLTA REDONDA

2021

VICTOR VIEIRA DA COSTA PEREIRA

Separação Isotópica de Metais Pesados por Centrifugação

Orientador:

Gustavo Benitez Alvarez

Coorientador:

Diomar Cesar Lobão

UNIVERSIDADE FEDERAL FLUMINENSE

VOLTA REDONDA

2021

"Não existe problema insolúvel."

Sergei P. Korolev

Resumo

Os processos de separação isotópica são de grande interesse para vários setores da indústria e da pesquisa, tais como: produção de combustível nuclear, moderadores e refrigeradores para reatores de água pesada, barras de controle em reatores de fissão, produção de isótopos para fins medicinais, entre outros. Assim, vários processos de separação foram desenvolvidos de acordo com a escala e o tipo de isótopo a ser enriquecido. No presente trabalho, as ultracentrífugas utilizadas para enriquecimento de isótopos pesados em escala industrial serão abordadas. Para tal, a teoria de centrifugação será apresentada, bem como as Equações da Gás-Dinâmica, que modelam o escoamento no interior das centrífugas e o método numérico que será utilizado para solução do modelo. O problema das camadas limites, que se desenvolvem devido às altas velocidades angulares utilizadas, será brevemente abordado, uma vez que representa um desafio para a estabilidade numérica. Finalmente, será apresentada a equação de Difusão-Convecção, que é utilizada para determinar as frações molares dos isótopos nos fluxos enriquecido e de rejeito que saem da máquina. As frações molares são utilizadas na avaliação da eficiência separativa das centrífugas com a Equação de Dirac.

Palavras-chave

1. Separação de Isótopos
2. Métodos Numéricos
3. Diferenças Finitas
4. Metalurgia Extrativa
5. Ultracentrífugas

Sumário

1	A Metalurgia Extrativa de Isótopos	6
1.1	Definições da Metalurgia Extrativa	6
1.2	Processos de Separação Isotópica	7
1.3	Ocorrência do Urânio	11
2	Introdução à Centrifugação	17
2.1	Introdução	17
2.2	Topo da Atmosfera	20
3	Modelagem Matemática de uma Ultracentrifuga a Contracorrente	24
3.1	Introdução	24
3.2	Equações da Gás-Dinâmica	24
3.3	Análise Separativa	28
4	Modelos Simplificados e Métodos Numéricos Empregados na Solução	30
4.1	Introdução	30
4.2	Modelo Simplificado 1	36
4.3	Modelo Simplificado 2	37
4.4	Método das Diferenças Finitas	40
5	Simulações e Discussão	42
5.1	Parâmetros de Processo da Máquina de Iguaçu	42
5.2	Parâmetros de Processo da Máquina de Roma	43

5.3	Condições de Contorno	44
5.4	Simulações da Máquina de Iguazu através do Modelo Simplificado 1	45
5.5	Simulações da Máquina de Iguazu a partir do Modelo Simplificado 2	48
5.6	Simulações da Máquina de Roma a partir do Modelo Simplificado 2	53
5.7	Discussão	58
6	Conclusão	59
	Referências	61

Capítulo 1

A Metalurgia Extrativa de Isótopos

1.1 Definições da Metalurgia Extrativa

A Metalurgia Extrativa utiliza-se de processos físicos ou processos baseados em reações químicas associadas, ou não, à mudanças de fase através das quais se consegue separar quimicamente o metal do composto que o contém, bem como separá-lo de suas impurezas indesejáveis, chamada de ganga. Os processos utilizados na Metalurgia Extrativa são divididos em três grupos: os *pirometalúrgicos*, que envolvem as reações ocorrendo em altas temperaturas, com extensa troca de calor; os *hidrometalúrgicos*, que exploram as propriedades das soluções aquosas em baixas temperaturas (ou médias temperaturas, com auxílio de pressões elevadas); e os *eletrometalúrgicos*, que utilizam a eletrólise para separar os metais a partir de seus compostos encontrados na natureza ou para aumentar o grau de pureza de metais obtidos em outros processos extrativos [29].

Um mineral é um elemento ou composto químico encontrado na crosta terrestre, com composição química e propriedades físicas geralmente definidas, de ocorrência natural e estrutura interna ordenada. São em geral sólidos (exceto água e mercúrio nas CNTP) e produzidos por processos inorgânicos. A composição química dos minerais permite a classificação em grupos de minerais [29]:

- Nativos (por exemplo, o ouro que apresenta-se na forma metálica na natureza);
- Óxidos, sulfetos, sulfatos, carbonatos, fosfatos, nitratos, boratos, arseniados, silicatos, etc.

As principais propriedades físicas dos minerais são: cor, cor de traço, densidade, brilho, hábito (ou fáceis), clivagem, fratura, estrutura cristalina, dureza, suscetibilidade

magnética, condutividade elétrica, propriedades químicas de superfície, propriedades ópticas (dupla imagem, luminescência), entre outras. Quando uma rocha ou sedimentos constituídos de um ou mais minerais, dos quais contenha um ou mais minerais de interesse possíveis de serem aproveitados economicamente, temos o minério. As operações unitárias típicas envolvidas no beneficiamento dos minérios na Metalurgia Extrativa são [29]:

- Cominuição: britagem e moagem;
- Classificação: ciclone, classificador espiral, entre outros;
- Concentração: gravítica (diferença de densidade), magnética, eletrostática (diferença de condutividade elétrica), flotação;
- Desaguamento: espessamento, filtração;
- Secagem: Secador rotativo, *spray dryer* (secagem por nebulização), separador em leito fluidizado;
- Disposição de rejeito (ganga).

A partir do mineral concentrado do minério, seguem-se outros processos para obtenção dos compostos metálicos, como: redução de minérios de ferro em altos-fornos, eletrólise da alumina em cubas eletrolíticas para obtenção do alumínio, fusão máfica dos minerais sulfetados de cobre, carbocloração dos minerais de titânio, entre outros. Finalmente, os metais e suas ligas podem ser refinados e purificados, por processos químicos, como: sopro de oxigênio no refino dos aços para redução do teor de carbono, eletrólise do cobre blister, entre outros, de acordo com as demandas de pureza, propriedades e processamento para a indústria [29].

1.2 Processos de Separação Isotópica

Para a indústria, além do interesse na separação de minerais dos seus minérios, há também a necessidade de separação de isótopos a partir de uma mistura isotópica para diversas finalidades, como: o urânio (o isótopo U^{235}) para produção de combustível nuclear para reatores de água leve, lítio (Li^6) para reatores de fusão e como matéria-prima na produção de trítio, boro (B^{10}) para barras de controle em reatores de fissão. Há também a produção em escala laboratorial de isótopos de carbono (C^{13}), nitrogênio (N^{15}) e oxigênio

(O^{17}) para uso como marcadores não radioativos para pesquisa na área de saúde, uma vez que são inofensivos para os organismos. Porém, como os isótopos apresentam como característica distintiva principalmente a diferença na massa atômica, devida apenas aos diferentes números de nêutrons no núcleo atômico, os processos de separação típicos da Metalurgia Extrativa tornam-se inviáveis, pois os isótopos apresentam poucas diferenças no comportamento físico-químico. Desse modo, outros processos de concentração tornam-se necessários para uso tanto em escala industrial, quanto em laboratorial. Algumas considerações devem ser feitas para definir qual método de separação isotópica deve ser utilizado, alguns desse métodos são vistos a seguir [28]:

- Para pequenas produções de isótopos o método eletromagnético é mais versátil;
- O método mais barato e simples de concentração é a difusão térmica;
- Para os isótopos dos elementos mais leves, a destilação e a troca química são os métodos mais econômicos para produção em larga escala;
- Para separação de isótopos pesados em larga escala a difusão gasosa e a centrifugação são os mais econômicos.

O grau de separação atingido por qualquer um desses processos de concentração é tipicamente muito pequeno, uma vez que as moléculas isotópicas apresentam características muito similares. Para qualquer processo de separação isotópica que separa um fluxo de entrada em dois fluxos de saída, um enriquecido no isótopo de interesse (produto) e outro empobrecido (rejeito), pode ter seu grau de separação medido por um parâmetro denominado *fator elementar de separação*, α , definido pela razão [28]:

$$\alpha = \frac{[N/(1 - N)]_{produto}}{[N/(1 - N)]_{rejeito}}, \quad (1.1)$$

onde N é a fração molar do isótopo de interesse. Se α é unitário, nenhuma separação ocorreu. O esquema de um estágio de separação pode ser visto na Figura 1.1, onde um fluxo de alimentação (F) que contém uma fração molar N_F do isótopo de interesse, que após ser processado por um sistema qualquer de separação (“caixa preta”), resulta em dois fluxos, um de produto (P) com uma fração N_P do isótopo de interesse e um de rejeito (W) com uma fração N_W [28].

Todos os métodos de separação isotópica dependem, a princípio, da pequena diferença de massa dos diferentes isótopos, porém existem outros mecanismos envolvidos nos

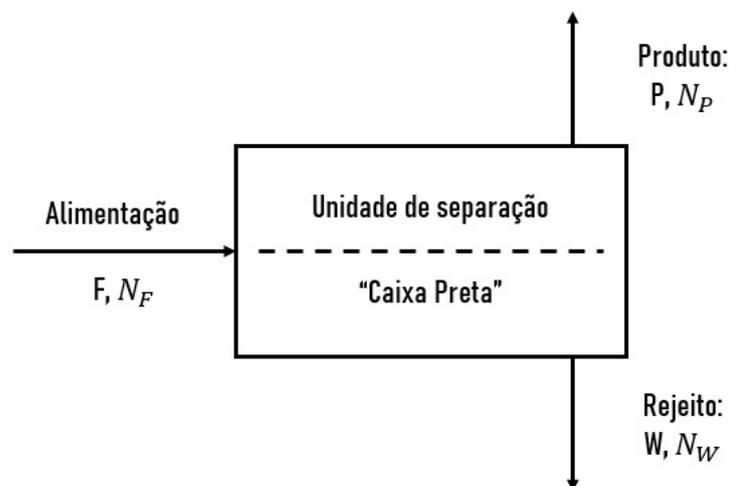


Figura 1.1: Esquema de um estágio básico de separação. Adaptado de [28]

fenômenos de separação. Um deles se baseia no princípio que na condição de equilíbrio térmico os isótopos terão energias livres diferentes, levando a taxas de difusão diferentes, comportamentos diferentes quando sujeitos a gradientes térmicos, bem como pressões de vapor diferentes. Reações químicas também podem ser dependentes das massas atômicas. Já os processos de centrifugação, que serão objeto de estudo, valem-se da inércia dos isótopos quando sujeitos a campos centrífugos. Por fim, existem também as diferenças de momento magnético de átomos com diferentes massas quando carregados, que pode ser detectado por um campo magnético [20].

A partir do estágio básico esquematizado na Figura 1.1, pode-se apresentar na Figura 1.2 o esquema de centrífuga demonstrando o fluxo de entrada (*Feed*), o fluxo de produto (*Product*) sendo retirado no topo e o fluxo de rejeito (*Waste*) sendo retirado na base da máquina. Também podem ser vistas as demais características da máquina, como: o sistema de vácuo entre a carcaça e câmara de separação, os coletores (*scoop*) da base e do topo, sendo o do topo separado da câmara onde se desenvolve o escoamento por um disco rotativo, entre outras características.

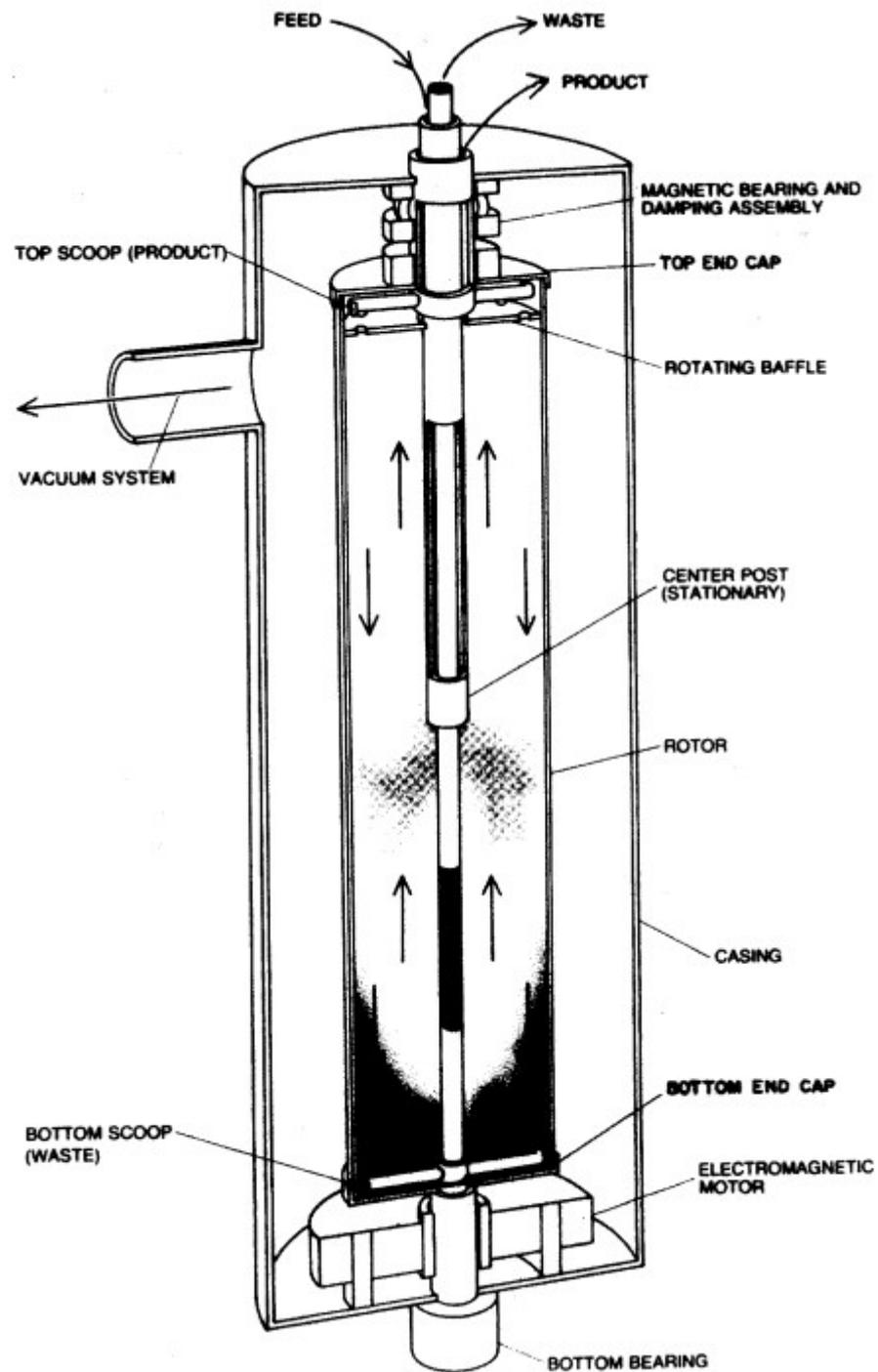


Figura 1.2: Detalhes de uma centrífuga. Extraído de [21].

1.3 Ocorrência do Urânio

Uma vez que a produção de combustível nuclear para reatores de água leve representa uma parte importante do mercado de separação isotópica, será feita uma breve análise dos minerais de Urânio utilizados pela indústria e do seu conteúdo nos minérios. A princípio, o Urânio se apresenta na crosta terrestre com uma abundância média de 4×10^{-4} a $2 \times 10^{-4}\%$, uma concentração semelhante ao cobalto, chumbo e molibdênio. Ocorre principalmente em rochas silicatadas, distribuído majoritariamente em pequenas concentrações, tanto em rochas ácidas como granito e gneisse, e também em rochas sedimentares como os minérios fosfatados. As rochas básicas possuem conteúdo de Urânio menor do que nas rochas ácidas. A distribuição ampla do Urânio e o baixo teor nos minérios, quando comparado aos outros metais de mesma abundância, deve-se principalmente à sua capacidade de formar vários complexos químicos nos minérios [9]. O Urânio apresenta ocorrência em mais de 100 minerais, aqueles de interesse industrial estão listados na Tabela 1.1.

Mineral	Fórmula Química
óxidos, hidratos, silicatos simples (Urânio, completamente ou primariamente tetravalente)	
Pechblenda	$xUO_3 \cdot yUO_2$
Uraninita	UO_2 (com UO_3)
Coffinite	$xUSiO_4 \cdot yU(OH)_4$
Uranotorita	$xThSiO_4 \cdot yUSiO_4$
Depósitos complexos de óxidos de Urânio com terras raras	
Brammerite	$(U, Ca, Fe, Y, Th)_3Ti_5O_{16}$
Betafite	$(U, Ca)(Nb, Ta, Ti)_3O_9 \cdot xH_2O$
Davidite	$(Fe, terras raras, U, Ca, Zr, Th)_x(Ti, Fe^{3+}, V, Cr, Y)_yO_z$
Minerais secundários com Urânio hexavalente	
Gummite	$UO_3 \cdot xH_2O$ (também silicato, fosfato de composição indefinida)
Uranophane	$CaO \cdot 2UO_3 \cdot 3SiO_2 \cdot 6H_2O$
Schroëckingerita	$Na_2O \cdot 3CaO \cdot UO_3 \cdot 3CO_2 \cdot SO_3 \cdot F \cdot 10H_2O$
Carnotita	$K_2O \cdot 2UO_3 \cdot V_2O_5 \cdot 3H_2O$
Tjujamunite	$CaO \cdot 2UO_3 \cdot V_2O_5 \cdot 8H_2O$
Autunite (torbenite)	$CaO \cdot 2UO_3 \cdot P_2O_5 \cdot 12H_2O$

Tabela 1.1: Minerais de Urânio de importância industrial. Adaptado de [9]

Um dos minérios de Urânio mais importantes do ponto de vista industrial, por vir acompanhado tipicamente de pechblenda e uraninita, é a monazita. O Brasil possui um dos maiores depósitos deste mineral no mundo [9]. As concentrações de Urânio nos principais minérios são mostradas na Figura 1.3.

No Brasil, a extração de urânio começou em 1982 com o início das operações nas minas de Poços de Caldas, em Minas Gerais. Porém, em 1995, após estudos de viabilidade, a INB encerrou as atividades de mineração e iniciou o plano de descomissionamento, com a instalação da Unidade de Descomissionamento de Caldas (UDC), que tem por objetivo trabalhar com a descontaminação das instalações e terrenos. Bem como, a UDC é responsável pelo monitoramento de água, solo e dos antigos equipamentos utilizados na

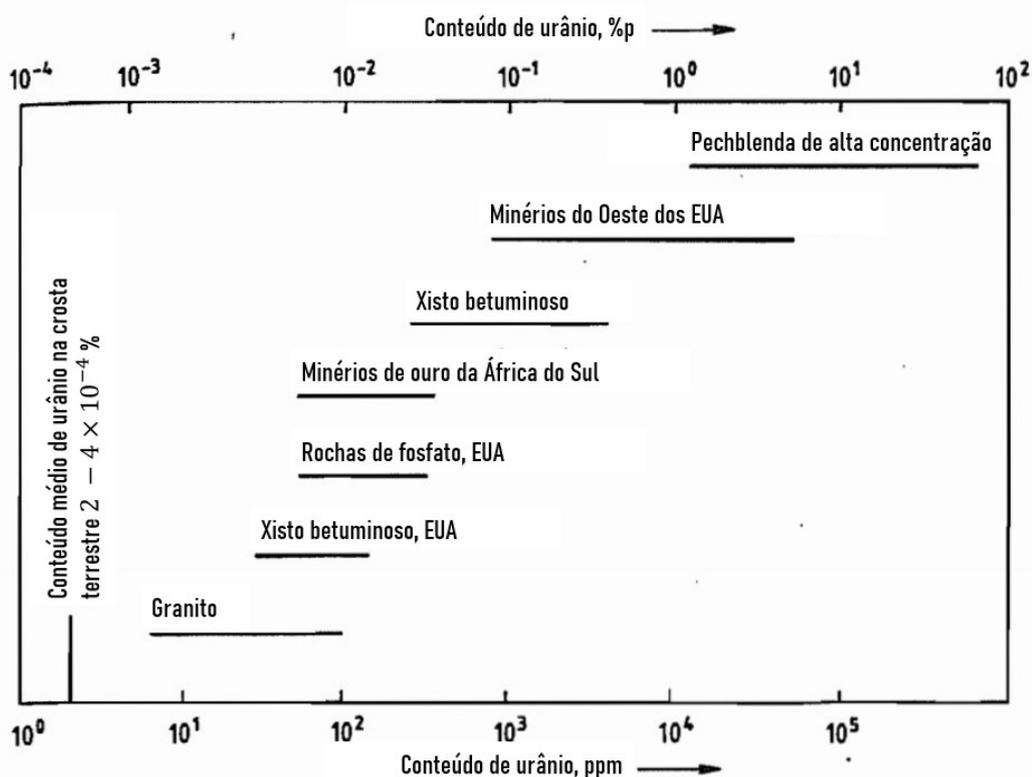


Figura 1.3: Conteúdo de Urânio nos minerais de urânio comuns. Adaptado de [9]

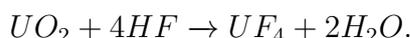
mineração. Atualmente, a área se encontra em processo de recuperação com a aprovação do Plano de Recuperação de Áreas Degradadas (PRAD) [12].

Atualmente, em operação temos a Unidade de Concentração de Urânio (URA) em Caetité, na Bahia, na região conhecida como Província Uranífera de Lagoa Real. O complexo de Caetité encontra-se ativo desde os anos 2000, e até 2015 uma de suas minas, a Mina Cachoeira, acumulou uma produção de 3750 toneladas de concentrado de urânio. Outra lavra, chamada Mina do Engenho, está em processo de licenciamento para início das operações. Em Caetité são realizadas as duas primeiras etapas do ciclo de combustível nuclear, que envolvem a extração e concentração dos minérios de urânio para produzir o concentrado, também chamado de *yellow cake*. A mina de Caetité tem uma área de 1700 hectares e depósitos estimados de mais de 99 mil toneladas de minerais de urânio distribuídos em 17 depósitos [11, 13].

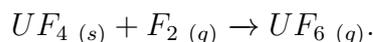
Na unidade de Caetité, o minério é extraído das lavras e transportado para os processos de cominuição do minério por britagem, que é dividido em etapa primária e secundária. Essas etapas são fundamentais para aumentar a área superficial para o processo de lixiviação. A lixiviação é feita com a aplicação contínua de ácido sulfúrico sobre a pilha de minério britado. Após percolar a pilha, a solução líquida é recolhida na base, onde passa

a ser chamada de licor de urânio. Esse licor é inicialmente purificado através de processos químicos e físicos, que após seco resulta no *yellow cake*. O concentrado de urânio é então armazenado em tambores especiais e enviados para a etapa de conversão, que é feita no exterior. Porém, a INB está desenvolvendo e implantando a FCN - Conversão onde já opera a unidade de enriquecimento de urânio em Resende, Rio de Janeiro. Esse projeto visa reduzir os custos de produção do combustível nuclear para atender a preços competitivos do aumento projetado da demanda por combustível devido ao aumento da frota de reatores [10, 13].

O processo de conversão em UF_6 se dá após todas as etapas do processo de lixiviação e purificação do concentrado de urânio. Porém, a conversão não é direta, pois primeiro envolve a produção do UF_4 a partir do óxido concentrado. Se o óxido concentrado for composto por UO_3 , ele deve ser reduzido a UO_2 e então seguir para o processo de reação do óxido com um composto contendo flúor. A reação é produzida na faixa de temperaturas de $300 - 600^\circ C$, que é função da reatividade do urânio em pó [9]:



Após a fluoretação do urânio, o produto intermediário UF_4 é reagido com o flúor em forma gasosa em uma reação que se procede de forma muito rápida em temperaturas acima de $250^\circ C$, e os reatores utilizados trabalham na faixa de $400 - 1100^\circ C$ [9]. A reação pode ser vista abaixo:



O UF_6 puro gasoso produzido após a sequência de processos unitários da Metalurgia Extrativa, é então enviado para as plantas de enriquecimento que utilizam as centrífugas, como a da Figura 1.2, para a separação dos isótopos do urânio a partir da mistura gasosa. O objetivo do processo é enriquecer essa mistura no isótopo U^{235} , que possui uma abundância natural de 0.711% até a concentração de 3% utilizada nos reatores de água leve [14]. Apenas uma centrífuga não seria suficiente para produzir as quantidades necessárias de material físsil enriquecido para a produção de energia nuclear, de forma que são operadas em arranjos de máquinas chamado de cascatas, como pode ser visto na Figura 1.4. Um arranjo possível das máquinas, pode envolver 164 centrífugas distribuídas como na Figura 1.5, onde tem-se um total de 15 estágios e o fluxo de alimentação de gás é feito no estágio 5, que consiste de 24 máquinas, com uma taxa de alimentação de



Figura 1.4: Arranjo real de centrífugas [31].

70 gramas por hora e a taxa de retirada do produto enriquecido de 7 gramas por hora. Cada país que opera plantas de enriquecimento possui arranjos próprios de cascatas, que maximizam a produção das máquinas [16].

Dentro de todo o processo de produção do combustível, desde as etapas de mineração, concentração por lixiviação e purificação do minerais, o enriquecimento é a etapa do processo que apresenta o uso mais intenso de energia em comparação com a produção chegando ao consumo de 200 kWh/kg por SWU (*Separative Work Unit*, ou Unidade de Trabalho Separativo, é a quantidade de energia envolvida para separação de 1 kg de material) [9]. Dessa forma, pesquisa contínua é necessária para otimização dos parâmetros de operação das máquinas, que levam à redução do consumo de energia do processo de enriquecimento como um todo, e conseqüentemente gera um aumento de sua atratividade econômica. Países como a China e o Irã seguem em desenvolvimento acelerado de novas gerações de máquinas otimizadas para aumento da produtividade e redução do custo por SWU de material produzido [32, 24].

Após o processo de enriquecimento, o UF_6 gasoso deve ser convertido ao UO_2 em pó para ser sinterizado e compor os elementos combustíveis utilizados nas usinas nucleares. Um do processos é feito a úmido e envolve a precipitação de diuranato de amônia (ADU) ou do carbonato misto de uranila e amônia (AUC), a seqüência de reações é indicada abaixo [9].

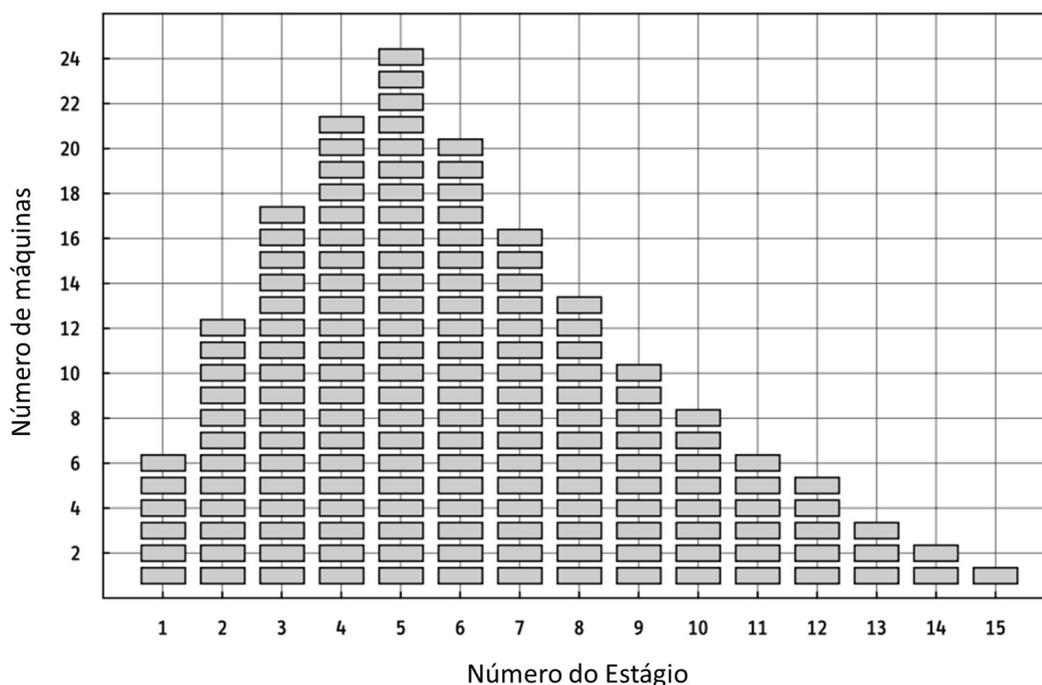
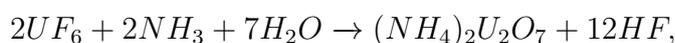
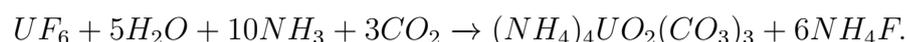


Figura 1.5: Arranjo em cascata de 164 centrífugas distribuídas em 15 estágios. Adaptado de [16].

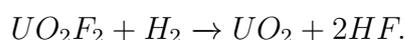
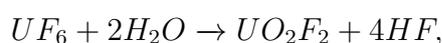
ADU :



AUC :



A outra alternativa é o uso de processos a seco, que utiliza misturas de hidrogênio e vapor d'água para reagir com o UF_6 gasoso. Esse processo ocorre em equipamentos que possuem uma ou duas câmaras onde faz-se a alimentação do gás enriquecido e dos gases reagentes, e o produto já em pó se acumula na base do equipamento. Os equipamentos envolvidos devem ser construídos a partir de materiais selecionados cuidadosamente, pois os gases gerados são compostos por ácido fluorídrico gasoso em altas temperaturas, que será posteriormente tratado. A seqüência de reações envolvidas pode ser vista abaixo [9].



O processo a seco produz o dióxido de urânio diretamente no processo. Por outro lado, para o caso dos processos a úmido, após a formação do diuranato de amônia ou

carbonato misto de uranila e amônia, o material deve ser seco e submetido a processos de redução. A redução é feita através de uma mistura gasosa de hidrogênio e amônia craqueada em temperaturas de $500 - 700^{\circ}\text{C}$. O produto desse processo é o UO_2 , e os gases resultantes são reutilizados nos processos como precursores para a fluoretação e produção de hidrogênio. Finalmente, o UO_2 em pó pode ser compactado e sinterizado para a obtenção das pastilhas [9].

Além do uso do UO_2 enriquecido para reatores nucleares de água leve, em forma de pastilhas sinterizadas, como pode ser visto na Figura 1.6, também existe o uso do carbeto de Urânio (UC) em reatores que necessitam de combustível de maior densidade e condutividade térmica, quando comparado com o UO_2 . Existem também reatores que utilizam o urânio metálico como combustível, de forma que o óxido obtido após a conversão do UF_6 deve ser novamente reduzido através de agentes redutores como o cálcio ou magnésio para a liberação do metal [9].



Figura 1.6: Pastilha de Urânio para combustível nuclear produzido na INB [14].

Devido a sua elevada densidade, o Urânio na sua forma metálica, obtido a partir das frações empobrecidas em U^{235} a partir do processo de enriquecimento, pode ser utilizado como lastro no ajuste do centro de gravidade de aviões. Com essa finalidade, a Boeing utiliza até 360 kg de Urânio metálico nos lastros dos aviões. Também pode ser empregado em isolamentos contra fontes radiológicas, como as utilizadas em fontes de raios-X para inspeção de solda, ou de equipamentos médicos. Ligas de $\text{U} - \text{Zr}$ podem ser empregadas como moderadores de nêutrons em reatores de naves espaciais [9].

Capítulo 2

Introdução à Centrifugação

2.1 Introdução

O processo de enriquecimento de urânio compreende uma das etapas mais importantes do ciclo de produção do combustível nuclear, onde um processo de separação física aumenta a fração do isótopo de interesse numa mistura gasosa, denominada gás de processo, até um valor objetivado para o uso em reatores de água leve, por exemplo. O gás de processo é o hexafluoreto de urânio (UF_6), composto majoritariamente pelo isótopo U^{238} , mais pesado, e o isótopo de interesse U^{235} , que é mais leve e se apresenta com uma abundância natural de 0.711% na mistura. Para a separação dos isótopos, diversos processos foram desenvolvidos, os mais importantes são: a centrifugação, difusão gasosa, separação por bocal ou jato centrífugo e a separação por laser [16].

O princípio da separação centrífuga, que será o objeto de estudo, foi desenvolvido a partir da observação que a composição dos gases atmosféricos variava com a altitude na atmosfera. A proposta foi primeiro apresentada em 1919, sugerida pelos cientistas britânicos Lindemann e Aston, que propuseram o uso de um campo centrífugo em substituição ao campo gravitacional da Terra, que é o responsável pela separação dos gases na atmosfera. Nos anos seguintes, diversos equipamentos baseados nesse princípio foram desenvolvidos e construídos, porém sem sucesso, devido principalmente a questões de construção dos equipamentos [5, 16].

Como apresentado em [5], a variação da pressão parcial do isótopo com a altura na atmosfera terrestre segue a Lei de Boltzmann, sendo expressa para um componente i qualquer como

$$p_i(h) = p_i(0) \exp\left(-\frac{M_i gh}{2RT}\right), \quad (2.1)$$

onde p_i é a pressão parcial do componente i , M_i a massa molar, g a aceleração da gravidade, h a altura na atmosfera, R e T são a constante dos gases ideais e a temperatura, respectivamente. Substituindo o campo gravitacional por um campo centrífugo, substitui-se a expressão $-M_i gh$ por $(1/2)M_i(\omega r)^2$, que expressa a energia por mol para uma máquina de raio r com velocidade angular ω , logo

$$p_i(r) = p_i(0) \exp\left[\frac{M_i(\omega r)^2}{2RT}\right]. \quad (2.2)$$

Para dois gases componentes com diferentes massas molares M_2 e M_1 , entre a parede da máquina $r = a$ e o eixo $r = 0$, tem-se

$$\frac{p_1(a)}{p_2(a)} = \frac{p_1(0)}{p_2(0)} \exp\left[\frac{(M_1 - M_2)(\omega a)^2}{2RT}\right]. \quad (2.3)$$

Para o sistema binário, onde N é a fração molar do isótopo leve de massa M_1 ,

$$\begin{aligned} p_1 + p_2 &= p, \\ N &= \frac{p_1}{p}, \\ 1 - N &= \frac{p_2}{p}. \end{aligned} \quad (2.4)$$

Substituindo na equação (2.3), temos

$$\left(\frac{N}{1-N}\right)_a = \left(\frac{N}{1-N}\right)_0 \exp\left[\frac{(M_1 - M_2)(\omega r_2)^2}{2RT}\right]. \quad (2.5)$$

Assumindo que $M_2 > M_1$, tomamos o exponencial que multiplica o lado direito da equação (2.5) tal que,

$$\alpha_0 = \exp\left[\frac{-(M_2 - M_1)(\omega a)^2}{2RT}\right]. \quad (2.6)$$

Finalmente a equação (2.5) toma a seguinte forma,

$$S(0) = \alpha_0 S(a), \quad (2.7)$$

onde S é a razão $[N/(1 - N)]$ da Equação (2.5) avaliada em $r = 0$ e $r = a$. O fator α_0 é considerado, para o estado de equilíbrio, como o fator de separação máximo para o processo de centrifugação simples, como o proposto inicialmente por Lindemann e Aston, onde somente o campo centrífugo atua.

Após as primeiras tentativas de construção de uma centrífuga funcional, foi apenas em 1939, na Universidade da Virgínia nos Estados Unidos, que o cientista Jesse Beams conseguiu separar isótopos de cloro em uma centrífuga. O equipamento era composto de uma câmara com as paredes termicamente isoladas através da montagem da câmara de separação dentro de uma câmara de vácuo. Dessa forma, foi possível reduzir as vibrações no interior da máquina, permitindo a separação dos isótopos. O equipamento se tornou conhecido como centrífuga evaporativa [5].

A partir desses resultados práticos, o primeiro modelo de centrífuga a contracorrente foi apresentado por Harold C. Urey, que propôs a utilização das fases líquidas e gasosas do UF_6 no interior da centrífuga para atingir maiores separações e dessa forma reduzir o número de ciclos. Ela funcionava com uma fase líquida pesada sendo lançada contra a parede da máquina pela força centrífuga, o líquido então escoaria para baixo onde o gás seria formado e forçado para cima, sendo a fração enriquecida do gás retirado no topo [5].

Com o desenvolvimento do Projeto Manhattan, as centrífugas foram consideradas uma das possibilidades para a produção de material físsil em larga escala para a construção dos artefatos nucleares. Porém, problemas de engenharia e falhas recorrentes nas máquinas levaram o gerente do projeto Harold Urey a encerrá-lo e adotar a difusão gasosa [16].

Após o fim do Projeto Manhattan a pesquisa com as centrífugas continuou, com máquinas sendo produzidas nos EUA, França, URSS, Alemanha, entre outros. E também há décadas que o Brasil entrou nesse seleto grupo de países detentores da tecnologia de enriquecimento de combustível nuclear. Nesses projetos que começaram a surgir posteriormente, foram agregados novos mecanismos de geração de contracorrente, onde os quatro principais são [21]:

1. Distribuição não-uniforme de temperatura pela parede (*Wall Thermal Drive*);
2. Diferença de temperatura entre as tampas superior e inferior da máquina (*End Cap Thermal Drive*);
3. Efeito gerado pelo ponto de injeção de gás (*Feed Drive*);
4. O efeito mecânico principal é gerado pela interação do coletor inferior com o gás em

movimento (*Scoop Drive*).

2.2 Topo da Atmosfera

Partindo da relação das centrífugas com os fenômenos que ocorrem na atmosfera da Terra, temos também a determinação do chamado “Topo da Atmosfera” no raio interno da centrífuga. Esse é um ponto de grande importância, pois apresenta uma série de motivações práticas relacionadas à validade do modelo e às técnicas computacionais utilizadas. A descrição do escoamento do gás no interior da centrífuga envolve a solução das Equações de Navier-Stokes, que possuem validade questionável em regiões de baixas pressões e densidade, onde o transporte de massa passa a ser molecular e o meio não é mais considerado contínuo. Já quanto ao Método de Diferenças Finitas, utilizado na discretização das equações do modelo do escoamento, a determinação de um ponto para início da malha afastado do raio do cilindro, gera uma redução do custo computacional e permite a alocação de pontos em regiões de maior importância na descrição do escoamento [2, 8].

A equação diferencial que modela o gradiente de pressão p de um gás de massa molar M sob atuação de um campo centrífugo $\omega^2 r$, sob condição de uma temperatura média constante T_0 é [5]

$$\frac{dp}{dr} = \frac{\omega^2 r p}{RT_0}, \quad (2.8)$$

onde, R é a constante dos gases ideais. A integração da Equação 2.8 partindo da parede, onde $r = a$, análogo à superfície da Terra, e um ponto arbitrário r em direção ao eixo da máquina. Logo, após separar as variáveis da Equação 2.8, temos a integral

$$\int_a^r \frac{dp}{p} = \frac{M\omega^2}{RT_0} \int_a^r r' dr', \quad (2.9)$$

$$\ln p \Big|_a^r = \frac{M\omega^2}{RT_0} \frac{r'^2}{2} \Big|_a^r, \quad (2.10)$$

$$\ln \left[\frac{p(r)}{p(a)} \right] = \frac{M\omega^2(r^2 - a^2)}{2RT_0}, \quad (2.11)$$

$$\frac{p(r)}{p(a)} = \exp \left[\frac{M\omega^2(r^2 - a^2)}{2RT_0} \right]. \quad (2.12)$$

Temos que $p(a)$ é a pressão na parede da máquina, que será denominada p_w e introduzimos na Equação 2.12 a quantidade adimensional A^2 , que é a razão entre a velocidade tangencial da máquina, dada pela parcela ωa , dividido por $\sqrt{2RT_0/M}$, que é a velocidade molecular mais provável do gás de processo [21]. No total, a máquina apresenta número de escalas de altura x igual a A^2 [8]. Esse parâmetro é calculado como

$$A^2 = \frac{M\omega^2 a^2}{2RT_0}. \quad (2.13)$$

Portanto, a distribuição de pressão dentro da máquina é dada por

$$p(r) = p_w \exp \left[-A^2 \left(1 - \frac{r^2}{a^2} \right) \right]. \quad (2.14)$$

Na determinação do topo da atmosfera fazemos a substituição da coordenada radial r por um parâmetro adimensional denominado escala de altura x , que é definida como [21]

$$x = A^2 \left(1 - \frac{r^2}{a^2} \right). \quad (2.15)$$

Substituindo a escala de altura na Equação 2.14, temos

$$p(r) = p_w e^{-x}. \quad (2.16)$$

Na Equação 2.16, podemos substituir a pressão pela densidade através da Lei dos Gases Ideais pelas seguintes relações

$$p_w = \rho_w \frac{RT_0}{M}, \quad (2.17)$$

$$p(r) = \rho(r) \frac{RT_0}{M}, \quad (2.18)$$

Substituindo as relações das Equações 2.17 e 2.18 na Equação 2.16 e simplificando, temos

$$\rho(r) = \rho_w e^{-x}. \quad (2.19)$$

A posição interna em direção ao eixo da máquina que será o topo da atmosfera é o

ponto x_0 , onde o caminho médio λ das moléculas gasosas torna-se igual a uma unidade de escala de altura. O caminho médio é definido por [21]

$$\lambda = \frac{M}{\sqrt{2\pi\sigma^2\rho_0 N_{av}}}, \quad (2.20)$$

onde, N_{av} é o Número de Avogadro, ρ_0 é a densidade no topo da atmosfera e σ é o diâmetro molecular do UF_6 , que tem valores típicos de 4 a 6 Å. A densidade no topo da atmosfera é substituída pela distribuição da parede até o ponto x_0 , dada pela Equação 2.19, logo [21]

$$\lambda = \frac{Me^x}{\sqrt{2\pi\sigma^2\rho_w N_{av}}}. \quad (2.21)$$

Definindo $\lambda = a/2A^2$ no ponto x_0 , a posição do topo da atmosfera pode ser determinada pela Equação 2.22 [21]

$$x_0 = \ln \left[\frac{\pi\sigma^2 N_{av}\rho_w a}{\sqrt{2}A^2 M} \right]. \quad (2.22)$$

Finalmente, o valor de x_0 encontrado pode ser transformado em um ponto nas coordenadas físicas da máquina, como explicitado na Equação 2.23

$$r = a\sqrt{1 - \frac{x_0}{A^2}}. \quad (2.23)$$

Determinado o ponto do topo da atmosfera como apresentado acima, para garantir que esse ponto é a fronteira até a qual temos a região onde ocorre o transporte difusivo, calculamos um parâmetro adimensional chamado de Número de Knudsen. Este parâmetro é definido como a razão entre o livre caminho médio molecular (λ) e o comprimento característico de uma escala de altura ($a/2A^2$) [21, 8]. Para a centrífuga, temos

$$Kn = \frac{2MA^2 e^x}{\sqrt{2}\pi\sigma^2\rho_w N_{av}a}. \quad (2.24)$$

Para posições no raio a partir da parede que resultam em valores do Número de Knudsen menores do que a unidade, temos o transporte difusivo, e para posições radiais que resultam em números maiores do que unidade, o transporte molecular é predominante. Por exemplo, para uma máquina operando a 300K, com densidade na parede de 1.72 kg/m^3 , com raio $a = 0.25\text{m}$ e $A^2 = 23.81$, temos na parede da máquina $Kn = 2.47 \times 10^{-4}$, no

eixo da máquina $Kn = 2.00 \times 10^6$ e, finalmente, no topo da atmosfera na coordenada x_0 temos $Kn = 0.74$, garantindo que nessa região entre a parede da máquina e o topo da atmosfera temos o transporte difusional [8].

Capítulo 3

Modelagem Matemática de uma Ultracentrífuga a Contracorrente

3.1 Introdução

Uma vez definidos no Capítulo 2 os quatro mecanismos básicos de geração de contracorrente no interior da centrífuga, deve-se definir como é feita a análise teórica do poder separativo do processo de enriquecimento, que é dividida em duas partes principais:

- A primeira parte consiste da geração do perfil de velocidade do gás no interior da máquina através da solução das Equações de Navier-Stokes, junto com a Equação da Continuidade, Balanço de Energia e a Equação dos Gases Ideais;
- A segunda parte compreende a análise separativa propriamente dita, que é computada através da solução da Equação de Transporte Difusivo-Convectivo, que recebe de entrada o perfil de velocidade calculado na etapa anterior.

3.2 Equações da Gás-Dinâmica

A análise Gás-Dinâmica da centrífuga assume algumas hipóteses simplificadoras, são elas: regime estacionário, escoamento axisimétrico e gás de processo monoatômico, como apresentado em [26], tem-se então o conjunto de equações, onde a Equação 3.1 é a Equação da Continuidade, as Equações 3.2, 3.3 e 3.4 são respectivamente as componentes axial, radial e azimutal das Equações de Navier-Stokes, a Equação 3.5 é a Equação de Balanço de Energia e a Equação 3.6 é a Lei dos Gases Ideais.

$$\frac{\partial}{\partial z}(\rho V_z) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(\rho r V_r) = 0, \quad (3.1)$$

$$\rho \left(V_z \frac{\partial V_z}{\partial z} + V_r \frac{\partial V_z}{\partial r} \right) = -\frac{\partial p}{\partial z} + \mu \left(\nabla^2 V_z + \frac{1}{3} \frac{\partial}{\partial z} \text{div } V \right), \quad (3.2)$$

$$\rho \left(V_z \frac{\partial V_r}{\partial z} + V_r \frac{\partial V_r}{\partial r} - \frac{V_\theta^2}{r} \right) = -\frac{\partial p}{\partial r} + \mu \left[\left(\nabla^2 - \frac{1}{r^2} \right) V_r + \frac{1}{3} \frac{\partial}{\partial r} \text{div } V \right], \quad (3.3)$$

$$\rho \left(V_z \frac{\partial V_\theta}{\partial z} + V_r \frac{\partial V_\theta}{\partial r} + \frac{V_r V_\theta}{r} \right) = \mu \left(\nabla^2 - \frac{1}{r^2} \right) V_\theta, \quad (3.4)$$

$$\rho C_v \left(V_z \frac{\partial T}{\partial z} + V_r \frac{\partial T}{\partial r} \right) + p \text{div } V = \kappa \nabla^2 T + \varphi_{visc}, \quad (3.5)$$

$$p = \frac{R}{M} \rho T, \quad (3.6)$$

onde φ_{visc} é definida como

$$\begin{aligned} \varphi_{visc} = 2\mu \left\{ \left(\frac{\partial V_z}{\partial z} \right)^2 + \left(\frac{\partial V_r}{\partial r} \right)^2 + \frac{V_r^2}{r^2} \right. \\ \left. + \frac{1}{2} \left[\left(\frac{\partial V_\theta}{\partial z} \right)^2 + \left(\frac{\partial V_r}{\partial z} + \frac{\partial V_z}{\partial r} \right)^2 + \left(\frac{\partial V_\theta}{\partial r} - \frac{V_\theta}{r} \right)^2 \right] - \frac{1}{3} (\text{div } V)^2 \right\}, \end{aligned} \quad (3.7)$$

onde $\text{div } V$ é

$$\text{div } V = \frac{\partial V_z}{\partial z} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(r V_r), \quad (3.8)$$

e finalmente, ∇^2 é definido como

$$\nabla^2 = \frac{\partial^2}{\partial z^2} + \frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}. \quad (3.9)$$

O sistema de equações está em coordenadas cilíndricas, com (r, θ, z) as coordenadas radial, azimutal e axial, respectivamente, e (V_r, V_θ, V_z) são as componentes do vetor V de velocidade nas direções radial, azimutal e axial. As variáveis termodinâmicas de pressão, densidade e temperatura são representadas por (p, ρ, T) , respectivamente.

As Equações 3.1 a 3.5 representam equações de conservação de massa, momento e energia, porém para transformar esse conjunto de equações em um sistema fechado, faz-se necessário o uso de equações adicionais ou relações constitutivas do fluido. Dependendo da característica do sistema modelado, essas relações podem ser produzidas, porém no

caso de fluídos, existem equações oriundas de áreas como Termodinâmica, Transferência de Calor e outras, que podem ser utilizadas para o fechamento. Por exemplo, as relações constitutivas para um fluído Newtoniano, como a Lei de Newton ou a de Fourier, e para o caso de um fluído ser considerado um gás ideal, temos a Equação da Lei dos Gases Ideais como relação constitutiva para o fechamento, como é utilizado no presente trabalho, dada pela Equação 3.6 [17, 23].

Além das hipóteses físicas e geométricas consideradas, assume-se que o gás no interior da máquina gira com a mesma velocidade angular do rotor, numa aproximação chamada de movimento de corpo rígido, ou *Wheel Flow*. O movimento de contracorrente passa a ser então uma circulação do gás superimposta ao movimento de corpo rígido considerado. O movimento axial de contracorrente leva à mudança da direção de separação de radial para axial, aumentando consideravelmente o poder de enriquecimento. Assim como, permite que a fração enriquecida seja removida no topo e a empobrecida na base da máquina. Dessa forma, as velocidades e as variáveis termodinâmicas são reescritas em termos de uma solução de equilíbrio mais uma perturbação [21, 26]

$$\begin{aligned} V_r &= 0 + u; V_\theta = \omega r + v; V_z = 0 + w; \\ p &= p_{eq} + \bar{p}; \rho = \rho_{eq} + \bar{\rho}; T = T_0 + \bar{T}. \end{aligned} \quad (3.10)$$

Assim, temos para as velocidades a solução de corpo rígido com a condição de não deslizamento e adicionamos as componentes da perturbação. Para o caso da pressão e densidade, temos a solução de equilíbrio dada pela Lei de Boltzmann e a adição das perturbações. Por fim, para a temperatura, temos a temperatura média da máquina T_0 e sua respectiva perturbação [21]. A parte em equilíbrio da solução da pressão e densidade, é dada pela distribuição de gás sob ação do campo centrífugo como calculada pela Lei de Boltzmann, como

$$p_{eq}(r) = p_w \exp \left[-A^2 \left(1 - \frac{r^2}{a^2} \right) \right], \quad (3.11)$$

$$(3.12)$$

$$\rho_{eq}(r) = \rho_w \exp \left[-A^2 \left(1 - \frac{r^2}{a^2} \right) \right], \quad (3.13)$$

onde A^2 é uma quantidade adimensional, relacionada ao número de escalas de altura

dentro da máquina, p_w e ρ_w são a pressão e a densidade na parede da máquina, respectivamente. Tanto a densidade quanto a pressão na parede são parâmetros controláveis da centrífuga, que podem ser ajustados pela velocidade e pela quantidade de gás na máquina, bem como, pelo tamanho, posição e número de buracos na placa que separa a câmara de separação do coletor da fração enriquecida na tampa superior, e também pela posição do coletor que remove a fração empobrecida na base da máquina. A taxa de extração do produto da máquina tem relação com p_w e ρ_w , com a capacidade das linhas retirarem o gás de dentro da máquina, que é ajustável por válvulas, e pela taxa de alimentação de gás na máquina. Assim, ajustando a alimentação e controlando as linhas de saída, a pressão e a densidade na parede são controladas [21]. Porém, a pressão e a temperatura devem ser ajustadas de forma a manter o hexafluoreto de urânio em forma gasosa, e o diagrama de fase da Figura 3.1 serve como referência para esse ajuste.

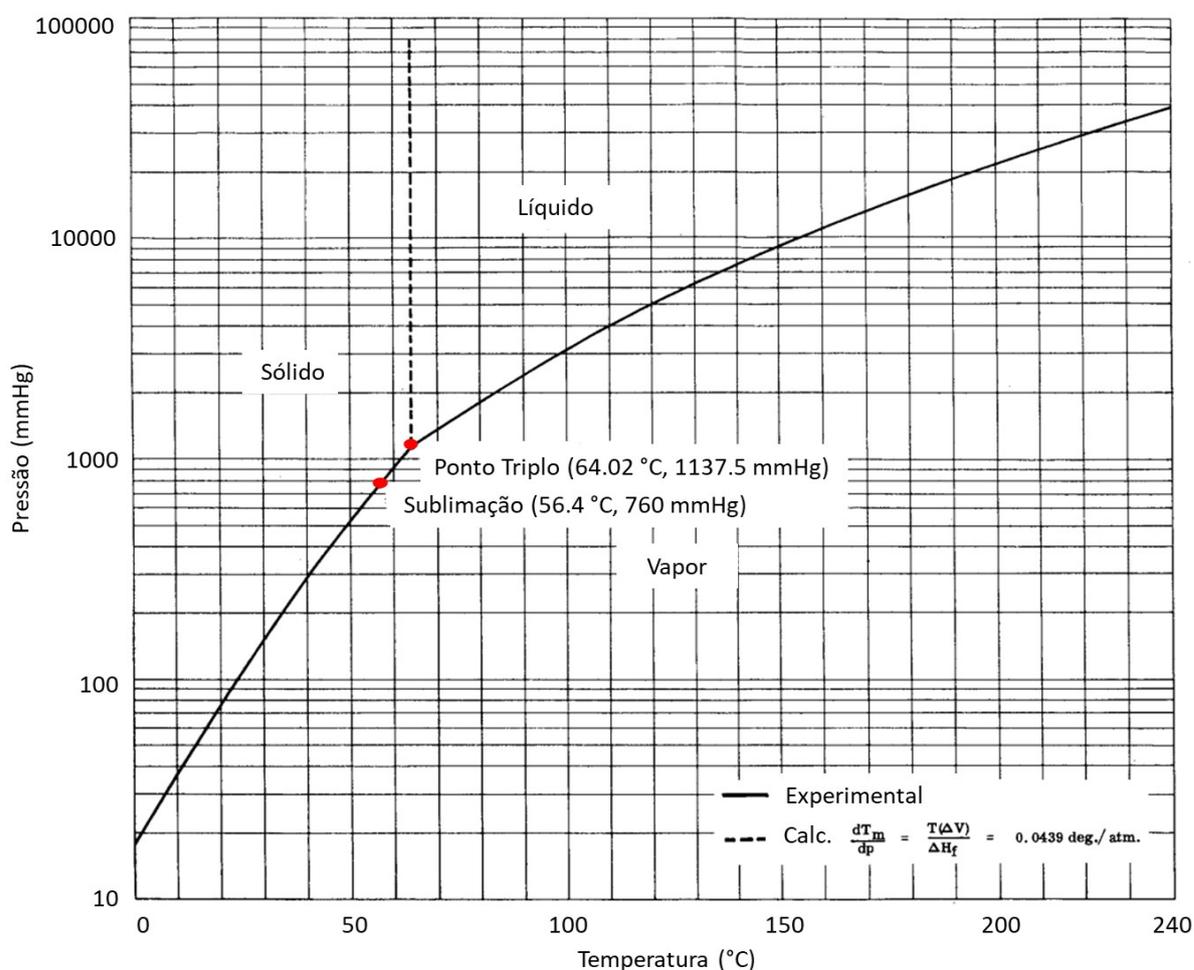


Figura 3.1: Diagrama de fase indicando as fronteiras entre as três fases do UF_6 em função da temperatura e da pressão interna da máquina. Adaptado de [7].

A função de fluxo, que é também fundamental na análise separativa para calcular os

fluxos de produto e de rejeito na máquina, é dada por

$$F(r, z) = 2\pi \int_0^r \rho w(r', z) r' dr'. \quad (3.14)$$

A contracorrente axial é introduzida pelos quatro mecanismos já apresentados no Capítulo 2, e teoricamente eles podem ser modelados independentemente. O efeito na circulação do gás se deve ao somatório da contribuição de cada mecanismo de geração de contracorrente. O fluxo de massa na direção axial pode ser escrito da seguinte forma [21]

$$\rho w = (\rho w)_W + (\rho w)_F + (\rho w)_s + (\rho w)_E, \quad (3.15)$$

onde w é a componente axial de velocidade do fluido e ρ é a densidade do gás, que como visto é função da posição radial. O produto da densidade com a velocidade é o fluxo de massa axial por unidade de área. Os subscritos W , F , s , E se referem à diferença de temperatura na parede, fluxo de alimentação, presença dos coletores na câmara de separação e a diferença de temperatura entre as tampas. Os fluxos total e de cada parcela são calculados como na Equação 3.14 [21, 26].

3.3 Análise Separativa

A análise separativa é obtida através da solução da equação diferencial de transporte Difusivo-Convectivo, que utiliza os perfis de velocidade, pressão, densidade e temperatura gerados pelas equações da análise Gás-Dinâmica, bem como, a diferença de massa dos dois isótopos. Essa solução indica a natureza e a extensão da separação atingida pela máquina, cuja equação se apresenta na seguinte forma geral [5]

$$\rho u \frac{\partial N}{\partial r} + \rho w \frac{\partial N}{\partial z} = \frac{\rho D}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[r \frac{\partial N}{\partial r} + \frac{\Delta M}{RT_0} (r\omega + v)^2 N(1 - N) \right] + \rho D \frac{\partial^2 N}{\partial z^2}, \quad (3.16)$$

onde, os termos u , v e w acima são as velocidades calculadas pelas equações da Gás-Dinâmica, N é a fração isotópica do U^{235} , ΔM é a diferença da massa molar dos isótopos UF_6^{238} e UF_6^{235} , e ρD o coeficiente de autodifusão. Os parâmetros físicos do UF_6 utilizados nas simulações podem ser encontrados na literatura para diversas faixas de temperatura, como é apresentado na Tabela 3.1 [5, 7].

Após a solução da equação de transporte Difusivo-Convectivo, a fração de produto e

Parâmetro	Equação	Faixa de temperatura
ρD ($10^5 Pa.s$)	$\rho D = (1.529)(0.6163 T^{0.933})$	303 – 473K
	$\rho D = (1.32)(0.6163 T^{0.933})$	
μ ($Pa.s$)	$\mu = 2.10 \times 10^{-7} T^{0.799}$	0 – 200°C
M (kg/mol)	0.352	25°C
ρ (g/cm^3)	$\rho = \frac{4.291 P}{T[1-1.3769 \times 10^6 P/T^3]}$	30 – 140°C

Tabela 3.1: Parâmetros físico-químicos utilizados nas simulações [7].

rejeito podem ser estimadas através das integrais abaixo [5]

$$N_p = \frac{2\pi}{P} \int_{r_p - \Delta_p}^{r_p + \Delta_p} \rho w(r, Z) N(r, Z) r dr, \quad (3.17)$$

$$N_w = -\frac{2\pi}{W} \int_{r_w - \Delta_w}^{r_w + \Delta_w} \rho w(r, 0) N(r, 0) r dr. \quad (3.18)$$

A saída do produto é assumida como uma região anelar de raio r_p e espessura $2\Delta_p$, e a saída de rejeito é abordada de maneira semelhante. O sinal negativo na fração molar do rejeito se deve ao fato que o componente de velocidade axial w deixando a máquina pela tampa inferior ser negativa quando interpretada no sistema de referência adotado [21]. Nas equações anteriores P e W são os fluxos ascendentes e descendentes, respectivamente, e são relacionados pelo parâmetro de corte (*cut*)

$$\Theta = \frac{P}{L}, \quad (3.19)$$

onde L é a concentração da alimentação, sendo a soma do produto e do rejeito $L = P + W$.

Capítulo 4

Modelos Simplificados e Métodos Numéricos Empregados na Solução

4.1 Introdução

As condições do escoamento no interior da centrífuga são extremamente severas, com o gás atingindo velocidades supersônicas, associado a um número de Reynolds excedendo 10^6 , e impondo gradientes de pressão e densidade elevados entre o raio interno e a parede da máquina. Além disso, há a presença de camadas limite, tal que o gás se apresenta de forma contínua apenas em uma região até aproximadamente 1 cm distante da parede da máquina. A partir desse ponto em direção ao eixo, temos uma região de quase vácuo onde o transporte de massa não é mais difusional, e sim molecular. Nessa região as Equações de Navier-Stokes têm validade questionável e não são mais aplicáveis. Todas essas considerações sobre a natureza física do sistema limitam a aplicação dos principais métodos numéricos, gerando soluções instáveis ou fisicamente pouco realistas. Assim, mesmo os mais poderoso códigos comerciais CFD disponíveis no mercado são incapazes de solucionar o escoamento no interior das centrífugas [2, 21].

No âmbito dos programas nucleares nacionais, países como França e Japão desenvolveram códigos para simulação numérica do desenvolvimento do escoamento no interior das máquinas de forma a otimizar os parâmetros de operação das máquinas individualmente, e das cascatas como um todo. A França concebeu dois conhecidos códigos desenvolvidos por equipes contratadas pela CEA (*Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives*, em português: Commissariado de Energia Atômica e Energias Alternativas) para a simulação do escoamento. O primeiro foi o CENTAURE, desenvolvido nos anos 70 pela CEA com o suporte da CISI (*Compagnie Internationale de Services en Informatique*,

em tradução livre, Empresa Internacional de Serviços de Computação), que faz uso do método de Elementos Finitos com métodos diretos de solução para o sistema de equações linearizadas [27]. Outro código desenvolvido pela CEA foi o MOLINA, que soluciona o sistema não-linear de equações através do método de Volumes Finitos e o método iterativo QCGS [22]. No Japão, a *Tokai Works, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation* financiou o desenvolvimento de modelos para simulação baseados no método de Diferenças Finitas para a solução do sistema de equações não-lineares através do Método de Newton [15]. Dessa forma, podemos ver que os modelos para simulação do escoamento em ultracentrífugas receberam quantidades consideráveis de recursos e envolveram diversos grupos de pesquisadores da área da mecânica dos fluídos, computação, entre outras, bem como instituições renomadas durante o desenvolvimento desses projetos.

A segunda etapa da análise do poder separativo da centrífuga, como apresentada no Capítulo 3, envolve a solução da equação de transporte Difusivo-Convectivo. Esta é fortemente dependente da qualidade da solução numérica obtida para o perfil de velocidades e variáveis termodinâmicas. Dessa forma, deve-se obter uma solução de boa qualidade capaz de descrever o escoamento dentro da máquina, uma vez que ele é controlado pelas camadas limites de Stewartson na parede, e de Ekman nas tampas. As camadas podem ser vistas na Figura 4.1 [15].

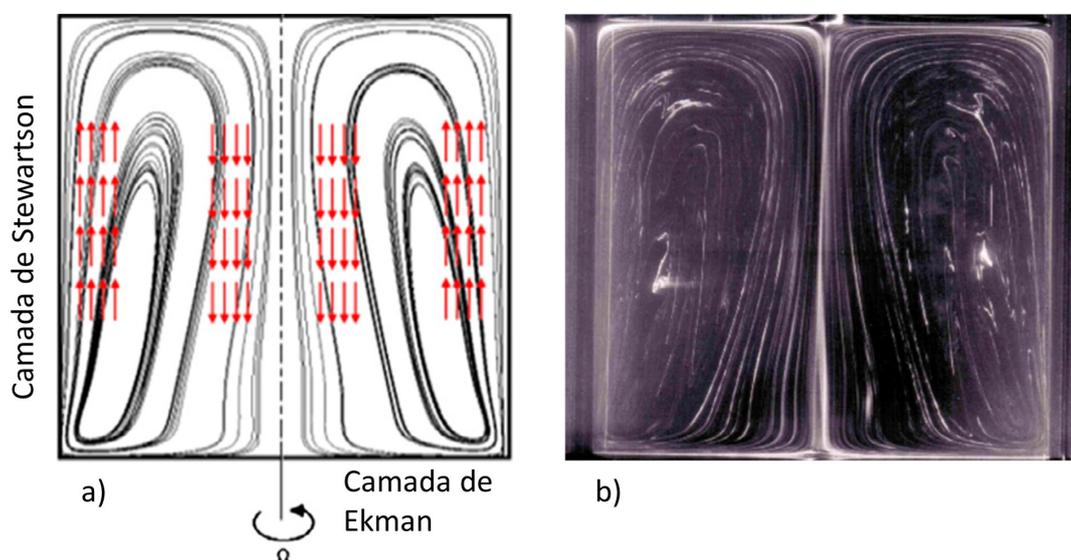


Figura 4.1: a) Esquema indicando a localização das camadas limites dentro de uma cavidade cilíndrica e b) experimento mostrando as camadas limites. Adaptado de [19].

Para uma modelagem adequada, uma série de considerações são feitas para simplificar e possibilitar a solução das equações no domínio da máquina, como solução de vaso longo, remoção dos termos de compressibilidade na Equação da Energia, introdução de pequenas

perturbações nas condições de contorno das velocidades para descrever os coletores no topo e na base da máquina, entre outras. Porém, todas as simplificações levam a obtenção de um resultado apenas fisicamente aproximado da distribuição real dentro da máquina. Apesar dessa limitação, a modelagem numérica é a única alternativa para compreender os complexos fenômenos de circulação e recirculação do gás, uma vez que os experimentos são impossíveis, pois como já foi dito, o gás está limitado a uma região de aproximadamente 1 cm dentro da máquina [2, 15].

As malhas escolhidas para discretizar o domínio da máquina também apresentam forte influência nos resultados obtidos pela simulação numérica, pois para soluções que contêm regiões localizadas de rápidas variações, mais pontos são requeridos nessa região para descrever o fenômeno com maior resolução [30]. Na direção radial, a malha deve ser, como mostrado na Figura 4.4. A direção axial também recebe similar tratamento de malhas não uniformes, como visto na Figura 4.5, porém a malha deve se refinar próximo às duas tampas de forma a possibilitar uma adequada descrição do escoamento nessas regiões. A fórmula para a transformação do domínio irregular físico, onde mais pontos são alocados nas fronteiras que ocorrem camadas limites, para um domínio regular é dada pela Equação 4.1 [1, 15]

$$\xi = \frac{\ln[(\beta_r + r/a)/(\beta_r - r/a)]}{\ln[(\beta_r + 1)/(\beta_r - 1)]}, \quad (4.1)$$

onde, β_r é o parâmetro de distorção (*stretching*) da malha na direção r , ξ é a variável transformada, e a é o raio da máquina. A Equação 4.1 faz a transformação de uma malha irregular com mais pontos alocados na parede da máquina, como na Figura 4.4, em uma malha computacional regular. Para a transformação na direção z , temos [1]

$$\eta = \frac{1}{2} + \frac{\ln[(\beta_z + 2z/h - 1)/(\beta_z - 2z/h + 1)]}{2\ln[(\beta_z + 1)/(\beta_z - 1)]}, \quad (4.2)$$

onde, β_z é o parâmetro de distorção da malha na direção z , η é a variável transformada, e h é a altura da máquina. A Equação 4.2 é a responsável pela transformação da malha da Figura 4.5 em um domínio regular. Esse tipo de malha não-uniforme é recomendada na literatura, onde temos o CENTAURE que sugere uma malha não-uniforme com a condição adicional de conservação de massa, onde cada célula da malha possui a mesma quantidade de massa, como pode ser visto nas Figuras 4.2 e 4.3. O códigos desenvolvidos para a *Tokai Works* e o MOLINA também fazem uso de malhas não-uniformes usando um esquema de distribuição de pontos na malha como o apresentado na Figura 4.6, porém

não são dados maiores detalhes sob os parâmetros utilizados na construção [15, 27].

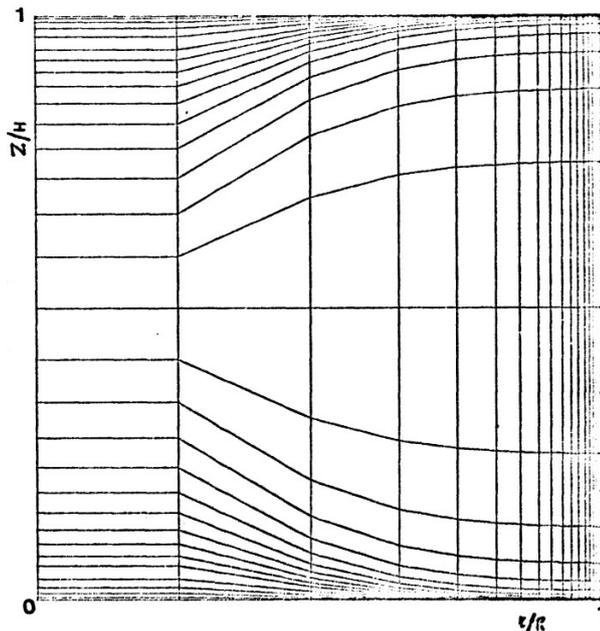


Figura 4.2: Malha de Elementos Finitos do CENTAURE com a condição de conservação de massa. Extraído de [27].

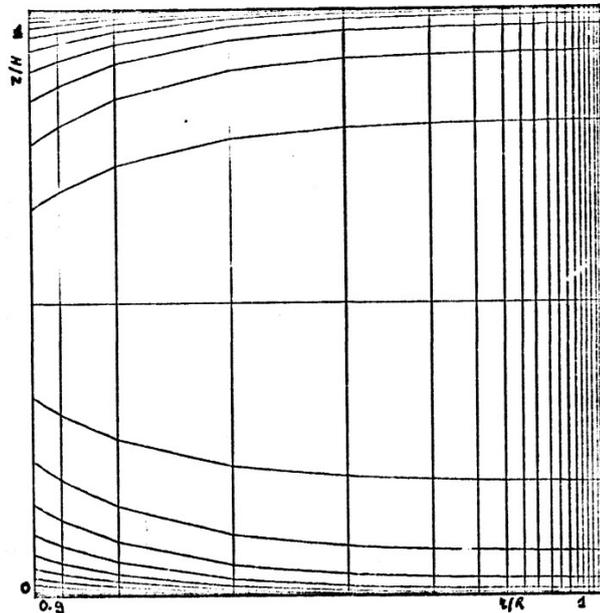


Figura 4.3: Malha alternativa de Elementos Finitos do CENTAURE com formato anular seguindo a condição de conservação de massa. Extraído de [27].

As camadas limite horizontais próximas às tampas tem espessuras da ordem de $(\epsilon/\rho)^{1/2}$ e é utilizado na determinação de β_z , e a camada vertical próxima à parede da máquina tem espessura de $\epsilon^{1/3}$ e é utilizada no cálculo de β_r , onde ϵ é chamado de número de Ekman e é definido na Equação 4.3. Apesar das malhas não uniformes serem

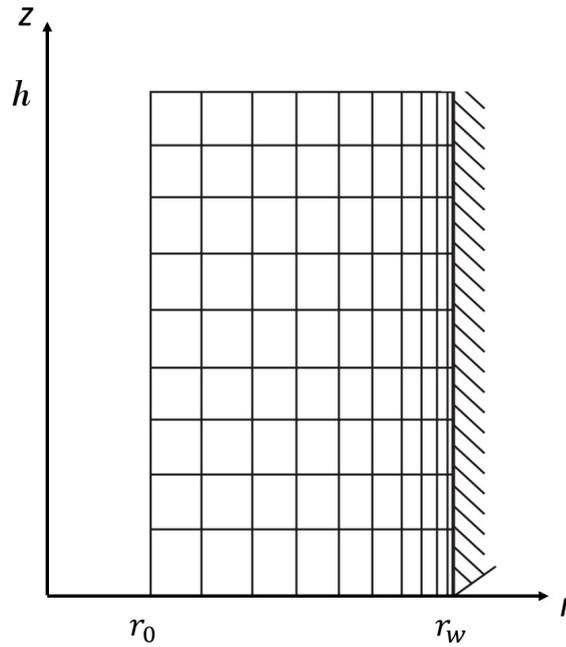


Figura 4.4: Esquema de malha distorcida na direção radial partindo do Topo da Atmosfera em r_0 até a parede da máquina em r_w , onde se localiza a camada limite. Adaptado de [1].

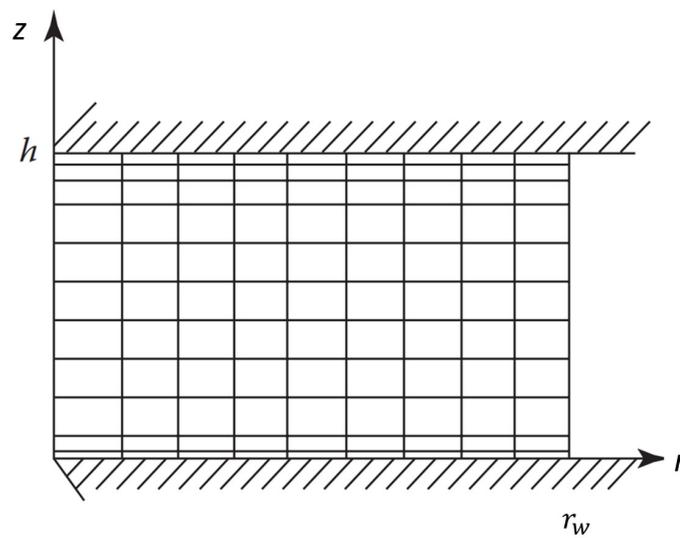


Figura 4.5: Esquema de malha distorcida na direção axial para tratar as camadas limite próximas às tampas. Adaptado de [1].

fundamentais para a correta descrição do escoamento, com números de Ekman cada vez menores, a malha se torna excessivamente distorcida, o que causa uma redução da ordem de precisão da aproximação das derivadas parciais pelas Diferenças Finitas [3, 21].

$$\epsilon = \frac{\mu}{\rho_w \omega a^2}. \quad (4.3)$$

Para o caso em que as equações de Navier-Stokes são empregadas em sua forma não-linear, métodos numéricos iterativos, como o Método de Newton, são utilizados para a solução do sistema de equações. Essas abordagens também são associadas ao uso de malhas não uniformes em um arranjo desencontrado (*staggered*) como apresentado na Figura 4.6, onde as velocidades são definidas nos contornos das células, e as variáveis termodinâmicas são definidas no nó central da células. Esse arranjo de pontos é utilizado no código MOLINA da CEA e no código da *Tokai Works* [15, 22].

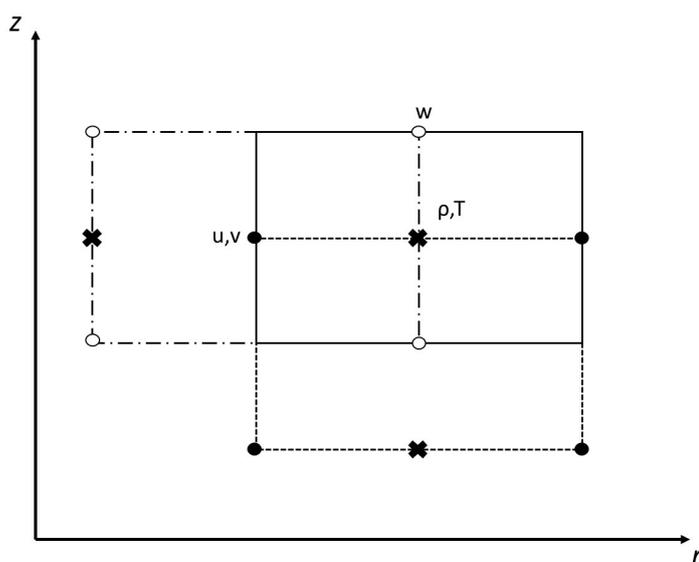


Figura 4.6: Esquema de uma malha de arranjo desencontrado (*staggered*), onde as velocidades u e v são definidas nas fronteiras verticais da célula, a velocidade w é definida na fronteira horizontal e as variáveis termodinâmicas no nó central. Adaptado de [22].

Assim, pode-se observar que a modelagem numérica apresenta uma série de desafios para obtenção de resultados que sejam estáveis e consistentes com o fenômeno real de separação dentro da máquina. Também, temos uma série de simplificações necessárias para tornar o problema tratável numericamente, e uma série de parâmetros dos métodos empregados no modelo que devem ser adequadamente combinadas para gerar esses resultados, como os coeficientes de distorção da malha, o número de nós utilizados nos cálculos, a ordem de precisão utilizada na aproximação das derivadas parciais, entre outros.

Solucionando um modelo utilizando as equações do modelo linearizadas, e introduzindo as simplificações de uma centrífuga operando em refluxo total, ou seja, sem alimentação de gás, nem retirada das frações enriquecidas e empobrecidas nas tampas da máquina, temos o transporte axial de massa resultante da contracorrente [21], como visto na Figura 4.7. Esse perfil de transporte axial de massa em função das escalas de altura pode ser utilizado para validar a modelagem feita, uma vez que esses perfis são produto dos perfis

de densidade e velocidade axial encontrados após a solução, também, estão amplamente disponíveis na literatura para uma variedade de problemas exemplo [15, 21, 22, 26].

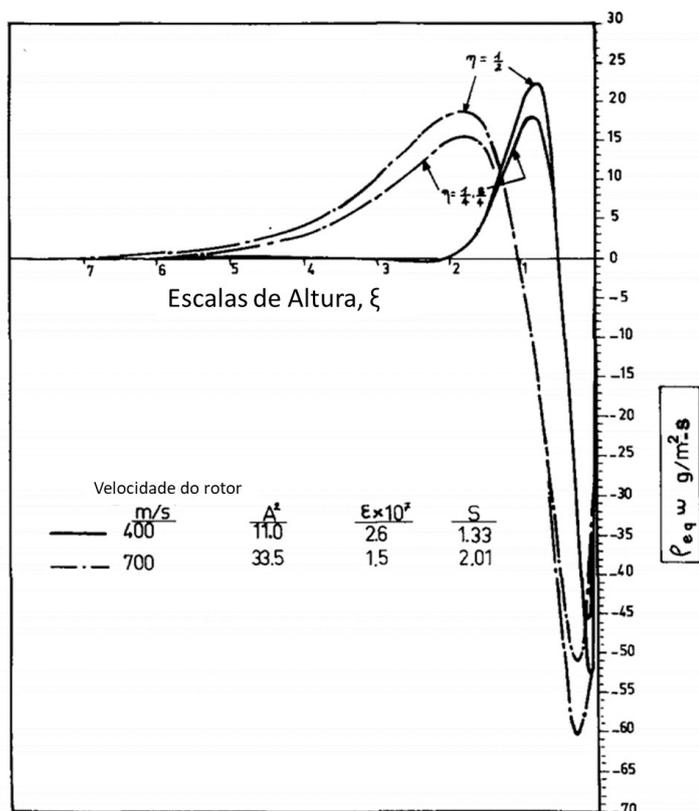


Figura 4.7: Distribuição radial do transporte de massa axial mostrando a intensidade da contracorrente. Adaptada de [21].

4.2 Modelo Simplificado 1

O primeiro modelo para a solução das equações da gás-dinâmica foi desenvolvido através da discretização das equações do modelo apresentado em [26]. Primeiramente, para esse modelo, são definidas as quantidades adimensionais e as perturbações da solução de corpo rígido

$$\begin{aligned}
 V_z &= \omega a \hat{w}, \quad V_r = \omega a \hat{u}, \quad V_\theta - \omega r = \omega a \hat{v}, \\
 p &= p_{eq}(1 + \hat{p}), \quad \rho = \rho_{eq}(1 + \hat{\rho}), \quad T = T_0(1 + \hat{T}), \\
 r &= a\zeta, \quad z = a\eta,
 \end{aligned}
 \tag{4.4}$$

onde, ζ e η são as coordenadas adimensionais para r e z , respectivamente. Introdu-

zindo as quantidades definidas nas Equações 4.4 nas equações da gás-dinâmica, temos

$$\operatorname{div} q + 2A^2\zeta\hat{u} = 0, \quad (4.5)$$

$$-2\hat{v} + \zeta\hat{T} + (2A^2)^{-1}\frac{\partial\hat{p}}{\partial\zeta} = \left(\frac{\epsilon}{E_R}\right) \left[\left(\nabla^2 - \frac{1}{\zeta^2}\right)\hat{u} + \frac{1}{3}\frac{\partial}{\partial\zeta}\operatorname{div} q \right], \quad (4.6)$$

$$2\hat{u} = \left(\frac{\epsilon}{E_R}\right) \left(\nabla^2 - \frac{1}{\zeta^2}\right)\hat{v}, \quad (4.7)$$

$$(2A^2)^{-1}\frac{\partial\hat{p}}{\partial\eta} = \left(\frac{\epsilon}{E_R}\right) \left(\nabla^2\hat{w} + \frac{1}{3}\frac{\partial}{\partial\eta}\operatorname{div} q\right), \quad (4.8)$$

$$-4b\zeta\hat{u} = \left(\frac{\epsilon}{E_R}\right) \nabla^2\hat{T}, \quad (4.9)$$

onde, a Equação 4.6 é a Equação da Continuidade, as Equações 4.7, 4.8 e 4.9 são o Momento Radial, Azimutal e Axial das Equações de Navier-Stokes e a Equação 4.9 é o Balanço de Energia. Finalmente, definem-se os operadores e outros parâmetros dependentes

$$\operatorname{div} q = \frac{1}{\zeta}\frac{\partial}{\partial\zeta}(\zeta\hat{u}) + \frac{\partial\hat{w}}{\partial\eta}, \quad \nabla^2(\zeta, \eta) = \frac{\partial^2}{\partial\zeta^2} + \frac{1}{\zeta}\frac{\partial}{\partial\zeta} + \frac{\partial^2}{\partial\eta^2}, \quad (4.10)$$

$$E_R = \exp[-A^2(1 - \zeta^2)], \quad b = \frac{(\gamma - 1)PrA^2}{2\gamma}, \quad Pr = \frac{\mu C_p}{\kappa},$$

onde, γ é a razão entre o calor específico a pressão constante (C_p) e o calor específico a volume constante (C_v), e para o UF_6 é aproximadamente 1.067, Pr é o número de Prandtl, que depende do gás e para o UF_6 é 0.95 [26].

4.3 Modelo Simplificado 2

Além da implementação do Modelo Simplificado 1, fez-se a construção independente de um modelo a partir das equações da gás-dinâmica apresentadas no Capítulo 3, introduzimos as quantidades adimensionais relativas a cada uma das variáveis do sistema já definidas na Equação 3.10. A principal diferença reside na utilização das métricas das transformações de um domínio físico irregular, para um domínio computacional com uma malha uniforme para evitar a distorção excessiva das células no domínio computacional. As equações das transformações são apresentadas nas Equações 4.1 e 4.2, logo

$$\frac{\partial \xi}{\partial r} = \frac{2\beta_r}{a[\beta_r^2 - (r/a)^2] \ln[(\beta_r + 1)/(\beta_r - 1)]} = R, \quad (4.11)$$

$$\frac{\partial \eta}{\partial z} = \frac{2\beta_z}{h[\beta_z^2 - (2z/h - 1)^2] \ln[(\beta_z + 1)/(\beta_z - 1)]} = F. \quad (4.12)$$

As transformações inversas são

$$r = \frac{a\beta_r \{ [(\beta_r + 1)/(\beta_r - 1)]^\xi - 1 \}}{1 + [(\beta_r + 1)/(\beta_r - 1)]^\xi} = a\bar{\xi}(\xi), \quad (4.13)$$

$$z = \frac{h \{ (\beta_z + 1) [(\beta_z + 1)/(\beta_z - 1)]^{(2\eta-1)} - \beta_z + 1 \}}{2 [(\beta_z + 1)/(\beta_z - 1)]^{(2\eta-1)}} = h\bar{\eta}(\eta), \quad (4.14)$$

onde, $\bar{\xi}$ e $\bar{\eta}$ são utilizadas para condensar termos das equações das transformações. Logo, o conjunto de Equações da Gás-Dinâmica é linearizado, as quantidades adimensionais e as transformações de coordenadas são introduzidas, o que resulta no sistema abaixo.

$$\rho_{eq} \left\{ \frac{R}{\bar{\xi}} \left[uD(2A^2\bar{\xi}^2 + 1) + \bar{\xi} \frac{\partial u}{\partial \xi} \right] + F \frac{\partial w}{\partial \eta} \right\} = 0, \quad (4.15)$$

$$\begin{aligned} -R \frac{\partial \bar{p}}{\partial \xi} + \mu \left\{ F^2 \frac{\partial^2 u}{\partial \eta^2} + \frac{4R^2}{3} \frac{\partial^2 u}{\partial \xi^2} + \frac{R(3 + RDa)}{3a\bar{\xi}} \frac{\partial u}{\partial \eta} + u \left[\frac{R^2 H}{\bar{\xi}} - \frac{1}{(a\bar{\xi})^2} \right] + \right. \\ \left. \frac{RF}{3} \frac{\partial^2 w}{\partial \xi \partial \eta} \right\} + a\bar{\rho}\omega^2\bar{\xi} + 2\omega\rho_{eq}v = 2R\rho_{eq}A^2D\bar{\xi} - a\rho_{eq}\omega^2\bar{\xi}, \end{aligned} \quad (4.16)$$

$$\mu \left[\nabla^2(\xi, \eta) + \frac{1}{(a\bar{\xi})^2} \right] v - u\rho_{eq}\omega(aRD + 1) = -\omega a \left(R^2 D_2 + \frac{RD}{a\bar{\xi}} - \frac{1}{a^2\bar{\xi}} \right), \quad (4.17)$$

$$-F \frac{\partial \bar{p}}{\partial \eta} + \mu \left(\frac{4F^2}{3} \frac{\partial^2 w}{\partial \eta^2} + R^2 \frac{\partial^2 w}{\partial \xi^2} + \frac{R}{a\bar{\xi}} \frac{\partial w}{\partial \xi} + \frac{FR}{3} \frac{\partial^2 u}{\partial \eta \partial \xi} + \frac{RFD}{3\bar{\xi}} \frac{\partial u}{\partial \eta} \right) = 0, \quad (4.18)$$

$$\kappa \nabla^2(\xi, \eta) \bar{T} - p_{eq} \text{div } q = 0, \quad (4.19)$$

$$\bar{p} = \left(\frac{M}{RT_0} \right) \bar{p} - \rho_{eq} \left(\frac{\bar{T}}{T_0} \right), \quad (4.20)$$

onde, a Equação 4.15 é a Equação da Continuidade, as Equações 4.16, 4.17 e 4.18 são,

respectivamente, os Momentos Radial, Azimutal e Axial, a Equação 4.19 é o Balanço de Energia e a Equação 4.20 é a Lei dos Gases Ideais. Finalmente, as quantidades D , H , D_2 e os operadores $\nabla^2(\xi, \eta)$ e $div q$ são definidas como

$$D = \frac{\partial \bar{\xi}}{\partial \xi}, \quad (4.21)$$

$$H = \frac{\partial}{\partial \xi} \left(\frac{D}{\bar{\xi}} \right), \quad (4.22)$$

$$D_2 = \frac{\partial^2 \bar{\xi}}{\partial \xi^2}, \quad (4.23)$$

$$\nabla^2(\xi, \eta) = F^2 \frac{\partial^2}{\partial \eta^2} + R^2 \frac{\partial^2}{\partial \xi^2} + \frac{R}{a\bar{\xi}} \frac{\partial}{\partial \xi}, \quad (4.24)$$

$$div q = F \frac{\partial w}{\partial \eta} + R \frac{\partial u}{\partial \xi} + \frac{RDu}{\bar{\xi}}, \quad (4.25)$$

onde, $q = q(u, v, w)$ é o vetor das perturbações que são introduzidas na solução de corpo rígido para representar a contracorrente. As equações linearizadas, adimensionadas e com o domínio transformado de uma malha física irregular para uma malha regular são discretizadas através das fórmulas de diferenças finitas que serão apresentadas a seguir. Esse processo resulta em um sistema de equações lineares em bloco, como pode ser visto da Figura 4.8. Esse sistema pode ser resolvido por métodos iterativos como Gauss-Seidel, ou métodos diretos, como Eliminação Gaussiana e a Pseudo-inversa de Moore-Penrose. Este último método se mostrou mais eficaz na solução do sistema linear.

Equações	Componentes					
	u	v	w	\bar{p}	$\bar{\rho}$	\bar{T}
Eq. da Continuidade						
Momento Radial						
Momento Azimutal						
Momento Axial						
Balanço de Energia						
Eq. de Estado						

Figura 4.8: As células hachuradas indicam as componentes presentes em cada equação.

4.4 Método das Diferenças Finitas

As fórmulas de Diferenças Finitas utilizadas para a discretização do conjunto de equações diferenciais parciais foram obtidas a partir da expansão em Série de Taylor, como apresentado em [18]. A primeira derivada é dada por

$$\frac{\partial f(r, z)}{\partial r} \approx \frac{f_{i+1,j} - f_{i-1,j}}{2\Delta r} + \mathcal{O}(\Delta r^2), \quad (4.26)$$

$$\frac{\partial f(r, z)}{\partial z} \approx \frac{f_{i,j+1} - f_{i,j-1}}{2\Delta z} + \mathcal{O}(\Delta z^2), \quad (4.27)$$

onde, $f(r, z)$ é a função qualquer cuja derivada está sendo aproximada, i e j são os índices para os pontos da malha na direção r e z , respectivamente, e Δr e Δz são os incrementos na direção r e z , respectivamente. A notação \mathcal{O} é uma notação do erro, que indica que este decai de forma proporcional ao Δr , ou o Δz [18]. A segunda derivada com segunda ordem de precisão é aproximada como

$$\frac{\partial^2 f(r, z)}{\partial r^2} \approx \frac{f_{i+1,j} - 2f_{i,j} + f_{i-1,j}}{\Delta r^2} + \mathcal{O}(\Delta r^2), \quad (4.28)$$

$$\frac{\partial^2 f(r, z)}{\partial z^2} \approx \frac{f_{i,j+1} - 2f_{i,j} + f_{i,j-1}}{\Delta z^2} + \mathcal{O}(\Delta z^2). \quad (4.29)$$

A derivada cruzada é aproximada com segunda ordem de precisão

$$\frac{\partial^2 f(r, z)}{\partial r \partial z} \approx \frac{f_{i+1,j+1} - f_{i+1,j-1} + f_{i-1,j-1} - f_{i-1,j+1}}{4\Delta r \Delta z} + \mathcal{O}(\Delta r^2, \Delta z^2). \quad (4.30)$$

Para as condições de contorno do tipo Von Neumann, foram utilizadas fórmulas de diferenças finitas avançadas e atrasadas de segunda ordem de precisão, que podem ser vistas a seguir, respectivamente

$$\frac{\partial f(r, z)}{\partial r} \approx \frac{-3f_{i,j}}{2\Delta r} + \frac{2f_{i+1,j}}{\Delta r} - \frac{f_{i+2,j}}{2\Delta r} + \mathcal{O}(\Delta r^2), \quad (4.31)$$

$$\frac{\partial f(r, z)}{\partial r} \approx \frac{3f_{i,j}}{2\Delta r} - \frac{2f_{i-1,j}}{\Delta r} + \frac{f_{i-2,j}}{2\Delta r} + \mathcal{O}(\Delta r^2). \quad (4.32)$$

Para malhas não uniformes, onde utilizamos incrementos diferentes entre cada ponto utilizado na discretização, temos a primeira derivada com segunda ordem de precisão

$$\begin{aligned} \frac{\partial f(r, z)}{\partial r} &\approx \frac{\Delta r^-}{\Delta r^+(\Delta r^+ + \Delta r^-)} f_{i+1, j} + \frac{(\Delta r^+)^2 - (\Delta r^-)^2}{\Delta r^+ \Delta r^- (\Delta r^+ + \Delta r^-)} f_{i, j} \\ &- \frac{\Delta r^+}{\Delta r^-(\Delta r^+ + \Delta r^-)} f_{i-1, j} + \mathcal{O}(\Delta r^2), \end{aligned} \quad (4.33)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial f(r, z)}{\partial z} &\approx \frac{\Delta z^-}{\Delta z^+(\Delta z^+ + \Delta z^-)} f_{i, j+1} + \frac{(\Delta z^+)^2 - (\Delta z^-)^2}{\Delta z^+ \Delta z^- (\Delta z^+ + \Delta z^-)} f_{i, j} \\ &- \frac{\Delta z^+}{\Delta z^-(\Delta z^+ + \Delta z^-)} f_{i, j-1} + \mathcal{O}(\Delta z^2), \end{aligned} \quad (4.34)$$

onde, Δr^+ e Δz^+ são os incrementos a frente do ponto (r, z) e Δr^- e Δz^- são os incrementos atrás do ponto (r, z) . A segunda derivada com segunda ordem de precisão

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 f(r, z)}{\partial r^2} &\approx \frac{2}{\Delta r^+(\Delta r^+ + \Delta r^-)} f_{i+1, j} - \frac{2}{\Delta r^+ \Delta r^-} f_{i, j} \\ &+ \frac{2}{\Delta r^-(\Delta r^+ + \Delta r^-)} f_{i-1, j} + \mathcal{O}(\Delta r^2), \end{aligned} \quad (4.35)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 f(r, z)}{\partial z^2} &\approx \frac{2}{\Delta z^+(\Delta z^+ + \Delta z^-)} f_{i, j+1} - \frac{2}{\Delta z^+ \Delta z^-} f_{i, j} \\ &+ \frac{2}{\Delta z^-(\Delta z^+ + \Delta z^-)} f_{i, j-1} + \mathcal{O}(\Delta z^2). \end{aligned} \quad (4.36)$$

A primeira derivada avançada com segunda ordem de precisão para a aplicação das condições de Von Neumann é

$$\begin{aligned} \frac{\partial f(r, z)}{\partial r} &\approx \frac{-\Delta r^+}{\Delta r^{++}(\Delta r^{++} + \Delta r^+)} f_{i+2, j} + \frac{(\Delta r^{++} + \Delta r^+)}{(\Delta r^{++} \Delta r^+)} f_{i+1, j} \\ &- \frac{(\Delta r^{++} + 2\Delta r^+)}{\Delta r^+(\Delta r^+ + \Delta r^+)} f_{i, j} + \mathcal{O}(\Delta r^2), \end{aligned} \quad (4.37)$$

onde, Δr^+ e Δr^{++} são o primeiro e o segundo incrementos a frente do ponto (r, z) .

Capítulo 5

Simulações e Discussão

5.1 Parâmetros de Processo da Máquina de Iguazu

A Máquina de Iguazu é uma máquina hipotética utilizada para validar códigos para o cálculo do escoamento dentro da ultracentrífuga. Foi apresentada no 5° *Workshop* de Fenômenos de Separação em Líquidos e Gases, realizado em Foz do Iguazu em 1996 [33]. Os parâmetros dessa máquina serão utilizados nas simulações e são apresentados na Tabela 5.1.

Parâmetro	Notação	Valor
Raio (m)	a	0.06
Altura (m)	h	0.48
Velocidade angular (rad/s)	ω	10000
Temperatura média (K)	T_0	300
Diferença de temperatura (K)	ΔT	6
Alimentação (kg_{UF_6}/s)	F	1.2×10^{-5}
Corte (adimensional)	Θ	0.45
Altura da injeção (m)	Z_h	0.24
Pressão na parede (kPa)	p_w	13.3
Número de Ekman (adimensional)	ϵ	4.32×10^{-8}
A^2 (adimensional)	A^2	25.4

Tabela 5.1: Parâmetros da Máquina de Iguazu [33].

5.2 Parâmetros de Processo da Máquina de Roma

Outra máquina desenvolvida para validar códigos para o cálculo do escoamento dentro da ultracentrífuga foi a Máquina de Roma. Foi apresentada em 1979 no *3rd Workshop on Gases in Strong Rotation*, realizado em Roma [25]. Os parâmetros dessa máquina serão utilizados nas simulações e são apresentados na Tabela 5.2.

Parâmetro	Notação	Valor
Raio (m)	a	0.25
Altura (m)	h	5.00
Velocidade angular (rad/s)	ω	2400
Temperatura média (K)	T_0	320
Diferença de temperatura (K)	ΔT	6
Alimentação (kg_{UF_6}/s)	F	2.0×10^{-4}
Corte (adimensional)	Θ	0.50
Altura da injeção (m)	Z_h	2.50
Pressão na parede (kPa)	p_w	13.3
Número de Ekman (adimensional)	ϵ	1.76×10^{-8}
A^2 (adimensional)	A^2	23.8

Tabela 5.2: Parâmetros da Máquina de Roma [25].

5.3 Condições de Contorno

As condições de contorno utilizadas, considerando apenas o mecanismo de ativação térmica por distribuição uniforme de temperatura pela parede (*Wall Thermal Drive*), podem ser vistas na Figura 5.1.

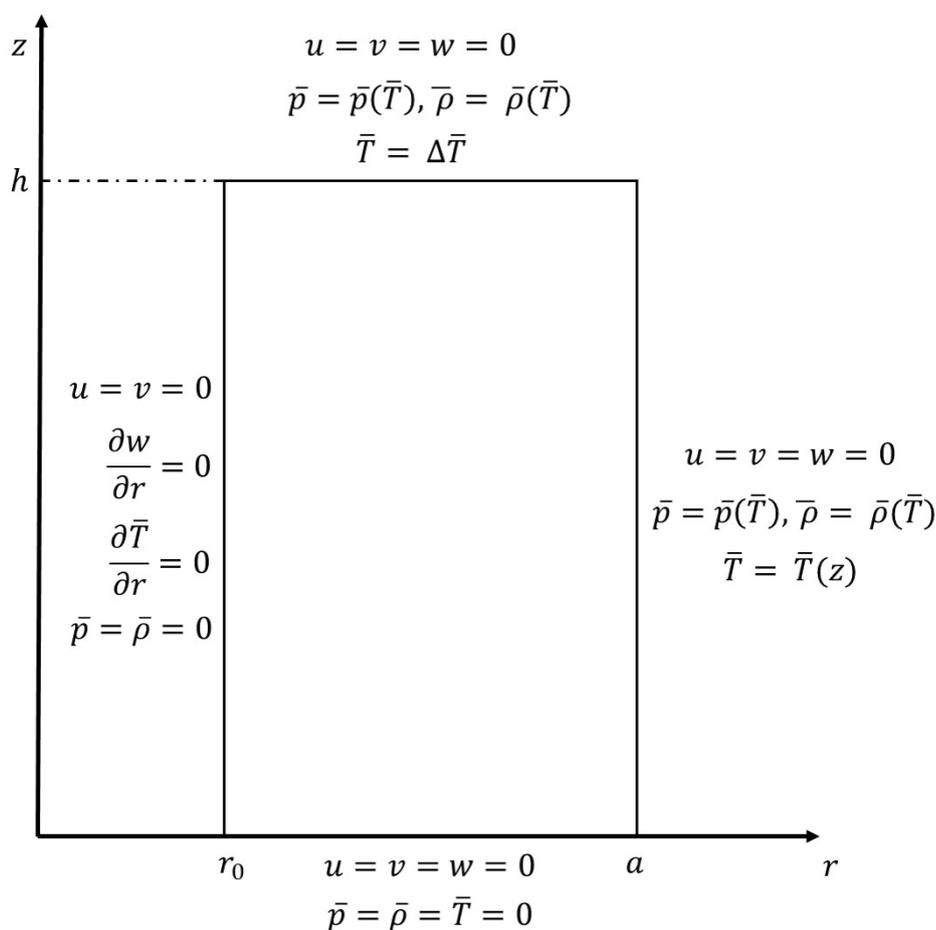


Figura 5.1: Condições de contorno para o mecanismo de ativação térmica de contracorrente.

Nas fronteiras sólidas, temos a condição de não-deslizamento para as velocidades em contato com as paredes, a perturbação da temperatura que é um parâmetro da máquina, bem como o reflexo dessa perturbação nas perturbações da densidade e pressão. Finalmente, no raio interno temos a condição de fronteira adiabática.

5.4 Simulações da Máquina de Iguaçu através do Modelo Simplificado 1

A primeira abordagem é através do Modelo Simplificado 1 para a solução do conjunto de equações linearizado da Gás-Dinâmica fez uso do Método de Diferenças Finitas (MDF) Centrado de Segunda Ordem de Precisão com uma malha uniforme aplicado nas equações na forma apresentadas na Seção 4.2. O sistema de equações resultante da aplicação do MDF foi resolvido por Eliminação Gaussiana através da função contrabarra (*backslash*) do MATLAB[®], que gerou os perfis de velocidade radial, azimutal e axial e de pressão e temperatura. A malha utilizada tem 100 partições na direção ξ e 149 na direção η , onde as variáveis ξ e η são as formas adimensionais das coordenadas físicas radial (r) e axial (z) da máquina. O resultado para a velocidade axial (w) gerado a partir das condições de contorno de diferença de temperatura ao longo da parede (*Wall Thermal Drive*) é apresentado na forma de vista isométrica e de contorno na Figura 5.2.

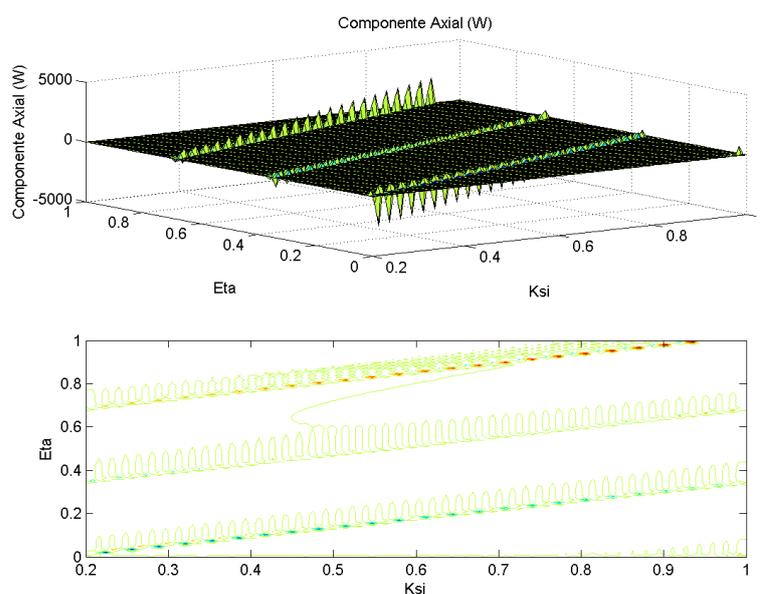


Figura 5.2: Distribuição axial de velocidade para malha uniforme [6]

Uma vez que é reconhecida na literatura [21] a presença de camadas limites próximo às fronteiras sólidas da máquina (na parede e nas tampas), mais pontos foram alocados nessas regiões com o uso de malha não-uniforme. O perfil de velocidade axial resultante pode ser visto na Figura 5.3.

Buscando reduzir as oscilações espúrias na solução, uma fórmula de Diferenças Finitas foi desenvolvida a partir da integração da Equação da Continuidade como sugerido em

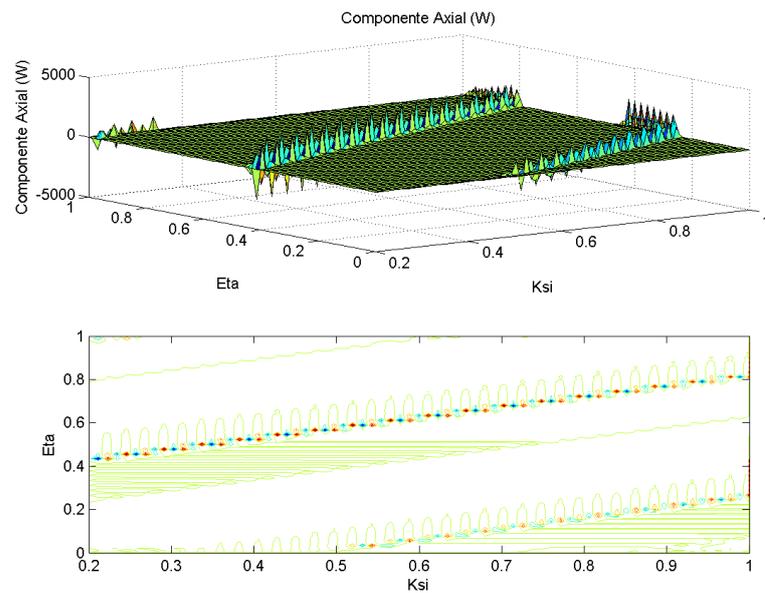


Figura 5.3: Distribuição axial de velocidade para malha não uniforme [6]

[15]. A abordagem foi implementada com malhas uniforme e não-uniforme, porém como poderá ser observado nas soluções, a manipulação da Equação da Continuidade ainda não é suficiente para solucionar o problema da estabilidade numérica e controlar as oscilações espúrias. O caso da malha uniforme pode ser visto na Figura 5.4.

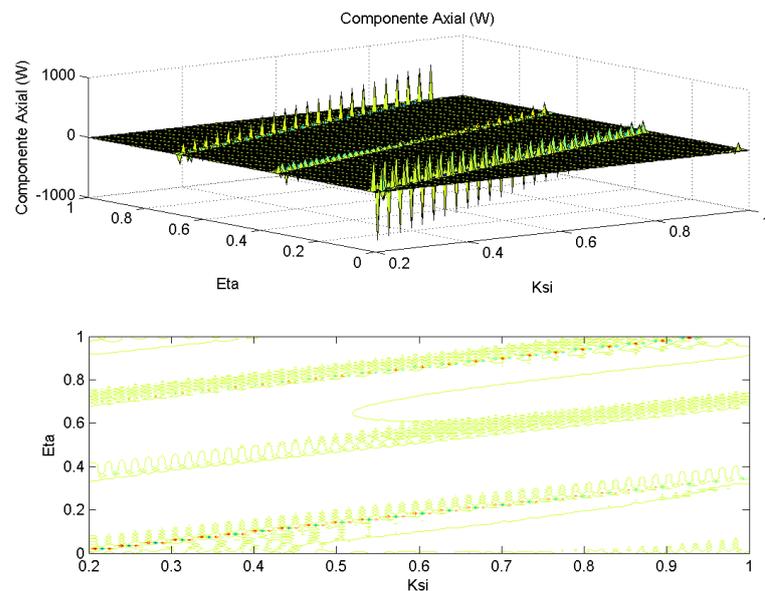


Figura 5.4: Distribuição axial de velocidade para malha uniforme utilizando a forma integrada da Equação da Continuidade [6]

E, finalmente, na Figura 5.5 pode ser vista a solução para a implementação com malha

não-uniforme alocando mais pontos no interior das camadas limites.

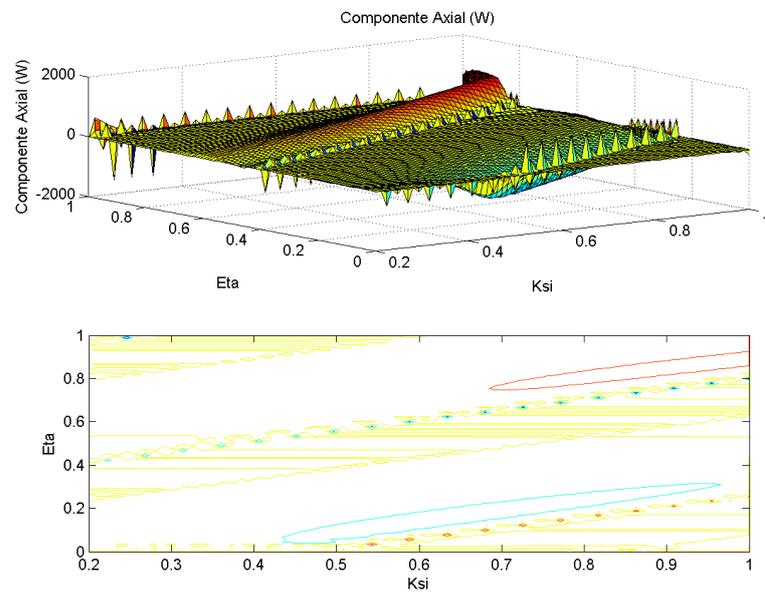


Figura 5.5: Distribuição axial de velocidade para malha não-uniforme utilizando a forma integrada da Equação da Continuidade [6]

5.5 Simulações da Máquina de Iguaçu a partir do Modelo Simplificado 2

O modelo foi também implementado utilizando a formulação de Diferenças Finitas com a malha uniforme no domínio computacional através da introdução das métricas de transformação apresentadas em [1], de forma a transformar o domínio irregularmente espaçado, como apresentado nas Figuras 4.4 e 4.5, em um domínio regular. Para esse caso, foi utilizado o método da Pseudo-inversa de Moore-Penrose através da função $pinv()$ do MATLAB[®]. Foi utilizada uma malha de 50 partições na direção ξ e 55 na direção η , o mecanismo de ativação de contracorrente é o mesmo dos exemplos anteriores (diferença de temperatura ao longo da parede - *Wall Thermal Drive*). Os parâmetros β_z e β_r da malha foram os mesmos apresentados em [3], $(\epsilon/\rho)^{1/2}$ para a direção axial η e $\epsilon^{1/3}$ para a direção radial ξ , respectivamente, e a malha resultante pode ser vista nas Figuras 5.6 e 5.7. Na Figura 5.8 temos a malha física que discretiza o domínio da Máquina de Iguaçu para o Modelo Simplificado 2.

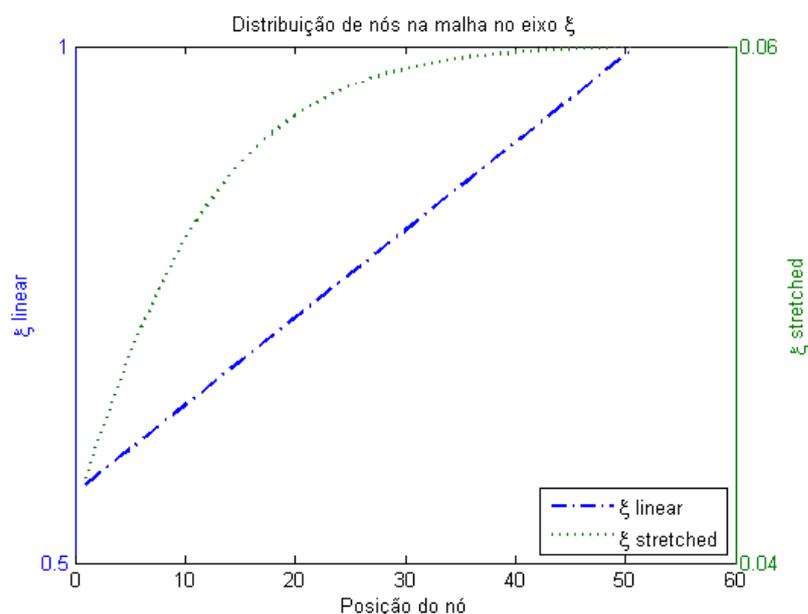


Figura 5.6: Distribuição de pontos na direção radial ξ , onde a linha azul representa a malha computacional uniforme, e a linha verde a malha física não-uniforme. A malha se inicia no ponto calculado do topo da atmosfera e não no eixo da máquina, como já indicado nas considerações dos modelos.

A solução do sistema acoplado das Equações de Navier-Stokes, Balanço de Massa e Energia, e Lei dos Gases Ideais como apresentado na Seção 4.3 com os parâmetros da Máquina de Iguaçu, como mostrados na Tabela 5.1, é apresentada nas Figuras 5.9, 5.10, 5.11, 5.12, 5.13 e 5.14, representando as velocidades u, v, w , a pressão, a densidade e a

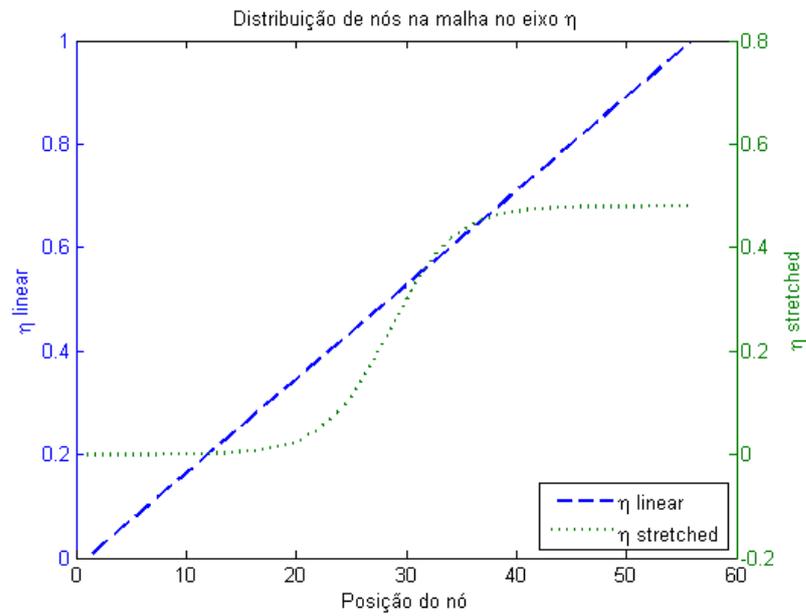


Figura 5.7: Distribuição de pontos na direção axial η , mostrando em azul a malha computacional uniforme e em verde a malha irregular do domínio físico.

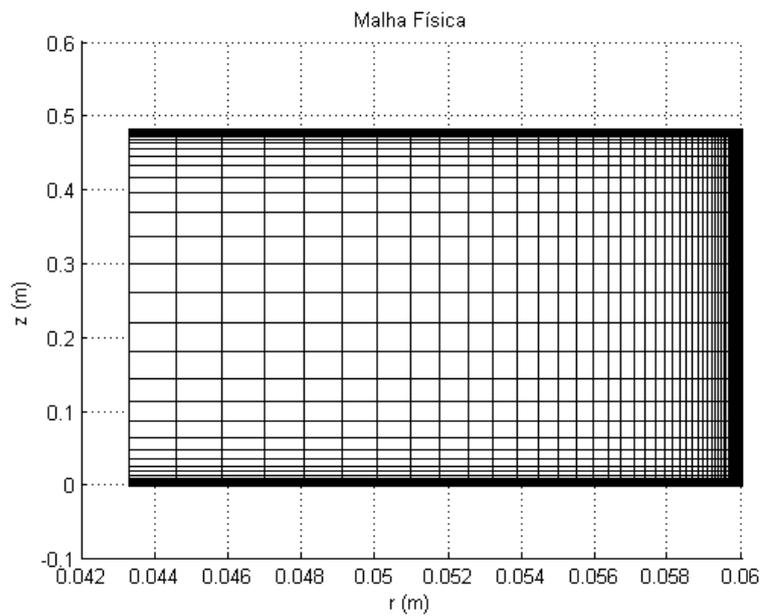


Figura 5.8: Malha física utilizada na discretização da Máquina de Iguazu na solução do Modelo Simplificado 2.

temperatura, respectivamente. A solução é calculada no intervalo de 0.5763 até 1 na coordenada adimensional ξ , que é equivalente ao intervalo de 0.0433 m até 0.06 m na coordenada radial física r , a Figura 5.8 apresenta a malha no domínio físico utilizada na solução.

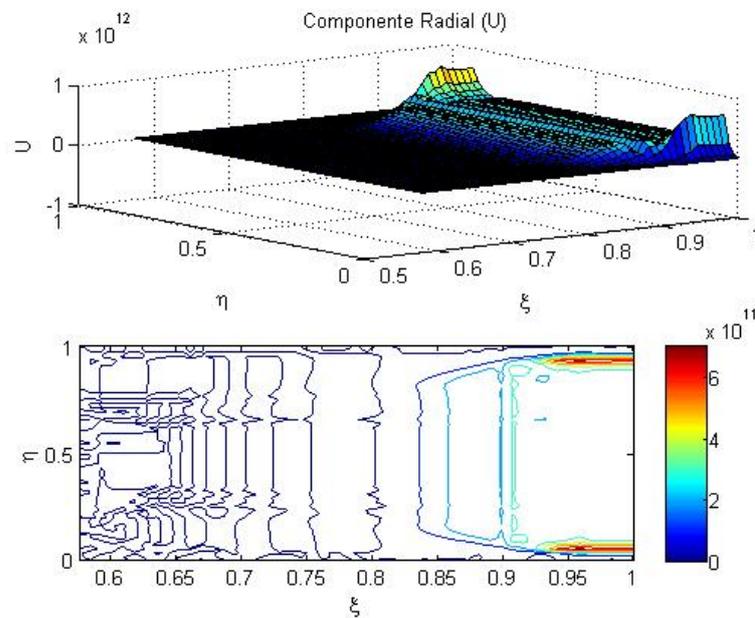


Figura 5.9: Perfil de velocidade radial u para os parâmetros da Máquina de Iguazu apresentado em vista isométrica da superfície da solução e vista de contorno da mesma superfície. Pode-se observar os picos próximos às tampas da máquina na região onde ocorrem as camadas de Ekman.

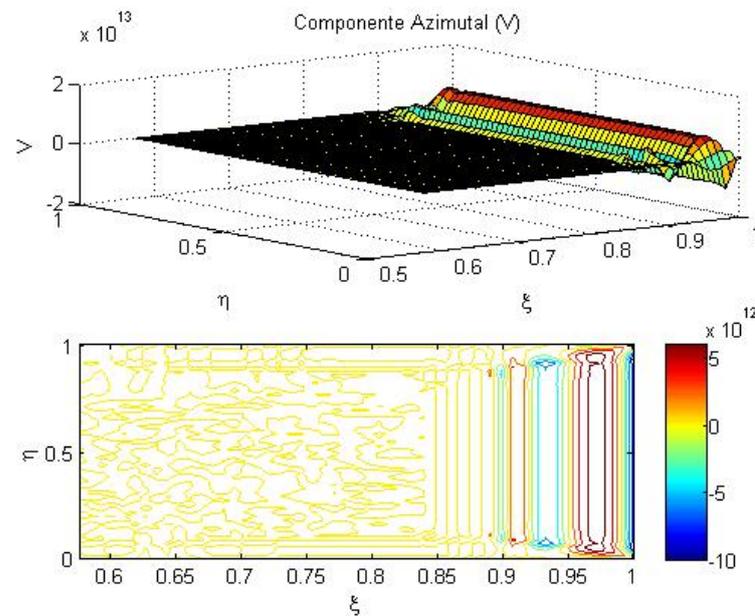


Figura 5.10: Perfil de velocidade azimutal v para os parâmetros da Máquina de Iguazu em vista isométrica da superfície da solução e vista de contorno da mesma superfície, onde observam-se oscilações partindo do raio interno da máquina em direção a parede na camada de Stewartson.

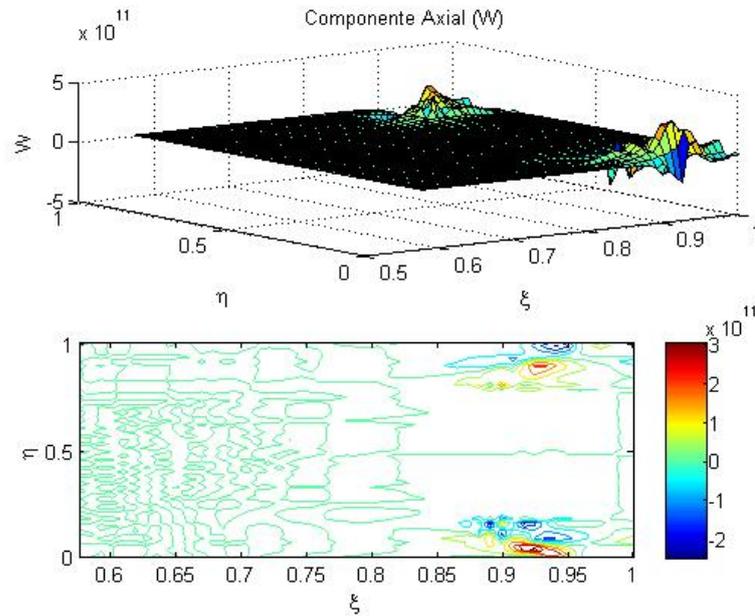


Figura 5.11: Perfil de velocidade axial w para os parâmetros da Máquina de Iguazu, em vista isométrica da superfície da solução e vista de contorno da mesma superfície. Aqui podem-se observar as oscilações nas regiões das tampas, onde ocorrem as camadas de Ekman.

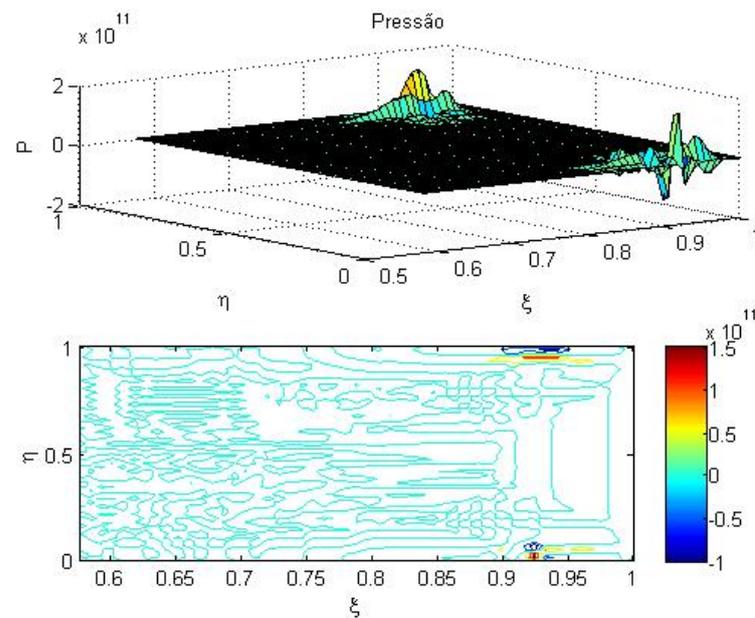


Figura 5.12: Perfil de pressão para a Máquina de Iguazu em vista isométrica da superfície da solução e vista de contorno da mesma superfície, onde observam-se as oscilações similares às observadas para a componente w .

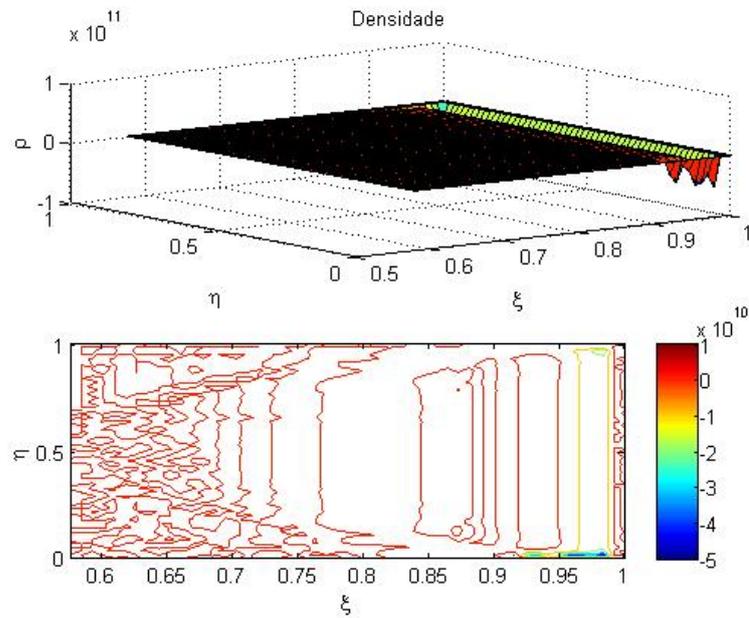


Figura 5.13: Perfil de densidade para os parâmetros da Máquina de Iguazu, em vista isométrica da superfície da solução e vista de contorno da mesma superfície. Pode-se observar as oscilações em direção a parede onde ocorre a camada limite de Stewartson.

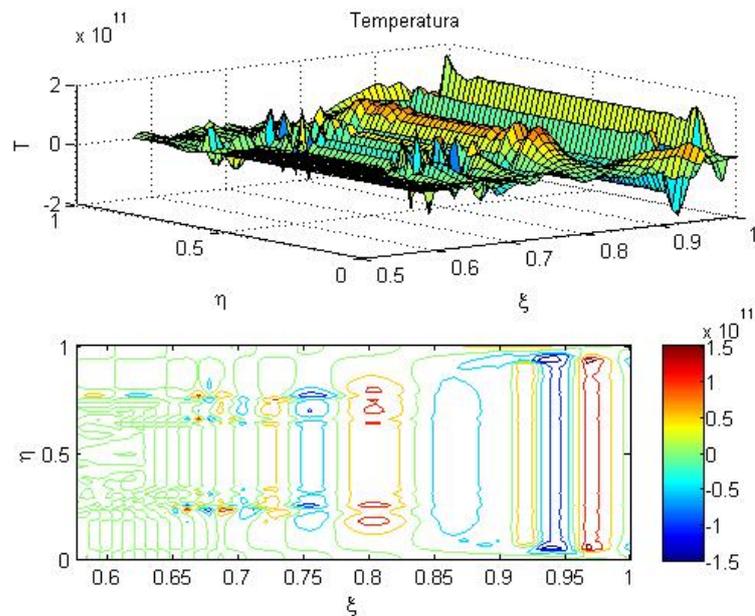


Figura 5.14: Perfil de temperatura para os parâmetros da Máquina de Iguazu, apresentada em vista isométrica da superfície da solução e vista de contorno da mesma superfície, onde as oscilações se apresentam de forma generalizada no domínio.

5.6 Simulações da Máquina de Roma a partir do Modelo Simplificado 2

Além das simulações da Máquina de Iguaçu, foram feitas simulações utilizando os parâmetros da Máquina de Roma, que foram apresentados na Tabela 5.2. Essa máquina apresenta condições menos severas de velocidade angular e também possui maior quantidade de massa em seu interior, o que resulta na pressão na parede similar à da Máquina de Iguaçu. A solução é calculada no intervalo de 0.681 até 1 na coordenada adimensional ξ , que é equivalente ao intervalo de 0.247 m até 0.25 m na coordenada radial física r , como pode ser visto na Figura 5.15. Para o eixo de coordenada adimensional η , temos o intervalo de 0 a 1, que na coordenada física z é equivalente ao intervalo de 0 m a 5 m, e a distribuição de pontos pode ser vista na Figura 5.16. Finalmente, a Figura 5.17 apresenta a malha no domínio físico utilizada na solução.

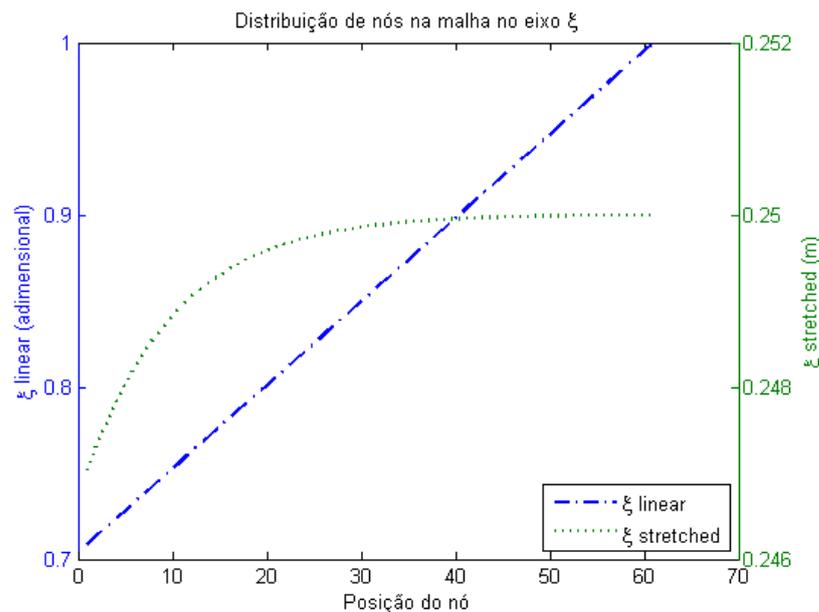


Figura 5.15: Distribuição de pontos na direção radial ξ , onde a linha azul representa a malha computacional uniforme, e a linha verde a malha física não-uniforme. A malha se inicia no ponto afastado do eixo da máquina em 0.247m e não no eixo da máquina, como já indicado nas considerações dos modelos.

A solução do sistema acoplado das equações apresentadas na Seção 4.3 com os parâmetros da Máquina de Roma, como mostrados na Tabela 5.2, é apresentada nas Figuras 5.18, 5.19, 5.20, 5.21, 5.22 e 5.23, representando as velocidades u, v, w , a pressão, a densidade e a temperatura, respectivamente. Para a construção da malha, os parâmetros β_r e β_z da malha foram os calculados pelas mesmas fórmulas utilizadas para a Máquina de Iguaçu, e foram utilizadas 60 partições na direção radial ξ e 45 partições na direção axial

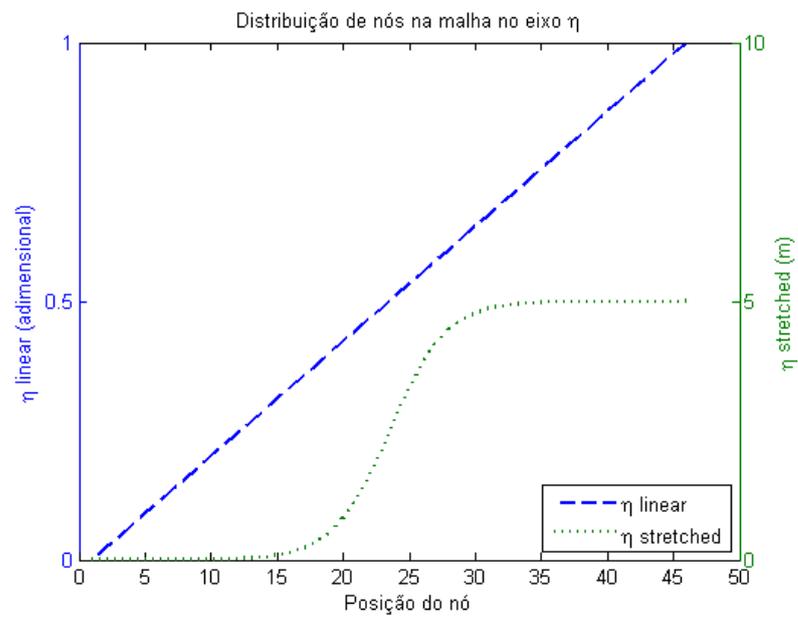


Figura 5.16: Distribuição de pontos na direção axial η , mostrando em azul a malha computacional uniforme e em verde a malha irregular do domínio físico entre 0 e 5m.

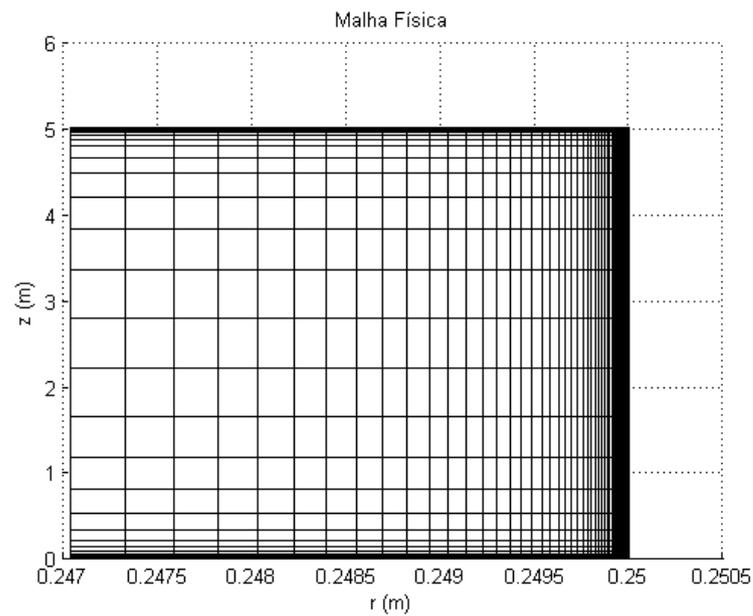


Figura 5.17: Malha física utilizada na solução do modelo para a Máquina de Roma.

em η .

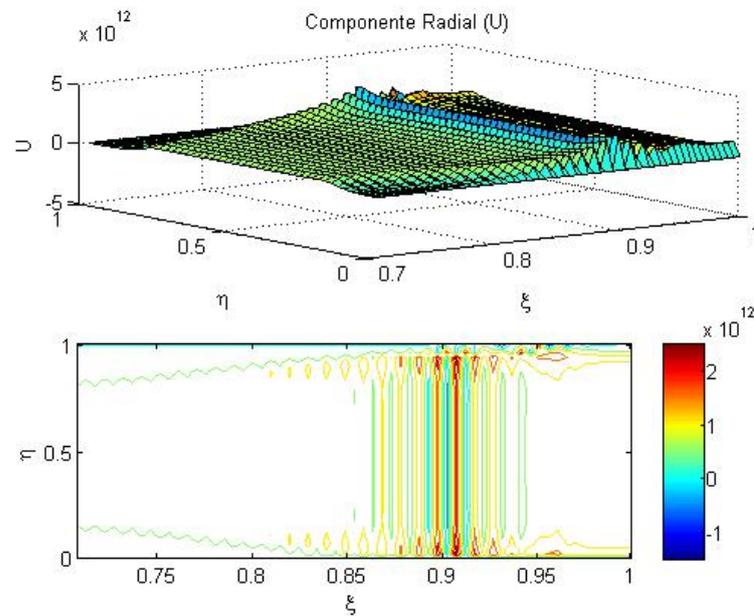


Figura 5.18: Perfil de velocidade radial u para os parâmetros da Máquina de Roma, mostrado em vista isométrica da superfície da solução e vista de contorno da mesma superfície.

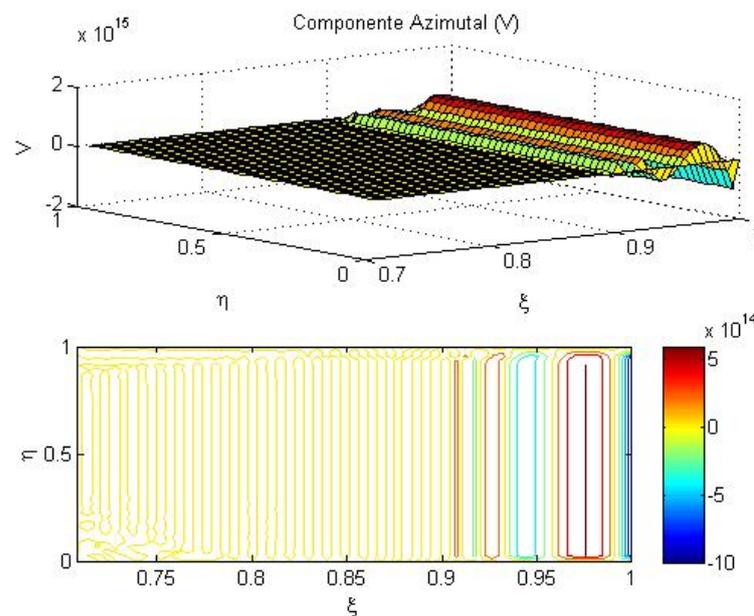


Figura 5.19: Perfil de velocidade azimutal v da solução com os parâmetros da Máquina de Roma. A solução em vista isométrica da superfície da solução e vista de contorno da mesma superfície, que apresenta oscilações partindo de um ponto mais interno da malha em direção a parede.

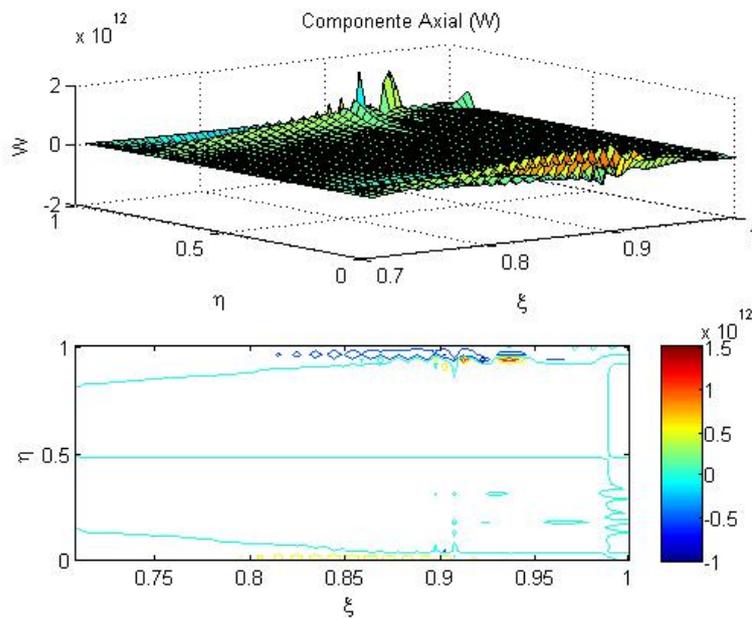


Figura 5.20: Perfil de velocidade axial w para os a solução com os parâmetros da Máquina de Roma, em vista isométrica da superfície da solução e vista de contorno da mesma superfície, onde pode-se observar os as oscilações próximas às tampas da máquina, região em que ocorrem reversões das velocidades para a formação da contracorrente.

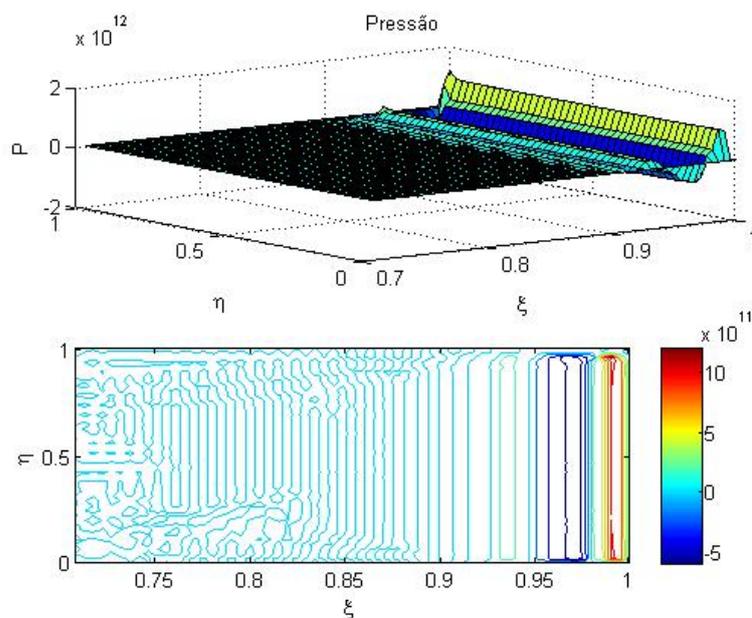


Figura 5.21: Perfil de pressão em vista isométrica para os parâmetros da Máquina de Roma, com superfície da solução e vista de contorno da mesma superfície apresentando oscilações que se propagam de um ponto interior do raio em direção à parede da máquina.

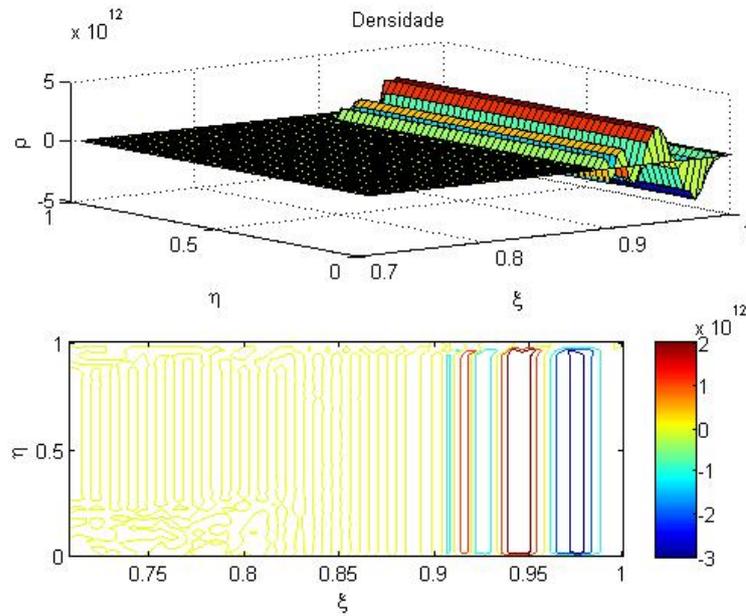


Figura 5.22: Perfil de densidade para os parâmetros da Máquina de Roma, apresentado em vista isométrica da superfície da solução e vista de contorno da mesma superfície, onde também observam-se oscilações partindo do raio interior da máquina em direção à parede.

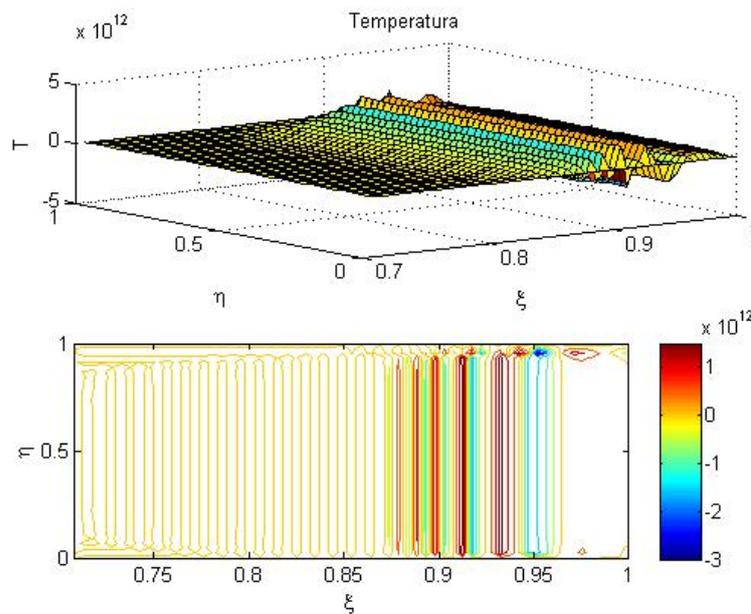


Figura 5.23: Perfil de temperatura para a solução com os parâmetros da Máquina de Roma, em vista isométrica da superfície da solução e vista de contorno da mesma superfície, com a presença de oscilações em direção a parede da máquina.

5.7 Discussão

Como pode-se observar das soluções apresentadas, utilizando-se tanto os parâmetros das Máquina de Iguazu, quanto da Máquina de Roma, temos a presença de oscilações que se propagam pela solução nas regiões onde temos reversões de velocidade, como é o caso das tampas, onde há a presença das camadas limites de Ekman, e também as oscilações que se propagam a partir de um ponto interno do raio da máquina em direção à parede, onde temos a presença das camadas limite de Stewartson. Portanto, como não foi obtida um solução fisicamente consistente para as velocidades e para as variáveis termodinâmicas a partir da gás-dinâmica, não é possível partir para a solução da equação diferencial do transporte difusivo-convectivo, que foi apresenta na Seção 3.3. Dessa forma, não é possível fazer os cálculos dos parâmetros de separação e da composição do fluxo de rejeito e produto para a determinação do fator de separação das máquinas.

As dificuldade numéricas enfrentadas foram apresentadas na literatura, que indica que apesar do número de Reynolds da ordem de 10^8 e 10^9 , não temos escoamento turbulento, porém essas condições induzem a uma variação de 5 a 6 ordens de magnitude na densidade e na pressão ocorrendo em uma região confinada a menos de 1cm da parede da máquina. Dessa forma, os métodos e as técnicas numéricas tipicamente empregados falham para solucionar o escoamento, como por exemplo, temos forte dependência da viscosidade molecular no comportamento do escoamento, de forma que o uso de uma viscosidade numérica para contornar o problema levaria a soluções fisicamente irreais. Outro método, que é tipicamente empregado em escoamentos rotacionais, envolve a interpolação das variáveis entre o centro das células e as interfaces, que no caso das centrífugas apresentará gradientes proporcionais às derivadas espaciais, que em condições menos severas seriam negligenciáveis, nas condições do escoamento do interior da centrífuga, geram fluxos de massa fisicamente inconsistentes. Portanto, como pode-se ver, esse é um desafio que mesmo métodos tipicamente empregados para escoamentos rotacionais, que é utilizado para calcular o escoamento no interior de turbinas, por exemplo, falha na solução do escoamento das centrífugas [2].

Capítulo 6

Conclusão

No domínio da Metalurgia Extrativa, o Brasil possui jazidas e depósitos de minérios de urânio mapeados e explorados, bem como faz a extração e beneficiamento dos minérios de urânio e sua concentração para produção do *yellow cake*, que será convertido em hexafluoreto de urânio. Essa etapa ainda é feita no exterior, mas já existe o projeto para a construção de uma unidade de conversão junto à planta de enriquecimento de urânio na INB em Resende, no estado do Rio de Janeiro. Dessa forma, apesar do domínio do Brasil na área de enriquecimento, ainda existem pontos de atenção para garantir a segurança das cadeias de suprimento de combustível nuclear.

O processo de centrifugação é ainda hoje o método mais eficiente para separação de isótopos em escala industrial, principalmente para atender a produção de combustível nuclear. Como apresentado no Capítulo 2, após a Segunda Guerra Mundial, as centrífugas emergiram como a solução mais viável, e ainda se apresentam como um campo de estudo promissor. Porém o foco das pesquisas se moveu da construção das máquinas para a otimização dos equipamentos já em operação. Como visto no Capítulo 1, o processo de enriquecimento é a etapa que faz o uso mais intensivo de energia elétrica, apresentando considerável impacto no custo final da energia nuclear. A otimização do fator separativo, mesmo que pequeno, pode levar a uma considerável redução do custo de produção do combustível e, com efeito, da própria energia nuclear [21]. Uma das ferramentas para a otimização do processo é o desenvolvimento de modelos computacionais do escoamento para o estudo aprofundado da máquina, reduzindo a carga experimental, que muitas vezes é impossível [2], e que para essas máquinas geraria custos elevados, ou em alguns casos proibitivos. Assim, justifica-se o desenvolvimento das ferramentas computacionais para o estudo das ultracentrífugas.

Apesar das soluções obtidas nas simulações numéricas ainda apresentarem oscilações,

que impedem as análises do transporte difusivo-convectivo e a determinação dos parâmetros de separação da máquina, o trabalho permitiu adquirir o domínio sobre o desenvolvimento teórico e da modelagem matemática que descreve o escoamento no interior das ultracentrífugas. A solução através dos modelos simplificados, que são as equações linearizadas a partir do conjunto completo de Equações da Gás-Dinâmica apresentado no Capítulo 3, de forma que durante as simplificações os termos de ordem elevadas e os produtos entre as velocidades e as variáveis termodinâmicas são desprezados, e são feitas as considerações de corpo rígido com perturbações para obtenção da contracorrente. Porém, ainda é necessário buscar novas formulações de Diferenças Finitas que sejam mais estáveis do que as empregadas aqui. Finalmente, o presente trabalho possibilitou o desenvolvimento de algoritmos próprios com o uso de ferramentas computacionais e métodos numéricos para a solução desses sistemas.

Como trabalho futuro, temos a possibilidade de trabalhar com novos métodos de discretização, como Elementos Finitos e Volumes Finitos. Também, como indicado na literatura, o modelo linearizado, apesar de facilitar grandemente a implementação dos modelos de escoamento, apresenta limitações para descrever completamente a física no interior da máquina, pois os termos não-lineares têm influência na qualidade da solução, que é fundamental para a posterior análise separativa [15]. Com a implementação dos sistemas não-lineares, também é possível a utilização do arranjo desencontrado (*staggered*), como utilizadas já em modelos disponíveis no mercado, como o MOLINA e o modelo da *Tokai Works* [15, 22]. Além, dos termos não-lineares, temos o trabalho para modelar de forma mais realista os coletores e os discos rotativos, que fazem parte do sistema de extração da fração de rejeito e produto [22].

Portanto, apesar das centrífugas e ultracentrífugas serem uma tecnologia datada do final dos anos 30, ainda é um ramo com grande potencial de desenvolvimento e demanda por pesquisas e pela capacidade de desenvolvimento de modelos que sejam cada vez mais fieis às condições físicas das máquinas, e que levem em consideração todos os componentes no interior da máquina. Nesse sentido, temos visto nos últimos anos a busca incessante de países como a China e o Irã de máquinas cada vez mais eficientes, com a recente apresentação das novas ultracentrífugas chinesas para uso comercial [24, 32]. Também, é uma oportunidade para o Brasil, que já domina a tecnologia de enriquecimento, buscar o desenvolvimento de novas pesquisas na área para aumentar a competitividade e a eficiência da energia nuclear e da indústria nuclear como um todo, buscando manter a liderança como um dos países com a matriz energética mais limpa no mundo [4].

Referências

- [1] ANDERSON, D. A., PLETCHER, R. H., TANNEHILL, J. C. *Computational Fluid Mechanics and Heat Transfer*, 3 ed. CRC Press - Taylor & Francis Group, 2013.
- [2] BOGOVALOV, S., BORISEVICH, V., ET AL. Method of verification of the numerical codes for modeling of flows in gas centrifuge. *Physics Procedia* 72 (2015), 305–309.
- [3] BORISEVICH, V., NAUMOCHKIN, V., SMAKOV, B. Mechanical and thermal excitation of a flow of viscous gas in a rotating cylinder. *Fluid Dynamics* 722 (1987), 513–517.
- [4] CBIE. Quais os países com a maior capacidade instalada de energia renovável? <https://cbie.com.br/artigos/quais-os-paises-com-a-maior-capacidade-instalada-de-energia-renovavel/>. Acessado em 04/2021.
- [5] COHEN, K. *The Theory of Isotope Separation as Applied to the Large-Scale Production of U235*, 1 ed. McGraw-Hill Book Company, Inc., 1951.
- [6] DA COSTA PEREIRA, V. V., ALVAREZ, G. B. Solution by finite difference method of the linearized governing equations of the flow inside an ultracentrifuge. Em *2019 International Nuclear Atlantic Conference: October 21-25, 2019* (outubro de 2019), ABEN, Ed., ABEN.
- [7] DEWITT, R. *Uranium Hexafluoride: A Survey of the Physico-Chemical Properties*. Goodyear Atomic Corporation, 1960.
- [8] ED VON HALLE, H. G. W. I., LOWRY, R. A. The effect of vacuum core boundary conditions on separation in the gas centrifuge. *Nuclear Technology* 62, 3 (1983), 325–334.
- [9] HABASHI, F. *Precious metals, refractory metals, scattered metals, radioactive metals, rare earth metals*. WILEY-VCH, 1997.
- [10] INB. Conversão. <http://www.inb.gov.br/Nossas-Atividades/Ciclo-do-combustivel-nuclear/Convers%C3%A3o>. Acessado em 03/2021.
- [11] INB. INB Caetité. <http://www.inb.gov.br/A-INB/Onde-estamos/Caetite>. Acessado em 03/2021.
- [12] INB. INB Caldas. <http://www.inb.gov.br/A-INB/Onde-estamos/Caldas>. Acessado em 03/2021.
- [13] INB. Mineração. <http://www.inb.gov.br/Nossas-Atividades/Ciclo-do-combustivel-nuclear/Minera%C3%A7%C3%A3o>. Acessado em 03/2021.

- [14] INB. Produção de Pastilha. <http://www.inb.gov.br/Nossas-Atividades/Ciclo-do-combustivel-nuclear/Producao-de-Pastilha>. Acessado em 01/2021.
- [15] KAI, T. Basic characteristics of centrifuges, (III). *Journal of Nuclear Science and Technology* 14, 4 (1977), 267 – 281.
- [16] KEMP, R. S. Gas centrifuge theory and development: A review of U.S. programs. *Science and Global Security* 17 (2009), 1–19.
- [17] KUEHN, C. Moment closure - a brief review. *Control of Self-Organizing Complex Systems* (2016), 253 – 271.
- [18] LEVEQUE, R. J. *Finite Difference Methods for Ordinary and Partial Differential Equations*. Society for Industrial and Applied Mathematics, 2007.
- [19] MARTINS, D., SOUZA, F., SALVO, R. Formation of vortex breakdown in conical-cylindrical cavities. *International Journal of Heat and Fluid Flow* 48 (2003), 52–68.
- [20] NEWNES, G. Isotope separation. *Contemporary Physics* 3, 4 (1962), 304 – 306.
- [21] OLANDER, D. R. The theory of uranium enrichment by the gas centrifuge. *Progress in Nuclear Energy* 8 (1981), 1 – 13.
- [22] OMNES, P., DONEDDU, F. Molina: A non-linear code to compute the internal hydrodynamics of a gas centrifuge. Em *International Conference on Supercomputing in Nuclear Applications* (Paris, França, 2003).
- [23] PATTIJN, S. *Non-linear, Low-Reynolds Two-Equation Turbulence Models*. PhD thesis, University of Ghent, 1998.
- [24] REUTERS. Iran feeds uranium gas into advanced centrifuges underground - iaea report. <https://www.reuters.com/article/iran-nuclear-iaea-int-idUSKBN27Y0W5>. Acessado em 03/2021.
- [25] SCURICINI, G. B., Ed. *3rd Workshop on Gases in Strong Rotation (Rome, Italy, 1979)* (1979), Separation Phenomena in Liquids and Gases.
- [26] SOUBBARAMAYER, BILLET, J. A numerical method for optimizing the gas flow field in a centrifuge. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering* 24 (1980), 165–185.
- [27] SOUBBARAMAYER, LAHARGUE, J. Centaure: A numerical model for the computation of the flow and isotopic concentration fields in a gas centrifuge. Em *Workshop on Gases in Strong Rotation* (Cadarsache, França, 1977).
- [28] SPINDEL, W., ISHIDA, T. Isotope separation. *Journal of Chemical Education* (1991).
- [29] VILELA, T. F. Notas de Aula da Disciplina de Metalurgia dos Metais Não-Ferrosos, 2019. 2º Semestre de 2019.
- [30] VINOKUR, M. On one-dimensional stretching functions for finite-difference calculations. Relatório Técnico, NASA Ames Research Center, 1980.

-
- [31] WIKIPEDIA. Gas centrifuge. https://en.wikipedia.org/wiki/Gas_centrifuge. Acessado em 03/2021.
- [32] WNN. Chinese centrifuges ready for commercial use. <https://www.world-nuclear-news.org/Articles/Chinese-centrifuges-ready-for-commercial-use>. Acessado em 03/2019.
- [33] WOOD, H., RODRIGUES, N., SCHWAB, C. Separation phenomena in liquids and gases. Em *Fifth Workshop Proceedings* (Foz do Iguaçu, Brasil, 1996).