

UNICAMP FACULDADE DE ENGENHARIA QUÍMICA

DEPARTAMENTO DE ENGENHARIA DE SISTEMAS QUÍMICOS

CONTRIBUIÇÃO AO ESTUDO DO COMPORTAMENTO DA DESSUBLIMAÇÃO DO HEXAFLUORETO DE URÂNIO EM TROCADOR DE CALOR DE PROJETO ESPECIAL E SEU DESENVOLVIMENTO DA ESCALA DE BANCADA À ESCALA SEMI-INDUSTRIAL

> por WAGNER DOS SANTOS OLIVEIRA Engenheiro Químico - M.E.

> > orientador

Dr. JOÃO ALEXANDRE FERREIRA DA ROCHA PEREIRA

O	L4(Ì
31	37	7/	BC	*	

UNIVERSIDADE ESTADUAL DE CAMPINAS-UNICAMP FACULDADE DE ENGENHARIA QUÍMICA-FEQ DEPARTAMENTO DE ENGENHARIA DE SISTEMAS QUÍMICOS

CONTRIBUIÇÃO AO ESTUDO DO COMPORTAMENTO DA DESSUBLIMAÇÃO DO HEXAFLUORETO DE URÂNIO EM TROCADOR DE CALOR DE PROJETO ESPECIAL E SEU DESENVOLVIMENTO DA ESCALA DE BANCADA À ESCALA SEMI-INDUSTRIAL

por WAGNER DOS SANTOS OLIVEIRA Engenheiro Químico - M.E.

orientador

Dr. JOÃO ALEXANDRE FERREIRA DA ROCHA PEREIRA

Tese apresentada no curso de pós-graduação da Faculdade de Engenharia Química da Universidade Estadual de Campinas como parte dos requisitos para obtenção do título de Doutor em Engenharia Química

> Campinas - S.P. Brasil Junho - 1997

UNIVERSIDADE ESTADUAL DE CAMPINAS-UNICAMP FACULDADE DE ENGENHARIA QUÍMICA-FEQ DEPARTAMENTO DE ENGENHARIA DE SISTEMAS QUÍMICOS

CONTRIBUIÇÃO AO ESTUDO DO COMPORTAMENTO DA DESSUBLIMAÇÃO DO HEXAFLUORETO DE URÂNIO EM TROCADOR DE CALOR DE PROJETO ESPECIAL E SEU DESENVOLVIMENTO DA ESCALA DE BANCADA À ESCALA SEMI-INDUSTRIAL

por WAGNER DOS SANTOS OLIVEIRA Engenheiro Químico - M.E.

orientador Dr. JOÃO ALEXANDRE FERREIRA DA ROCHA,PEREIRA

Tese apresentada no curso de pós-graduação da Faculdade de Engenharia Química da Universidade Estadual de Campinas como parte dos requisitos para obtenção do título de Doutor em Engenharia Química

> Campinas - S.P. Brasil Junho - 1997

Tese defendida e aprovada em 07 de Julho de 1997, pela Banca Examinadora constituída pelos Professores Doutores:

Professor Deutor Clemente Greco

Professor Doutor André Gonçalves Antunha

120

Professor Doutor Sérgio Pérsio Ravagnani

Professor Doutor Roger Josef Zemp

Professor Doutor João Alexandre Ferreira da Rocha Pereira

Esta versão corresponde á redação final da Tese de Doutorado defendida por Wagner dos Santos Oliveira e aprovada pela Comissão Julgadora em 7 de Julho de 1997

Professor Doutor João Alexandre Ferreira da Rocha Pereira orientador

AGRADECIMENTOS

Ao Professor Doutor João Alexandre da Rocha Pereira pela orientação e incentivo dados a este trabalho.

Ao Professor Doutor Clemente Greco pelo muito que se lhe deve de sugestões criteriosas e tempo dedicado ao desenvolvimento tecnológico que propiciou a elaboração deste trabalho.

Ao Doutor José Américo Andreatta (*in memoriam*) pelo incentivo que representou com seu pioneirismo no campo desta pesquisa.

Ao Doutor Rex Nazaré Alves e ao Almirante Othon Luiz Pinheiro da Silva pelo estímulo e confiança depositados na equipe do Programa Nuclear Autônomo Brasileiro de que este trabalho é uma contribuição.

Aos Professores Doutores Cláudio Rodrigues e José Octávio Armani Paschoal pela colaboração prestada para a realização do trabalho.

Aos Engenheiros Luíz César Floriano Baldo, Yoshimizo Shimabukuro e Najat Bejara Malke pela colaboração prestada no desenvolvimento dos projetos dos equipamentos.

Aos Engenheiros e operadores das Usinas do Projeto Conversão - IPEN pelo esforço despendido no domínio da tecnologia em estudo. Para

Ana Maria

Liliana Silvia

Eduardo Filipe

Alice Oliveira

RESUMO

O processo da dessublimação do hexafluoreto de urânio é uma etapa importante no ciclo do combustível nuclear, exigindo-se nessa fase o uso de trocadores de calor, construídos segundo projetos de concepção especial, levando em conta que o produto passa pelos estados sólido, líquido e gasoso, e considerando que são necessárias definições de projeto rígidas quanto ao aspecto de segurança.

Este estudo abrange o desenvolvimento desses trocadores de calor em várias escalas de projeto desde a escala de bancada até o projeto conceitual para a escala industrial. Para a escala semi-industrial fez-se a simulação do processo de dessublimação do hexafluoreto de urânio para se analisar o comportamento da recolha do produto como um sólido no interior do trocador de calor, frente a diferentes condições operacionais do processo. Percorreram-se as etapas do projeto piloto e semi-industrial, visando-se atingir o projeto definitivo, ou seja o equipamento em sua forma e tamanho industriais. Durante as fases do projeto conceitual surgiram diferentes frentes de pesquisa e que envolviam atividades de seleção de materiais, e conceitos de projeto para levar em conta aspectos de segurança industrial.

Considerando o exposto realizou-se um trabalho no sentido de conceber, projetar, construir, instalar e operar um equipamento capaz de recolher o UF_6 de maneira a se integrar esse equipamento nas instalações piloto do ciclo do combustível nuclear, sendo essas plantas químicas denominadas usualmente de Conversão de Urânio.

ABSTRACT

The process of uranium hexafluoride dessublimation is one of the most important steps in the cycle of the nuclear fuel, requiring at this stage the use of heat exchangers which must be built under strict design conception, due to the fact that the final product passes through the solid, liquid and gaseous states, taking also in account that rigorous security aspects must be included in the project.

The present work describes the development of such heat exchangers, which ranges from the bench scale equipment to the design concepts for the industrial scale equipment. For the semi-industrial equipment a simulation program was developed and the predicted results permit to analyse the recovery behavior of the solid product within the heat exchanger under various operational conditions of the process. After the bench scale equipment a pilot plant and a semi-industrial plant were designed and set-up in order to obtain data for the final design project of an industrial scale plant. During all phases of the experimental study various aspects of research on material selection and industrial security were carried out.

Finally the present work reports all the studies, theoretical and experimental, required to design, to built, to set-up and to operate with efficiency and security an equipment able to recover UF_6 in a way that it may be intergrated with all the other experiment of a nuclear fuel cycle pilot plant, which are commonly denominated Uranium Conversion Chemical Plant.

<u>ÍNDICE</u>

<u>NOTAÇÃO</u>	XII
LISTA DE FIGURAS	XVII
LISTA DE TABELAS	XXII
<u>CAPÍTULO I</u> - <u>INTRODUÇÃO</u>	01
<u>CAPÍTULO II</u> - <u>ANÁLISE DA LITERATURA</u>	07
2.1 - Introdução	07
2.2 - Condensação/sublimação/dessublimação	08
2.2.1 - Tipos de condensação	09
2.2.2 - Coeficientes de transferência de calor	14
2.2.3 - Resistência na interface	16
2.2.4 - Transferência de calor e propriedades dos fluidos	18
2.2.5 - Geometria dos condensadores	19
2.3 - Trocadores tipo carcaça e tubos	20
2.3.1 - Condensadores	21
2.3.2 - Geometria dos trocadores de carcaça e tubos	22
2.3.3 - Aletas e chicanas	23
2.3.4 - Placa do feixe tubular	25
2.3.5 - Velocidade dos fluidos	26
2.3.6 - Parâmetros significativos do processo	27
2.3.7 - Aumento da transferência de energia	28
2.3.7.1 - Acabamento das superfícies	29
2.3.7.2 - Superfícies expandidas	30

2.3.7.3 - Dispositivos de agitação e vibração	32
2.3.7.4 - Uso de campos eletromagnéticos	33
2.3.8 - Aspectos do projeto mecânico	34
2.4 - Métodos de cálculo e projeto do trocador de calor	36
2.4.1 - Concepção do processo de dessublimação	37
2.4.2 - Deposição de sólidos	39
2.4.3 - Incrustação	40
2.4.4 - Modelos representativos da incrustação	43
2.4.5 - Influência da incrustação	48

CAPÍTULO III - PROPRIEDADES DOS COMPOSTOS

3.1 - Introdução	50
3.2 Propriedades do hexafluoreto de urânio	50
3.2.1 - Coeficientes de difusão do UF ₆	50
3.2.2 - Densidade do UF_6	51
3.2.3 - Viscosidade do UF_6	53
3.2.4 - Condutividade térmica do UF_6	54
3.2.5 - Números de Schmidt e de Prandtl	55
3.2.6 - Calor específico do UF_6	56
3.2.7 - Entalpias de mudança de estado	57
3.2.8 - Pressão de vapor do UF_6	58
3.2.9 - Calor de sublimação	60
3.3 - Propriedades do flúor	61
3.3.1 - Densidade do vapor saturado	61
3.3.2 - Viscosidade do vapor de flúor	61
3.3.3 - Condutividade térmica do flúor	62
3.3.4 - Calor específico do flúor	62
3.4 - Propriedades do nitrogênio	63
3.4.1 Densidade do nitrogênio	63

3.4.2 - Viscosidade do nitrogênio	63
3.4.3 - Condutividade térmica	63
3.4.4 - Capacidade calorífica	64

CAPÍTULO IV - EQUIPAMENTO: DESENVOLVIMENTO, PROJETO E TESTES

4.1 - Introdução	65
4.2 - Dessublimador de hexafluoreto de urânio	66
4.3 - Processos envolvidos	67
4.4 - Mecanismos da condensação	70
4.4.1 - Equações representativas do processo	70
4.4.2 - Analogia entre a transferência de calor e matéria	72
4.4.3 - Condições de saturação	75
4.4.4 - Perfis de concentração e de temperatura	76
4.4.5 - Perfil nas condições de saturação	85
4.5 - Projeto do equipamento	93
4.5.1 - Formulação geral do problema	94
4.5.2 - Temperatura de refrigeração	95
4.5.3 - Formação de névoas e cálculo da área da seção transversal	95
4.5.4 - Características e número de dessublimadores	97
4.5.5 - Cálculo da área de troca térmica	98
4.5.6 - Evolução do perfil do depósito de sólido	100
4.5.7 - Considerações sobre distribuição das aletas	101
4.5.8 - Porosidade como fator de incerteza	102
4.5.9 - Critérios de projeto	102
4.6 - Dessublimadores construídos	106
4.6.1 - Escala de laboratório	107
4.6.1.1 - Objetivo da escala de bancada	107
4.6.1.2 - Metodologia utilizada	110
4.6.1.3 - Dessublimador à escala de bancada	111

4.6.2 - Escala piloto	116
4.6.2.1 - Objetivo da escala piloto	119
4.6.2.2 - Metodologia utilizada à escala piloto	119
4.6.2.3 - Dessublimador à escala piloto	120
4.6.2.4 - Projeto do dessublimador na escala piloto	121
4.6.2.5 - Sistema de refrigeração à escala piloto	135
4.6.3 - Escala semi-industrial	138
4.6.3-1 - Objetivo da escala semi-industrial	139
4.6.3-2 - Metodologia utilizada	141
4.6.3-3 - Seleção de materiais	141
4.6.3-4 - Projeto do dessublimador semi-industrial	143
4.6.3-5 - Sistema de refrigeração	143
4.6.3-6 - Projeto detalhado do dessublimador	147
4.6.3-7 - Aspectos de segurança	148
4.6.3-8 - Instalação e início de operação	149
4.6.3.9 - Concepção final do dessublimador	150

CAPÍTULO V - ANÁLISE OPERACIONAL E SIMULAÇÃO

5.1 - Introdução	156
5.2 - Resultados experimentais	156
5.2.1 - Dados do processo à escala de bancada	156
5.2.2 - Dados do processo à escala piloto	157
5.2.3 - Dados do processo à escala semi-industrial	158
5.3 - Resultados obtidos pela simulação	159
5.3.1 - Condições operacionais e quantidade de sólido obtido	159
5.3.2 - Perfis de temperaturas	163
5.3.3 - Variação da espessura do sólido	172
5.3.4 - Perfis de concentrações na mistura gasosa	180
5.3.5 - Variação do espaço para fluxo	188

5.3.6 - Variação do coeficiente de transferência de calor	196
5.3.7 - Formação de névoas	202
5.3.8 - Variação da viscosidade do gás	209
5.3.9 - Comportamento do número de Prandtl	215
5.3.10 - Variação do número de Reynolds	220
5.3.11 - Variação da capacidade calorífica média da mistura gasosa	227

CAPÍTULO VI - CONCLUSÕES E SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS

6.1 - Conclusões	234
6.2 - Sugestões para trabalhos futuros	236

APÊNDICE A-1 - GRÁFICOS DAS PROPRIEDADES DOS COMPOSTOS

A-1.1 - Coeficiente de difusão do hexafluoreto de urânio	238
A-1.2 - Densidade do UF ₆ sólido	238
A-1.3 - Densidade do hexafluoreto de urânio gasoso	239
A-1.4 - Densidade do UF_6 gasoso calculada à pressão atmosférica	240
A-1.5 - Densidade do UF ₆ gasoso e valores experimentais a 49,2°C	241
A-1.6 - Viscosidade do UF ₆ segundo equação de Myerson e Eicher	242
A-1.7 - Viscosidade do UF_6 gasoso	242
A-1.8 - Condutividade térmica do UF_6 e equação representativa da curva	243
A-1.9 - Condutividade térmica do UF_6 gasoso segundo diferentes autores	243
A-1.10 - Capacidade calorífica do UF_6 gasoso e equação representativa da curva	244
A-1.11 - Capacidade calorífica calculada do UF ₆ gasoso	244
A-1.12 - Capacidade calorífica do UF_6 sólido	245
A-1.13 - Pressão de vapor do UF ₆ para temperatura entre 0 e 150 $^{\circ}$ C	246
A-1.14 - Pressão de vapor para temperatura entre 0 e 67ºC	246
A-1.15 - Pressão de vapor do UF ₆ para temperaturas negativas	247
A-1.16 - Calor de sublimação para o UF_6 segundo diferentes autores	247
A-1.17 - Calor de sublimação	248

A-1.18 - Viscosidade do flúor	248
A-1.19 - Viscosidade do flúor pelo gráfico de Yaws	249
A-1.20 - Condutividade térmica do flúor	249
A-1.21 - Capacidade calorífica do flúor	250
A-1.22 - Capacidade calorífica do flúor segundo Murphy e Vance	250
A-1.23 - Capacidade calorífica do flúor segundo gráfico de Yaws	251
A-1.24 - Massa específica do nitrogênio gasoso	251
A-1.25 - Viscosidade do nitrogênio gasoso segundo Silva	252
A-1.26 - Viscosidade do nitrogênio gasoso publicado por Yaws	252
A-1.27 - Condutividade térmica do nitrogênio gasoso	253
A-1.28 - Condutividade térmica do nitrogênio gasoso dada por Silva	253
A-1.29 - Capacidade calorífica do nitrogênio gasoso	254
A-1.30 - Capacidade calorífica dada por Silva	254

BIBLIOGRAFIA

255

<u>NOTAÇÃO</u>

А	área de troca térmica (m ²)
a	fator de correção
b	espessura da camada de sólido (m)
b _{max}	espessura máxima da camada sólida (m)
C _a	calor específico genérico (kcal/kg °C)
C_{al}	fator para troca de calor com aletas
C _c	calor específico do composto sublimável (kcal/kg °C)
$\mathbf{C}_{\mathrm{int}}$	calor específico na interface gás/líquido (kcal/kg °C)
C _{gint}	calor específico para fase gasosa na inteface (kcal/kg °C)
C _p	calor específico em geral (kcal/kg ⁰ C)
C _m	calor específico médio da mistura gasosa (kcal/kg °C)
c	concentração (g/cm ³)
D	Coeficiente de difusão (m ² /h)
D _t	diâmetro (m)
G_{g}	vazão mássica da mistura gasosa (kg/h m ²)
H_{f}	entalpia de fusão (kcal/g.mole)
H_v	entalpia de vaporização (kcal/g.mole)
H _s	entalpia de solidificação (kcal/g.mole)
h	coeficiente de transferência de calor (kcal/h m ² °C)
h _g	coeficiente de transferência de calor para fase gasosa (kcal/h.m ² °C)
j	fator de transferência
j _h	fator j para a transferência de calor
j _m	fator j para a transferência de massa
K	coeficiente de transferência de matéria (g.mole/m ² h atm)
k _s	condutividade térmica da camada sólida (kcal/h m ⁰ C)
k	condutividade térmica em geral (kcal/h m ⁰ C)
k _s	condutividade térmica da camada de sólido (kcal/h.m.ºC)
L	taxa global de sublimação por unidade de área (mole/m ² .h)
1	comprimento da aleta na direção do fluxo(m)

М	peso molecular do composto sublimável (g.mole)
M _c	peso molecular do composto condensável (g.mole)
M _m	peso molecular médio da mistura gasosa (g.mole)
m _c	massa do composto sublimável por unidade de área (kg)
m _s	massa do sólido depositado (kg)
• m	vazão mássica (kg/h)
m_{c}	vazão mássica do composto sublimável (kg/h)
N	(Pr//Sc) ^{2/3} relação adimensional
N _u	Número de Nusselt
n	número de moles
• n	número de moles do sublimável que se deposita no v.c.(g.mole/h)
• n _c	vazão molar do composto sublimável (g.mole/h)
• n _{ce}	vazão molar do sublimável à entrada do v.c. (g.mole/h)
$n_{\rm cf}$	vazão molar do sublimável à saída do v.c. (g.mole/h)
n_T	vazão molar total (g.mole/h)
Р	pressão (atm)
Pe	perímetro da abertura de fluxo (m)
P _r	número de Prandtl
P _T	pressão total ou pressão do processo (atm)
p _{eg}	pressão parcial do composto sublimável na mistura gasosa (atm)
p _{cw}	pressão parcial do composto sublimável na superfície do sólido (atm)
\mathbf{p}_{ig}	pressão parcial dos compostos não sublimáveis na mistura gasosa (atm)
p_{iw}	pressão parcial dos não sublimáveis superfície do sólido (atm)
p _{lnig}	pressão parcial média logarítmica dos não sublimáveis na parede (atm)
p _i	pressão parcial dos gases não sublimáveis na fase gasosa (atm)
q	quantidade de calor (kcal/h)
q _{int}	quantidade de calor trocada na interface (kcal/h)

$q_{\rm D}$	taxa de deposição de sólidos sobre os tubos; incrustação (g.mole/h.m ²)
\mathbf{q}_{E}	taxa de reentrada de sólidos na corrente gasosa; incrustação (g.mole/h.m ²)
R	constante
Re	número de Reynolds
R _f	resistência devido à incrustação
R _{f1}	resistência devido à incrustação do lado 1
R _{f2}	resistência devido à incrustação do lado 2
r	raio (m)
S_c	número de Schmidt
T _c	temperatura do fluido de refrigeração (ºC)
T _g	temperatura da mistura gasosa (°C)
T _{in}	temperatura dos não sublimáveis à entrada do dessublimador (°C)
T _{int}	temperatura na interface (°C)
T _{ge}	temperatura da alimentação à entrada do equipamento (°C)
T _r	temperatura do fluido de refrigeração (ºC)
T _{re}	temperatura do fluido de refrigeração à entrada (°C)
T _w	temperatura superfície do sólido depositado (°C)
T _{wmax}	temperatura máxima da superfície do sólido depositado (°C)
U	coeficiente global da troca térmica (kcal/h.m ² .ºC)
\mathbf{V}_{i}	vazão dos compostos não sublimáveis (g.mole/h)
V_{ie}	vazão dos não sublimáveis à entrada do v.c. (g.mole/h)
$\mathbf{V}_{i\mathbf{f}}$	vazão dos não sublimáveis à saída do v.c. (g.mole/h)
V _s	volume do sólido (m ³)
v.c.	volume de controle
Vg	velocidade linear da mistura gasosa (m/h)
Х	comprimento da aleta na direção do fluxo (m)
x	fração molar
X _c	fração molar do composto sublimável
X _{ce}	fração molar do composto sublimável à entrada do v.c.
X _{cf}	fração molar do composto sublimável à saída do v.c.

X _{cg}	fração molar do composto sublimável na mistura gasosa
X _{ie}	fração molar dos não sublimáveis à entrada do v.c.
X _{if}	fração molar dos não sublimáveis à saída do v.c.
Y	relação da fração molar de condensável pela fração de não condensáveis
Z	distância (m)
	LETRAS GREGAS
Δ	incremento
ð	derivada
α	fração de névoas; coeficiente na interface
β	relação das pressões parciais (p_{cw} / p_{cg})
ε	eficiência de retenção do sublimável; fator de correção
η	viscosidade; (poise; kg/m.h); eficiência da aleta
λ	calor latente de sublimação (kcal/g.mole)
μ	viscosidade da mistura gasosa (kg/h.m)
π	constante
θ	tempo (h)
ρ	densidade (kg/m ³) ou (g/cm ³)
$ ho_s$	densidade do sólido constituinte da camada depositada (kg/m ³)
σ	tensões de cizalhamento, (Pascal); coeficiente corretivo para condensação

<u>ÍNDICES</u>

1, 2, 3.	índices referentes a componentes da mistura gasosa ou lados de fases
c	referente ao composto sublimável ou condensável
ce	referente ao composto sublimável à entrada do volume de controle
cf	referente ao composto sublimável à saída do volume de controle
cw	referente ao composto sublimável junto à parede
D	que se deposita; referente a transferência de matéria
E	que entra no fluido
e	entrada no equipamento ou no volume de controle

eq	equivalente ou médio
f	incrustação, fusão; final, saída
fg	referente a película de gás
g	referente a mistura gasosa
ge	fase gasosa à entrada
gf	fase gasosa à saída
gw	fase gasosa junto à parede
Н	referente a transferência de energia térmica
i	componente; interface líquido/gás ou gás/sólido; não condensável
ie	referente aos compostos não sublimáveis à entrada do volume de controle
if	referente aos compostos não sublimáveis à saída do volume de controle
int	referente à interface gás/líquido
cg	referente ao sublimável na mistura gasosa
1	referente à fase líquida
lnig	média logarítmica referente aos não sublimáveis na mistura gasosa
m	fase gasosa, mistura
n	composto genérico
re	fluido de refrigeração à entrada do processo
S	sólido
Т	total; global
ge	mistura gasosa à entrada do processo
v	gás, vapor
x, y, z	distância (posição)
W	referente as condição na parede do sólido depositado

LISTA DE FIGURAS

Figura 1.1 - Diagrama de blocos: fluxo de gases de processo	5
Figura 4.1 - Fluxograma da unidade de produção à escala de bancada	109
Figura 4.2 - Desenho esquemático do dessublimador de bancada	112
Figura 4.3 - Dessublimador utilizado à escala de bancada	113
Figura 4.4Conjunto dos três dessublimadores	114
Figura 4.5 - Dessublimador de bancada envolvido por vazo de Dewar	115
Figura 4.6 - Disposição dos tubos à escala piloto	121
Figura 4.7 - Feixe tubular do dessublimador piloto	122
Figura 4.8 - Dessublimador piloto: vista interna	124
Figura 4.9 - Desenho das chicanas	125
Figura 4.10 - Desenho das aletas à escala piloto	125
Figura 4.11 - Temperaturas em 7 pontos do dessublimador piloto	126
Figura 4.12 - Temperatura dos gases no dessublimador piloto: T_{re} = -20 °C	127
Figura 4.13 - Temperatura dos gases no dessublimador piloto: T_{re} = -25 °C	128
Figura 4.14 - Temperatura dos gases no dessublimador piloto: T_{re} = - 35 ^o C	128
Figura 4.15 - Temperatura dos gases no dessublimador piloto: T_{re} = - 40 °C	129
Figura 4.16 - Temperatura dos gases no dessublimador piloto: T_{re} = -50 ^{0}C	129
Figura 4.17 - Parâmetro A ₁ em função de T _{re}	130
Figura 4.18 - Parâmetro t_1 em função de T_{re}	130
Figura 4.19 - Parâmetro Y_0 em função de T_{re}	131
Figura 4.20 - Pontos calculados e experimentais para T_{re} = -20 $^{\circ}C$	132
Figura 4.21 - Pontos calculados e experimentais para T_{re} = -25 °C	132
Figura 4.22 - Pontos calculados e experimentais para T_{re} = - 35 ^o C	133
Figura 4.23 - Pontos calculados e experimentais para T_{re} = -40 ^{0}C	133
Figura 4.24 - Pontos calculados e experimentais para T_{re} = - 50 ^{0}C	134
Figura 4.25 - Fluxograma das unidades de dessublimação semi-industrial	140
Figura 4.26 - Fluxograma conceitual da unidade de refrigeração semi-industrial	144
Figura 4.27 - Desenho do arranjo de tubulações da unidade semi-industrial	146

XVIII

Figura 4.28 - Esquema de montagem das células e carga	150
Figura 4.29 - Disposição do feixe tubular	152
Figura 4.30 - Projeto de chicana do dessublimador semi-industrial	153
Figura 4.31 - Bocais do dessublimador com aquecimento por serpentina	154
Figura 5.1 - Acúmulo de UF ₆ para diferentes temperaturas da alimentação	160
Figura 5.2 - Acúmulo de UF ₆ para diferentes temperaturas de refrigeração	161
Figura 5.3 - Quantidade de UF_6 retida para diferentes pressões do processo	162
Figura 5.4 - Quantidade de UF_6 retida para diferentes concentrações à entrada	162
Figura 5.5 - Variação da temperatura ao longo do dessublimador e x=0,50	165
Figura 5.6 - Variação da temperatura ao longo do dessublimador e para x=0,80	165
Figura 5.7 - Variação da temperatura do gás para x=0,50	166
Figura 5.8 - Variação da temperatura do gás para x=0,80	166
Figura 5.9 - Variação da temperatura do gás para p=0,55 atm	168
Figura 5.10 - Variação da temperatura do gás para p=0,95 atm	168
Figura 5.11 - Variação da temperatura do gás para $T_{ge} = 90$ °C	170
Figura 5.12 - Variação da temperatura do gás para $T_{ge} = 130$ °C	170
Figura 5.13 - Variação da temperatura do gás para $T_{re} = -10$ °C	171
Figura 5.14 - Variação da temperatura do gás para $T_{re} = -30$ °C	171
Figura 5.15 - Variação da espessura do sólido para todo dessublimador e x=0.50	173
Figura 5.16 - Variação da espessura do sólido para todo dessublimador e x=0,80	173
Figura 5.17 - Variação da espessura do sólido para x=0,50	175
Figura 5.18 - Variação da espessura do sólido para x=0,80	175
Figura 5.19 - Variação da espessura do sólido para p=0,55 atm	176
Figura 5.20 - Variação da espessura do sólido para p=0,95 atm	176
Figura 5.21 - Variação da espessura do sólido para $T_{ge} = 90$ °C	178
Figura 5.22 - Variação da espessura do sólido para $T_{ge} = 130$ °C	178
Figura 5.23 - Variação da espessura do sólido para $T_{re} = -10^{\circ}C$	179
Figura 5.24 - Variação do sólido para $T_{re} = -30$ °C	179
Figura 5.25 - Concentração do UF ₆ para todo dessublimador e x=0,50	182
Figura 5.26 - Concentração do UF ₆ para todo dessublimador e $x=0,80$	182

Figura 5.27 - Variação da concentração do UF ₆ para x=0,50	183
Figura 5.28 - Variação da concentração do UF ₆ para x=0,80	183
Figura 5.29 - Variação da concentração do UF ₆ para p=0,55 atm	185
Figura 5.30 - Variação da concentração do UF ₆ para p=0,95 atm	185
Figura 5.31 - Variação da concentração do UF_6 para $T_{ge} = 90$ °C	186
Figura 5.32 - Variação da concentração do UF ₆ para $T_{ge} = 130$ ^o C	186
Figura 5.33 - Variação da concentração do UF ₆ para $T_{re} = -10$ ^o C	188
Figura 5.34 - Variação da concentração do UF_6 para $T_{re} = -30$ °C	188
Figura 5.35 - Espaço livre para fluxo para x=0,50 ao longo do dessublimador	190
Figura 5.36 - Espaço livre para fluxo para x=0,80 ao longo do dessublimador	190
Figura 5.37 - Espaço livre para fluxo para x=0,50	191
Figura 5.38 - Espaço livre para fluxo para x=0,80	191
Figura 5.39 - Espaço livre para fluxo para p=0,55 atm	192
Figura 5.40 - Espaço livre para fluxo para p=0,95 atm	192
Figura 5.41 - Espaço livre para fluxo para $T_{ge} = 90$ °C	194
Figura 5.42 - Espaço livre para fluxo para $T_{ge} = 130 \ ^{0}C$	194
Figura 5.43 - Espaço livre para fluxo para $T_{re} = -10$ °C	195
Figura 5.44 - Espaço livre para fluxo para $T_{re} = -30$ °C	195
Figura 5.45 - Coeficiente de transferência de calor para dessublimador e x=0,50	196
Figura 5.46 - Coeficiente de transferência de calor para dessublimador e x=0,80	196
Figura 5.47 - Variação do coeficiente de transferência de calor para x=0,50	198
Figura 5.48 - Variação do coeficiente de transferência de calor para x=0,80	198
Figura 5.49 - Variação do coeficiente de transferência de calor para p=0,55 atm	199
Figura 5.50 - Variação do coeficiente de transferência de calor para p=0,95 atm	199
Figura 5.51 - Variação do coeficiente de transferência de calor para $T_{ge} = 90$ °C	200
Figura 5.52 - Variação do coeficiente de transferência de calor para $T_{ge} = 130^{9}C$	200
Figura 5.53 - Variação do coeficiente de transferência de calor para $T_{re} = -10^{\circ}C$	201
Figura 5.54 - Variação do coeficiente de transferência de calor para $T_{re} = -30^{\circ}C$	201
Figura 5.55 - Formação de névoas para todo dessublimador e x=0,50	203
Figura 5.56 - Formação de névoas para todo dessublimador e x=0,80	203

Figura 5.57 - Formação de névoas no dessublimador para x=0,50	204
Figura 5.58 - Formação de névoas no dessublimador para x=0,80	204
Figura 5.59 - Formação de névoas no dessublimador para p=0,55 atm	205
Figura 5.60 - Formação de névoas no dessublimador para p=0,95 atm	205
Figura 5.61 - Formação de névoas no dessublimador para $T_{ge} = 90$ °C	206
Figura 5.62 Formação de névoas no dessublimador para $T_{ge} = 130 \ ^{0}C$	206
Figura 5.63 - Formação de névoas no dessublimador para $T_{re} = -10$ °C	208
Figura 5.64 - Formação de névoas no dessublimador para $T_{re} = -30$ °C	208
Figura 5.65 - Variação da viscosidade do gás para todo dessublimador e x=0,50	210
Figura 5.66 - Variação da viscosidade do gás para todo dessublimador e x=0,80	210
Figura 5.67 - Variação da viscosidade do gás para x=0,50	211
Figura 5.68 - Variação da viscosidade do gás para x=0,80	211
Figura 5.69 - Variação da viscosidade do gás para p=0,55 atm	212
Figura 5.70 - Variação da viscosidade do gás para p=0,95 atm	212
Figura 5.71 - Variação da viscosidade do gás para $T_{ge} = 90 \ ^{0}C$	213
Figura 5.72 - Variação da viscosidade do gás para $T_{ge} = 130 \ ^{\circ}C$	213
Figura 5.73 - Variação da viscosidade do gás para $T_{re} = -10^{\circ}C$	214
Figura 5.74 - Variação da viscosidade do gás para $T_{re} = -30$ °C	214
Figura 5.75 - Variação do número de Prandtl para todo dessublimador e x=0,50	215
Figura 5.76 - Variação do número de Prandtl para todo dessublimador e x=0,80	215
Figura 5.77 - Variação do número de Prandtl para x=0,50	216
Figura 5.78 - Variação do número de Prandtl para x=0,80	216
Figura 5.79 - Variação do número de Prandtl para p=0,55 atm	217
Figura 5.80 - Variação do número de Prandtl para p=0,95 atm	217
Figura 5.81 - Variação do número de Prandtl para $T_{ge} = 90$ °C	218
Figura 5.82 - Variação do número de Prandtl para $T_{ge} = 130 \ ^{\circ}C$	218
Figura 5.83 - Variação do número de Prandtl para $T_{re} = -10$ °C	219
Figura 5.84 - Variação do número de Prandtl para $T_{re} = -30$ °C	219
Figura 5.85 - Número de Reynolds para todo dessublimador e x=0,50	220
Figura 5.86 - Número de Reynolds para todo dessublimador e x=0,80	220

Figura 5.87 - Variação do número de Reynolds para x=0,50	222
Figura 5.88 - Variação do número de Reynolds para x=0,80	222
Figura 5.89 - Variação do número de Reynolds para p=0,55 atm	223
Figura 5.90 - Variação do número de Reynolds para p=0,95 atm	223
Figura 5.91 - Variação do número de Reynolds para $T_{ge} = 90^{\circ}C$	225
Figura 5.92 - Variação do número de Reynolds para $T_{ge} = 130^{\circ}C$	225
Figura 5.93 - Variação do número de Reynolds para T _{re} = -10 °C	226
Figura 5.94 - Variação do número de Reynolds para T _{re} = -30 °C	226
Figura 5.95 - Capacidade calorífica média do gás para dessublimador e x=0,50	228
Figura 5.96 - Capacidade calorífica média do gás para dessublimador e x=0,80	228
Figura 5.97 - Variação da capacidade calorífica média do gás para x=0,50	229
Figura 5.98 - Variação da capacidade calorífica média do gás para x=0,80	229
Figura 5.99 - Variação da capacidade calorífica média do gás para p=0,55 atm	230
Figura 5.100 - Variação da capacidade calorífica média do gás para p=0,95 atm	230
Figura 5.101 - Variação da capacidade calorífica média do gás para T_{ge} = 90 °C	231
Figura 5.102 - Variação da capacidade calorífica média do gás para $T_{ge} = 130$ °C	231
Figura 5.103 - Variação da capacidade calorífica média do gás para $T_{ge} = -10^{\circ}C$	232
Figura 5.104 - Variação da capacidade calorífica média do gás para $T_{re} = -30^{\circ}C$	232

LISTA DE TABELAS

Tabela 3.2.9.1 - Temperatura de sublimação do UF_6 à uma atmosfera	60
Tabela 3.2.9.2 - Valores da temperatura e pressão para o ponto triplo	61
Tabela 4.1 - Valores do diferentes parâmetros	131

<u>CAPÍTULO I</u>

INTRODUÇÃO

Com o início do desenvolvimento científico-tecnológico do Ciclo do Combustível Nuclear, tornou-se necessário o desenvolvimento de processo químicos que integrariam as diversas unidades de fabricação dos diferentes compostos químicos do urânio.

Estes processos químicos são descrito de forma simplificada como se segue: à saída da unidade de mineração do urânio, obtém-se um produto denominado "concentrado de urânio", contendo cerca de 75 % em urânio, sendo prática usual o seu transporte até outras unidades de processamento químico chamadas tradicionalmente de Conversão. Estas unidades tem por objetivo a obtenção do hexafluoreto de urânio, que é a matéria prima utilizada nas unidades de enriquecimento isotópico do urânio.

O domínio da tecnologia para o processamento do urânio no Brasil, envolveu etapas de pesquisa com fortes componentes tecnológicas. O início desse desenvolvimento deu-se inicialmente à escala de bancada, evoluindo posteriormente para a escala piloto e numa fase posterior realizando-se os estudos em unidades semi-industriais. Nesse contexto fez-se o denominado Projeto Químico, para cada uma das fases constituintes da Planta de Conversão, quando se definiu os diferentes processos químicos e as diferentes capacidades de produção para cada etapa desse desenvolvimento tecnológico, com a finalidade de se dominar o ciclo do combustível nuclear. O Projeto Químico para as escalas de bancada, piloto, e semi-industrial foi concebido e desenvolvido nas três grandes etapas tradicionais que o constitui:

- Projeto Químico Conceitual
- Projeto Químico Básico e,
- Projeto Detalhado.

O trabalho que aqui se apresenta, insere-se nesse contexto, e consta da etapa do desenvolvimento científico - tecnológico que levou à obtenção de um trocador de calor de projeto especial, e que testado e operando em regime contínuo de produção de UF_6 é hoje parte integrante do Ciclo do Combustível Nuclear do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.

Esses trocadores que foram projetados nas escalas de bancada, piloto e semiindustrial foram construídos, testados e postos a funcionar para uma gama de parâmetros de processo preestabelecidos. Esses equipamentos operaram em plantas de produção do hexafluoreto de urânio de diferentes capacidades, e com os quais chegou-se a um projeto final.

Foi nesses equipamentos que se manuseou o hexafluoreto de urânio nos estados sólido, líquido e gasoso, porque assim o processo o exige. Com o transcorrer do desenvolvimento tecnológico, deu-se atenção especial ao desenvolvimento do projeto desse trocador de calor, devido ao fato de quase nada se conhecer sobre ele, pela literatura disponível, e ainda por ser considerado um "equipamento estratégico" integrante do ciclo do combustível nuclear, porque é nele que se dão as etapas de recolha, purificação parcial, armazenamento temporário em processo, e descarga do UF_6 líquido para tanques de estocagem.

Sendo o hexafluoreto de urânio a matéria prima para as unidades de enriquecimento isotópico, a partir das quais que se obtêm o combustível nuclear sob a forma de compostos de urânio enriquecido, e devendo ele se enquadrar dentro de especificações de composição química muito rígidas, torna-se ele alvo de uma grande importância no Ciclo do Combustível Nuclear. As operações para sua obtenção e purificação, em conseqüência são vitais, para o domínio, a nível nacional, das tecnologias integrantes do ciclo do combustível nuclear.

Assim, fez-se necessário conceber, projetar, construir, montar e seguidamente operar, de modo contínuo, esses trocadores de calor especiais, com a finalidade de se chegar ao trocador considerado adequado a uma unidade industrial. Para tal, estudaramse todas as etapas desde a definição básica de um projeto conceptual, até à obtenção do projeto detalhado do equipamento capaz de servir aos propósitos previamente estabelecidos, além de se analisar aspectos relevantes para a construção do equipamento em estudo, analisando-se, por simulação, como as variáveis do processo tais como temperatura da mistura gasosa à entrada, temperatura do fluido de refrigeração, pressão de processo, composição da mistura gasosa da alimentação, interferiam no processo de recolha do hexafluoreto de urânio. Dentre as diversas geometrias existentes de trocadores de calor, selecionou-se o trocador de calor do tipo carcaça e tubos, com uma geometria interna especial, para melhor se adaptar aos processos de transferência de momento, energia e matéria.

No estudo agora apresentado, além de se descrever passo a passo o desenvolvimento tecnológico realizado, para obtenção do melhor projeto do equipamento, consta também a análise do comportamento do equipamento projetado frente as variáveis do processo já citadas.

Pode-se descrever resumidamente o processo químico para a obtenção do UF_6 como sendo resultante da reação do tetrafluoreto de urânio sólido, com o flúor, gás, deixando a unidade de reação sob forma de um gás, a uma temperatura de por volta 600 $^{\circ}$ C. Para recolha ainda em processo de fabricação, é submetido a processos de transferência de calor no interior de trocadores de calor, recorrendo-se a temperaturas que podem atingir cerca de 50 $^{\circ}$ C negativos. O hexafluoreto de urânio, ao contatar com tais temperaturas se sublima (ou dessublima), passando diretamente do estado gasoso para o sólido, sendo então recolhido em bateladas no processo de fabricação como um sólido que vai se depositando sobre os tubos do trocador. O trocador de calor vai deste modo armazenando esse produto, ocorrendo em simultâneo uma etapa de purificação, já que os compostos não condensáveis e presentes na mistura gasosa fluem ao longo do trocador

em direção a sua saída, não sendo retidos no interior do equipamento. Os compostos integrantes da mistura gasosa são então conduzidos para sistemas de absorção de gases efluentes do processo químico. Após o enchimento dos trocadores de calor que recolhem o hexafluoreto de urânio em processo, é descarregado por bateladas, e estocado em grandes reservatórios, projetados para transporte desse composto químico. O processo descrito pode ser acompanhado pelo diagrama de blocos apresentado na figura 1-1 seguinte. O flúor é aquecido e misturado ao UF₄ no topo de um reator tubular denominado reator de chama, ocorrendo aí a reação de produção do UF₆. O fluxo gasoso contendo o hexafluoreto de urânio é em seguida filtrado a uma temperatura de cerca de 250 °C, para se retirar do fluxo da mistura gasosa as partículas sólidas do material que não reagiu no reator, sendo os gases encaminhados para unidade de recolha do UF₆, que em última análise é o objetivo deste estudo.

Para obedecer a condições ótimas de cinética química o flúor que é utilizado em excesso no processo flui por uma primeira unidade de recolha do hexafluoreto de urânio, denominada de dessublimação primária, e misturado com nova quantidade de tetrafluoreto de urânio, produzindo mais UF_6 , que agora alimenta as unidades de dessublimação secundária e terciária. Os trocadores de calor que integram essas unidades trabalham a temperaturas menores que a utilizada na unidade de dessublimação primária, já que a composição da mistura gasosa à entrada de cada uma dessas unidades é diferente.

Após a etapa de recolha em processo do hexafluoreto de urânio, para a operação de descarga, os trocadores de calor são transformados em vasos fechados, bloqueando-se todas as válvulas de processo, sendo aquecidos por um fluido térmico adequado. O aquecimento da massa do UF₆ a por volta de +85 °C, faz com esse composto passe para a forma líquida sob efeito de sua própria pressão de vapor, sendo então descarregado desde os trocadores de calor, dessublimadores, onde se encontrava armazenado como um sólido, até o tanque de estocagem final.



Figura 1-1 Diagrama de blocos: fluxo dos gases de processo

trocador de calor estudado difere dos tipos convencionais existentes e que são utilizados normalmente nos processos químicos, no tocante a sua geometria interna, devido às operações envolvidas nos processos de dessublimação e sublimação, ou seja devido às mudanças de estado de gás para sólido, quando da captura do hexafluoreto de urânio e mudança de sólido para gás e para líquido, quando da operação de descarga do produto. A

geometria interna desses trocadores foi resultado de um projeto especial capaz de levar em conta a deposição do produto sob a forma de sólido, e que devido a sua porosidade se comportar como um isolante térmico.

As dificuldades apontadas justificaram e exigiram um estudo relativamente longo e preciso. Neste trabalho pretende-se dar conta das diferentes etapas de desenvolvimento do referido equipamento, relativo ao trocador de calor para recolha do hexafluoreto de urânio, envolvendo as escalas de bancada, piloto e semi-industrial e que foram integrantes da pesquisa vivida, resultando na fabricação do dessublimador à escala semi-industrial, ponto crucial para o conhecimento tecnológico necessário para o desenvolvimento do projeto do equipamento à escala industrial.

<u>CAPÍTULO II</u>

2 - ANÁLISE DA LITERATURA

2.1 - Introdução

Consultando-se a literatura especializada sobre trocadores de calor, verifica-se a existência de uma vasta gama de citações referentes aos mais diversos tipos de equipamentos utilizados para fins de troca térmica na indústria química. Apesar da literatura ser em grande quantidade raramente trata de equipamentos que operam em processos químicos com mudanças de estado líquido/gás/sólido. Além disso, os trocadores de calor, quer sejam do tipo tubular, carcaça e tubos ou de placas, freqüentemente trabalham com líquidos, e/ou gases, ocorrendo raramente casos com presença de sólidos e fluidos. Os trocadores de calor que operam na presença de fluidos e sólidos na maioria das vezes limita-se a processos que envolvem cristalização a partir de soluções concentradas, ou sistemas de particulados, quer sejam leitos fluidizados ou leitos móveis. Por exemplo, no caso de cristalizadores de película descendente, verifica-se que a camada sólida formada a partir do processo de cristalização é raspada continuamente das superfícies de troca térmica tornando o fluxo de calor mais ou menos constante à medida que o processo progride, formando o sólido cristalizado no interior do trocador.

A literatura também faz referência a sólidos presentes em pequenas quantidades nos processos de troca térmica, resultantes da formação de incrustações e de deposições, oriundas do próprio processo, ou da corrosão do equipamento, quer essa corrosão seja do tipo químico ou eletroquímico.

No âmbito geral, a bibliografia existente sobre a transferência de calor é muito extensa, analisada quer sob uma perspectiva mais científicada, apresentando-se modelos

representativos dos processos de transferência de momento, de calor e de massa, ou estudada sob um ponto de vista tecnológico, descrevendo-se os diferentes tipos de equipamentos utilizados nas indústrias químicas, ou aspectos relevantes de construção mecânica dos trocadores de calor e projeto de seus componentes, obedecendo às normas existentes.

No presente estudo considere-se a análise da literatura existente sob os pontos de vista que mais interessam ao trabalho aqui proposto, fazendo-se especial referência aos processos de troca térmica em presença de sólidos depositados sobre as áreas de troca térmica, citações de normas e padrões que definem os aspectos de projeto, e fabricação dos trocadores de calor. Incluíram-se também na análise da bibliografia os trabalhos que tratam dos processos de condensação, já que esses processos se assemelham muito ao da dessublimação/sublimação do hexafluoreto de urânio. Considerou-se também a literatura que trata em detalhe da construção de trocadores de calor, uma vez que o trabalho envolveu etapas importantes de tomada de decisão no tocante à escolha do tipo de trocador mais adequado ao processo de dessublimação do hexafluoreto de urânio, incluindo o estudo e análise de critérios de construção, levando em conta fatores de segurança industrial, já que nesse equipamento manuseiam-se compostos letais. Incluem-se também referências a artigos que tratam das propriedades dos compostos químicos envolvidos no processo.

2.2 - Condensação / sublimação / dessublimação

Sendo o processo de condensação amplamente utilizado nas indústrias químicas e nas unidades geradoras de energia, usando os mais diversos tipos de trocadores de calor, a literatura publicada é ampla. No que se refere à transferência de calor em seus aspectos mais gerais aparecem as obras de McAdams (1954), Jacob (1957), Kay (1963), além de outros trabalhos que tratam com mais detalhe do projeto dos trocadores de calor; Kern (1950), Ludwig (1965) e Rosehnow e Hartnett (1973). Ao se realizar o levantamento bibliográfico constatou-se que as publicações referentes a um sólido presente no processo

de troca de calor como produto principal do processo, depositado sobre as superfícies de troca térmica, resumiam-se aos processos de cristalização em solução, ou alguns trabalhos sobre a obtenção do hexafluoreto de urânio, sendo que as publicações que tratam dos processos de cristalização em soluções saturadas, fugiam ao escopo deste estudo. Quanto aos processos industriais que tratam da sublimação ou dessublimação pouco se publicou. Dentre os trabalhos encontrados salientam-se o de Goulike e Amitin (1986) que fizeram um levantamento de todos os processos industriais que usam a sublimação e dessublimação, como etapas importantes nas mais diferentes industrias químicas.

Chyu e Natarajan (1996) que utilizando o processo de sublimação do naftaleno, analisaram o efeito de diferentes formas geométricas, sobre os processos de troca térmica. Fu e outros (1995) trabalhando também com o processo de sublimação do naftaleno, determinaram os coeficientes de transferência de calor e de atrito, para um sistema contendo aletas e tubos, e utilizando diferentes espaçamentos entre as aletas para regimes laminares e turbulentos do fluido em estudo.

Do mesmo modo Ko e Wong (1986) analisando o processo de sublimação do naftaleno, concluíram que a eficiência da transferência de calor dependia das características da corrente gasosa, e recorrendo à analogia entre os processos de transferência de calor e massa determinaram o coeficiente de transferência de massa para a fase gasosa, num sistema de tubos concêntricos. Dentre outros autores que utilizaram os processos de sublimação e/ou dessublimação encontram-se os trabalhos de Sparrow e Reipschneider (1986), Perez e Sparrow (1985), Sparrow (1980), Dhir e outros (1977), Ueda e Takashima (1977), Saboya e Sparrow (1974), Hardin e Dyer (1973), Bilik e Krupiczka (1983).

2.2.1 - Tipos de condensação.

Os processos de dessublimação e de condensação são semelhantes e podem ser abordados por modelos matemáticos que em muito se assemelham. Nos processos de condensação leva-se o vapor a mudar de estado formando uma fase líquida, por remoção do calor latente de vaporização. Durante a fase do projeto conceitual de um condensador, define-se cada a caso a geometria mais apropriada dos trocadores de calor em análise. Nos processos em que o composto passa de sólido para gás ou de gás para sólido diretamente, sublimação ou dessublimação, leva-se o componente sublimável - dessublimável da mistura gasosa a mudar seu estado por remoção do calor latente de sublimação, buscando também nestes casos a geometria mais adequadas para o equipamento em que se processarão essas mudanças de fase.

Quando o fluxo de um vapor puro ou de uma mistura, contendo ou não compostos gasosos não condensáveis, entra em contato com uma superfície que está a uma temperatura abaixo da temperatura de saturação, ocorre a condensação. Enquanto a condensação ocorre sob a forma de uma película líquida contínua de condensado, ou na forma de gotas sobre as áreas de troca térmica, o processo de dessublimação origina uma camada sólida irregular. Dependendo das condições do processo, temperatura e pressão, em que a condensação ou a sublimação ocorrem, podem originar-se névoas no fluxo da mistura gasosa devido a mudança de estado do composto que ainda presente na corrente gasosa se liqüefaz ou se solidífica e é transportado pelo fluxo de gases não condensáveis ao longo do equipamento. Dentre os diversos pesquisadores que estudaram a formação de névoas nos processos de condensação tem-se: Brouwers (1991), Brouwers e Geld (1996), Brouwers (1992), Brouwers e Chesters (1992), Lo Pinto (1982) e Steinmeyer (1972).

Sendo os trabalhos publicados sobre condensação em grande número e com os assuntos diversificados, e para melhor se entender os diferentes mecanismos que ocorrem na condensação, considera-se a seguinte divisão:

- condensação ocorrendo no interior dos tubos e que podem estar posicionados na vertical ou na horizontal: Breber e outros (1979), Jaster e Kosky (1976);
- condensação externa a tubos aletados dispostos vertical ou horizontalmente; Katz e Young (1954): Young e Ward (1957).
Além da divisão anterior, a condensação pode ser analisada sob o ponto de vista hidrodinâmico do vapor, e neste caso classificada como se segue:

- condensado sob forma de película: Taitel e Duckler (1976);
- condensado sob regime turbulento da mistura gasosa: Colburn (1934); Rohsenow e outros (1985), Ducler (1959).

Levando-se em conta os compostos que participam do processo, a condensação pode ser estudada como:

- condensação de simples componente: Nusselt (1916);
- condensação de misturas multicomponentes condensáveis: Bernhardt e outros (1972), Toor (1964), Stewart e Probe (1964);
- condensação na presença de não condensáveis, Webb e Panchard (1979), Mazzarotta e Sebastiani (1995), Cuptor (1991), Cobo e outros (1996), Karapantsios e Karabela (1995), Karapantsios e outros (1995), Banwart e Bontemps (1990).

Os aspectos de miscibilidade dos compostos constituintes dos fluxos de processo também devem ser levados em conta no processo da condensação. Em alguns processos de condensação, ocorrem casos em que não há mistura da fase líquida do condensado com a corrente gasosa. Deo (1979) e Sardesai (1979), verificaram que o grau de miscibilidade do condensado com os gases do processo não era fator importante a ser considerado nos casos em que as concentrações dos compostos eram elevadas e em presença de gases não condensáveis.

Em geral a condensação ocorre a partir de um vapor puro ou mistura de vapores, saturados ou superaquecidos a uma temperatura do processo, e que contatam com uma superfície que está a uma temperatura abaixo da temperatura de saturação. Essa temperatura da superfície de troca térmica é mantida à custa da circulação de um fluido de refrigeração, fazendo-se presentes nesses processos de transferência de calor as seguintes resistências:

- resistência do lado do fluido refrigerante, somada à resistência da parede do tubo por onde circula esse fluido e uma resistência devido às camadas de incrustação sobre as paredes;
- existência de três resistências no lado do condensado; uma devido à película do condensado, uma na região da interface entre a camada líquida do condensado e o vapor, e uma terceira resistência no lado do vapor, que flui sobre o condensado.

A resistência originada pela película líquida do condensado está sempre presente, devido ao próprio processo de condensação originar essa camada líquida sobre as áreas de troca térmica. Quanto ao movimento dessa camada de líquido condensado, é importante se analisar se seu comportamento é laminar ou turbulento, e quais os efeitos provocados no processo pela velocidade de circulação da mistura gasosa. Conforme a intensidade da velocidade da corrente gasosa podem, por exemplo, originar-se ondulações sobre a superfície do condensado, alterando as taxas de troca térmica. Já no caso da dessublimação, a camada que se forma é sólida, e esses efeitos não ocorrem, até mesmo porque a velocidade dos gases definidas para os processos de dessublimação é baixa originando regimes do tipo laminar.

Durante um processo de condensação, em que a camada de condensado contém mais de um componente, é importante se fazer uma análise detalhada dos processos de transferência de matéria, podendo ocorrer dois casos extremos:

- origina-se a mistura formando-se uma camada líquida única, uma só fase;
- não ocorre a mistura completa na camada de condensado e tem-se várias fases.

Para a interface vapor/líquido, realizaram-se estudos sobre condensação de vapores de substâncias puras, concluindo-se que a resistência na interface apresenta maiores valores quando estudada através da teoria cinética dos gases, Scharge (1953).

Para misturas multicomponentes, assume-se a hipótese da existência de um equilíbrio vapor/líquido na interface, para uma dada temperatura da interface, existindo uma relação entre a composição de interface do vapor e do líquido, que é dada por uma constante, sendo função da temperatura da interface, da pressão total do sistema e das composições do vapor e do líquido. Trabalhos pioneiros levaram em conta um fator corretivo, para considerar o efeito do calor sensível, e dentre eles citamos as publicações de Ackermann (1937) e de Colburn e Drew (1937). De modo semelhante Krishna e outros (1976) equacionaram o fluxo condutivo de calor na interface vapor/líquido, considerando um fator corretivo, representativo da parcela do calor sensível:

$$q_{\rm int} = h_g e^{\varepsilon} (T_g - T_{\rm int}) = h_g e^{\varepsilon} \varepsilon \frac{(T_g - T_{\rm int})}{(e^{\varepsilon} - 1)}$$
 (2.2.1-1)

$$\varepsilon = \sum \frac{n_{\text{int}} C_{\text{int}}}{h_g} = \frac{n_T C_g}{h_g} \qquad (2.2.1-2)$$

$$C_g = \sum \frac{n_i}{n_r} C_{g \text{ int}} \qquad (2.2.1-3)$$

Para o caso da transferência de matéria, a resistência aumenta quando a fase vapor é constituída por dois ou mais componentes, e não se tratando de misturas eutéticas ou líquidos que apresentem composição azeotrópica. Caso a fase de vapor contenha um componente mais pesado, de menor volatilidade, apresentando valores mais baixos para a difusividade que a dos componentes mais leves, com tendência a se condensar com mais facilidade, resulta num acúmulo dos componentes leves junto à interface. Nestes casos a difusão do componente mais pesado é lenta, surgindo uma resistência adicional à transferência de matéria, com tendência de aumento do valor dessa resistência à medida que aumenta a presença do componente pesado, e com o fluxo total de condensado formado pelas contribuições dos processos de difusão e da convecção.

Toor (1964), Stewart e Probe (1964), consideraram a Lei de Fick generalizada conjuntamente com o modelo da película, para os casos da transferência de matéria na interface, enquanto Krishna e Standart (1976) desenvolveram uma solução exata para as equações de Maxwell - Stefan. Krishna e Standart (1979) estudaram posteriormente a condensação de misturas multicomponentes em presença de gases não condensáveis, obtendo equações que podiam ser utilizadas para o cálculo das taxas locais de transferência de calor e matéria, na condensação de misturas binárias ou de multicomponentes. Podem ainda ocorrer casos em que o condensado é formado por líquidos imiscíveis, originando-se camadas estratificadas, dependendo a resistência da película de como se distribuem essas camadas. A condensação nesses casos foi estudada por Bernhardt e outros (1972), Akers e Turner (1962), Polley e Calus (1978).

2.2.2 - Coeficientes de transferência de calor.

A equação de projeto para um trocador de calor é dada por:

$$q_T = U A_T \Delta T_{\rm ln}$$
 (2.2.2-1)

Os casos mais simples da condensação são os que apresentam uma variação linear de diferença de temperaturas com a taxa de transferência de calor, variando a entalpia também linearmente com a temperatura. Enquadram-se nestes casos, os processo de condensação de vapores puros à temperatura constante, misturas azeotrópicas e eutéticas, sendo válida a hipótese de força motriz definida pela média logarítmica das temperaturas, para os casos de vapor saturado à temperatura constante. Se a condensação ocorrer numa condição tal que o coeficiente local de transferência de calor, para película de condensado, diminuir ao longo do fluxo e o coeficiente de transferência de calor do fluido de arrefecimento permanecer constante, define-se um coeficiente global de transferência de calor corrigido, mesmo para os casos de condensação de vapor puro, determinando-se os coeficientes locais de transferência de energia. Trabalho pioneiro para a condensação em regime laminar, para superfícies curvas e planas, foi desenvolvido por Nusselt (1916), que estudou os coeficientes para a transferência de energia em superfícies planas dispostas nos sentidos vertical e horizontal e para sistemas onde ocorria a condensação no interior ou no exterior de tubos.

Num processo de condensação a velocidade do fluido é um parâmetro importante. Quando os gases fluem com velocidade elevada, originam fluxos de calor por convecção forçada, e nestes casos modifica-se a espessura da película líquida de condensado. A velocidade do fluido pode ser de tal monta que origine um certo grau de turbulência na superfície do condensado, alterando os mecanismos e as intensidades das transferências de calor e massa Para casos de condensação no interior dos tubos tem-se o trabalho de Jaster e Kosky (1976), que desenvolveram modelos para casos em que ela ocorre sob forma estratificada, anelar ou em regime de transição, além dos trabalhos de Breber e outros (1979), Taitel e Dukler (1976), Palen e outros (1977), Zivi (1964), Boyoko e Kruzhilin (1967), Kosky e Staub (1971), Altmane outros (1960), Carpenter e Colburn (1951).

No caso da condensação ocorrer exteriormente a um banco de tubos, em regime de convecção forçada, aparecem na literatura os trabalhos que equacionam os processos de transferência de calor e massa tais como os de Wilson (1972), Shekriladze e Gomelauri (1966), Fujii e outros (1972), Nicol e outros (1978), e Fujii e outros (1979).

Durante a elaboração do projeto de um trocador de calor, calculam-se os coeficientes de transferência de calor e matéria utilizando por exemplo, o modelo da teoria da película. Assim, o número de Nusselt para o caso da transferência de calor entre um gás e uma superfície sólida, sob condição de regime turbulento, no interior ou no exterior de tubos pode ser por:

$$Nu = a_1 \operatorname{Re}_g^{a_2} \operatorname{Pr}_{fg} (2.2.2-2)$$

sendo a₁, a₂, a₃ constantes dependentes da geometria considerada.

Chilton e Colburn (1934) apresentam:

$$j_{H} = \frac{\left(h_{g}A\right)}{\dot{m}_{g}C_{pfg}} \Pr_{fg} = b_{1}\operatorname{Re}_{g}^{b2}$$
 (2.2.2-3)

onde b_1 , b_2 e b_3 são constantes numéricas. Considerando a analogia entre a transferência de calor e matéria tem-se:

$$j_D = \frac{\beta_{g12} A}{n_g} \left(Sc_{12} \right)_{fg}^{b_3} = b_1 \operatorname{Re}_g^{b_2} \quad (2.2.2-4)$$

As equações anteriores foram desenvolvidas para superfícies sobre as quais não existe uma película líquida em movimento, como ocorre na grande maioria dos processo de condensação. Caso exista a película de condensado em movimento, como mostra o trabalho de Price e Bell (1974), e em contato direto com a mistura gasosa fluindo sob condição de regime turbulento, formam-se turbilhões na superfície do líquido condensado. Esta agitação da superfície leva a um aumento das taxas de transferências de calor e massa, e para estes casos adicionam-se ao modelo fatores corretivos, que levam em conta os efeitos dos turbilhões. Pesquisadores tais como Bird e outros (1960) e Berman.(1972) estudaram o aumento das taxas de transferência de matéria sob influência da turbulência dos fluidos de processo.

2.2.3 - Resistência na interface.

A resistência na interface, no processo de condensação, ocorre como o próprio nome diz, na interface líquido/vapor, e quando seu valor comparado com a das outras resistências é a de menor importância. Para o projeto de um trocador de calor, considerase na maioria dos casos, que essa resistência é desprezável, com o vapor e o líquido na interface apresentando a mesma temperatura. No casos em que a condensação ocorre a partir de um vapor puro, a baixa pressão, por exemplo, menor que 0,03 bar, essa resistência não pode ser considerada pequena a ponto de ser desprezada. Para estes casos Berman (1967) desenvolveu um coeficiente para a interface vapor/líquido dado por:

$$h_{\rm int} = \frac{2\sigma_c}{2 - \sigma_c} \left[\frac{M_m}{2\pi RT} \right]^{1/2} \frac{\Delta h^2 PM_m}{T^2 R} \quad (2.2.3-1)$$

sendo σ_c o coeficiente da condensação, determinado experimentalmente.

Além das resistências à transferência de calor, do lado do condensado, devemos considerar para o projeto de um trocador de calor, as resistências do lado por onde circula o fluido de arrefecimento. O coeficiente global de transferência de calor neste caso deve levar em conta as resistências originadas pela própria parede do equipamento e as resistências devido às incrustações que se formam durante o processo de troca térmica. Para tal, pode se escrever uma expressão representativa do coeficiente de transferência de calor desde o lado do vapor até o lado do fluido de arrefecimento:

$$\frac{1}{h_c} = \frac{1}{h_d} + \frac{1}{h_w} + \frac{1}{h_c^*} \quad (2.2.3-2)$$

No caso da condensação de misturas multicomponentes ocorrem variações significativas através da película de gás, nas propriedades físicas e nas propriedades de transporte dos fluidos de processo. Estas variações se tornam significativas quando o processo de condensação se apresenta controlado pela resistência na fase gasosa, sendo causada principalmente nestes casos pelas diferenças de concentração e de modo menos intenso pelas diferenças de temperatura. Por tanto, deve-se estar atento aos desvios originados ao se calcular as propriedades da mistura gasosa, com erros que se podem propagar nos cálculos dos números de Prandtl e Schmidt, e para os quais se consideram

geralmente as médias aritméticas dos valores das propriedades, referentes à fase global gasosa e à temperatura e concentração da superfície.

2.2.4 - Transferência de calor e propriedades dos fluidos

Analisando-se tanto as propriedades físico-químicas dos compostos envolvidos num processo de condensação, como as denominadas propriedades de transporte, constata-se que sofrem variações consideráveis, quando calculadas, por exemplo, para a película gasosa. Na condensação ocorrem variações das concentrações e da temperatura dos compostos, com as primeiras originando alterações mais intensas nas propriedades dos fluidos, e que se tornam mais significativas para os casos em que a resistência controladora do processo está na fase gasosa. Assim, durante a fase de projeto de um trocador de calor, deve-se estar atento a essas variações ao se levar em conta as seguintes propriedades:

- peso específico,
- viscosidade,
- condutividade térmica,
- relações entre temperatura e entalpia,
- calores específicos e latentes.

Ao se calcularem os coeficientes de transferência de energia considera-se as propriedades físicas à temperatura média da corrente dos fluidos, sendo válida esta hipótese para os casos em que existam pequenas diferenças nas temperaturas consideradas. Se as diferenças de temperatura forem grandes, os coeficientes podem ser calculados para as temperaturas de entrada e de saída do processo, utilizando-se no projeto um valor mais seguro, ou seja, o valor mais conservativo dentre os encontrados. Para tais cálculos, pode citar-se o trabalho de Frank (1978) que desenvolveu um método considerando dois coeficientes globais de troca, para as temperaturas de entrada e saída do trocador, levando em conta a hipótese que o coeficiente de transferência de calor varia linearmente com a temperatura.

Havendo uma variação significativa das propriedades físicas e de transporte dos fluidos do processo, deve-se partilhar o perfil temperatura/entalpia em zonas, determinando-se os coeficientes de transferência de energia e área de troca térmica para cada uma dessas regiões. Para os trocadores de calor de carcaça e tubos, em casos mais simples, admite-se a hipótese simplificada para o cálculo do coeficiente global de transferência de energia, considerando uma relação temperatura/entalpia para cada fluido envolvido. Silver (1947) utiliza esse tipo de cálculo. Para os casos em que se determinam as relações temperatura/entalpia podem ser consultados os trabalhos de Bell e Ghaly (1972), Butterworth (1977).

2.2.5 - Geometria dos condensadores

Apesar de se considerar a dessublimação do hexafluoreto de urânio semelhante ao processo de condensação em presença de uma mistura gasosa de compostos não condensáveis, os fatores a serem considerados quando do projeto do equipamento devem ser analisados sob um ponto de vista que, no caso da dessublimação em presença de um sólido que se acumula no interior do equipamento, requer certo cuidado quanto aos critérios de projeto do trocador. Na condensação, os trocadores de calor podem ser projetados para operarem nos processos químicos tanto na posição vertical como na horizontal, sendo que na indústria química utilizam-se trocadores de calor do tipo carcaça e tubos, dispostos em ambas posições. Durante a fase do projeto dos condensadores, levase em conta parâmetros tais como a natureza dos fluidos do processo, as pressões desenvolvidas, as incrustações que se formam sobre as áreas de troca térmica, a taxa de corrosão nas diferentes partes do equipamento, e as posições que se situam no equipamento dos bocais de entrada e saída dos fluidos de processo. Murty (1982) em seu trabalho estuda a condensação quando os condensadores são projetados para operarem na posição vertical ou na horizontal.

Nos condensadores posicionados verticalmente, quer a condensação ocorra no interior ou no exterior dos tubos, deve-se considerar a influência da gravidade sobre a película de condensado formada sobre as paredes frias do equipamento e qual o comportamento que essa película apresenta frente aos fluxos da mistura gasosa. O sentido em que os gases fluem, quer seja em cocorrente ou em contracorrente, assim como a velocidade da corrente gasosa e da corrente líquida de condensado são parâmetros que devem ser analisados ao nível de detalhe para um bom projeto do equipamento. Se a velocidade dos fluidos de processo, por exemplo, for elevada, deve-se evitar que o fluido a ser condensado circule pelo interior dos tubos, evitando que se origine com facilidade o arraste do condensado sob a forma de gotas, sendo então transportadas para zonas indesejáveis do equipamento ou da própria instalação da planta química.

Para o projeto de um trocador de calor do tipo carcaça e tubos, que opere na posição horizontal, normalmente se utilizam conjuntamente com o feixe tubular, chicanas, originando fluxos do tipo horizontal/cruzado e fluxo paralelo em relação aos tubos. Além disso, quando disposto na posição horizontal, o trocador deve ter uma leve inclinação para se evitar a inundação do equipamento pelo condensado, facilitando também a sua descarga.

2.3. - Trocadores tipo carcaça e tubos

Para a escolha do tipo de dessublimador a ser utilizado no processo de produção do hexafluoreto de urânio, fez-se uma análise criteriosa e sistemática de vantagens e desvantagens considerando os diferentes tipos de trocadores de calor disponíveis no mercado. Mostrar-se-á, mesmo que de modo resumido, como podem ser classificados os trocadores de calor, já que foi o caminho percorrido para detalhar os critérios da seleção do equipamento a ser utilizado como dessublimador do hexafluoreto de urânio.

Os trocadores de calor podem ser classificados em: tubulares, de carcaça e tubos, trocadores de calor de placas, e trocadores de contato direto. Alguns autores se dedicaram

a publicar trabalhos voltados mais para o projeto de trocadores de calor, e dentre eles o de Kern (1950), Ludwig (1965), Rohsenow e Hartnett (1973). No presente estudo só se consideram os trocadores de calor de carcaça e tubos, também chamados de trocadores de casco e tubos ou permutadores de envólucro e tubos.

Dentre as diferentes maneiras de se classificar os trocadores de calor, pode-se diferenciá-los levando em conta fatores tais como:

- os tipos de processos de transferência de calor,
- grau de compactação das superfícies,
- considerações gerais de projeto,
- arranjo dos fluxos dos fluidos de processo,
- vazões dos fluidos de processo,
- mecanismos físico-químicos da troca térmica.

Não cabe no contexto deste trabalho detalhar a descrição de cada uma destas classificações, citando-as aqui apenas a título de exemplo, para se poder analisar numa fase posterior deste trabalho, como a escolha recaiu sobre um trocador de calor de carcaça e tubos.

2.3.1 - Condensadores

Apesar da condensação ser praticada nos mais diferentes tipos de trocadores de calor, este estudo se dirige principalmente aos trocadores de calor do tipo carcaça e tubos, o tipo selecionado para uso no processo de dessublimação do hexafluoreto de urânio.

Uma das preocupações da engenharia de processo no projeto de condensadores diz respeito à inundação do equipamento, originada por excesso de condensado retido em seu interior. Holmes(1950) e English e outros (1963) desenvolveram equações que levam em conta a taxa de inundação do equipamento durante os processo de condensação, enquanto

a condensação com drenagem do condensado foi estudada por Yau e Cooper (1986), Nicol e outros (1988).

Para o projeto de um condensador deve-se definir se a condensação se realizará no interior dos tubos, ou no lado da carcaça exteriormente ao feixe tubular, e nesse sentido aparecem os trabalhos de Boyko e Kruzhilin (1967) que estudaram a condensação no interior de tubos, com o condensador disposto na horizontal.

No caso de misturas, Bell e Ghaly (1972) desenvolveram um método para o cálculo da condensação de misturas gasosas multicomponentes e que pode ser utilizado para quaisquer compostos, sendo considerados importantes os seguintes parâmetros de processo para o cálculo da taxa local de energia térmica:

- temperaturas das interfaces,
- composições das diversas correntes,
- dados de equilíbrio dos compostos participantes do processo.

No caso particular de ocorrer subarrefecimento durante o processo de condensação, Rohsenow (1985) aborda esse aspecto para o caso de condensadores tipo carcaça e tubos, dispostos na vertical, e mais recentemente Webb e outros (1996) para a condensação em tubos verticais e horizontais no caso de ocorrer o subarrefecimento do condensado.

2.3.2 - Geometria dos trocadores de carcaça e tubos

Se por um lado a definição de qual seria o tipo de equipamento a ser utilizado na retenção do hexafluoreto de urânio, no processo do ciclo do combustível nuclear, exigiu uma intensa análise dos diferentes tipos de trocadores de calor, por outro lado cada uma das partes constituintes do equipamento também precisam ser definidas segundo uma criteriosa seleção, já que o equipamento ou a planta de produção não poderia apresentar

riscos de vazamento. Considerando tanto os aspectos relevantes da transferência de calor como os aspectos de segurança industrial, exigiu-se uma análise detalhada das partes constituintes dos trocadores de calor de carcaça e tubos. Ao se fazer um estudo comparativo entre um trocador de calor do tipo carcaça e tubos e outros trocadores, constata-se a existência de um número elevado de peças que constituem os trocadores de carcaça e tubos. Se por um lado o aumento de número de peças constituintes do equipamento aumenta a probabilidade de vazamento, por outro pode-se afirmar que os trocadores de calor de carcaça e tubos encontram-se perfeitamente consagrados quanto as normas de projeto e fabricação. Nos itens a seguir apresenta-se a descrição de algumas partes constituintes do trocador de calor do tipo carcaça e tubos, e que foram consideradas de grande importância para definição final do dessublimador de hexafluoreto de urânio.

2.3.3 - Aletas e chicanas

Os trocadores de calor de carcaça e tubos podem possuir aletas e chicanas no lado da carcaça, que tanto servem para aumentar as taxas de transferência de energia térmica, como apresentam a função de dispositivos estruturais para a fixação dos tubos constituintes do feixe tubular. As aletas e chicanas aumentam a eficiência da troca térmica, e tempo de vida do equipamento, evitando, por exemplo, danos causados por vibrações do feixe tubular, que podem ocorrer quando os fluidos de processo circulam com velocidades elevadas. Dentre os diferentes tipos de chicanas existentes pode se citar:

- chicanas planas, que originam fluxos transversais ao feixe tubular, Grant e Chisholm (1977), Saffar e Damangir (1995), Roetzel e Lee (1994), Roetzel e Lee (1993), Mukherjee (1992);
- chicanas com orifícios anulares, cujo desenvolvimento deveu-se à empresa Philips Petroleum Company e aparecem citadas no trabalho de Small e Young (1977).

No projeto de uma chicana, sua área apresenta um corte compreendido normalmente entre 15 a 45 % da sua área total, utilizando-se mais freqüentemente de 20 a 25%, com os quais se origina baixos valores de perda de carga e um escoamento dos fluidos de processo com boas características. Além disso, as chicanas devem apresentar uma folga mínima entre sua parte periférica e a parede interna da carcaça, de modo a evitar curto-circuito no fluxo do fluido de processo. Se a especificação da folga da parede da chicana c da carcaça for elevada, parte do fluido não contata com a área disponível do feixe tubular, deixando de atravessá-lo transversalmente, diminuindo assim a taxa de troca térmica. Pesquisadores tais como Small e Young (1977), Gardner e Taborek (1977) estudaram a eficiência de diferentes tipos de chicanas, verificando qual a influência do "bypass" sobre a diferença média das temperaturas nos trocadores de calor. As tolerâncias definidas para essas folgas dependerão da especificação da carcaça se deu a partir de um tubo, ou de uma chapa calandrada. Caso a carcaça seja construída a partir de tubo a tolerância é de 1,6 mm, enquanto que a tolerância para a folga e para carcaça construída de chapa varia de 3,2 mm a 4,8 mm dependendo do diâmetro do trocador.

Se a folga entre a parede interna da carcaça e as chicanas é importante, não menos o é a folga a ser definida entre as paredes externas dos tubos e o diâmetro dos furos nas chicanas, por onde passa o feixe tubular. Esses furos são também pontos de "vazamentos". A folga máxima de projeto não deve ultrapassar 0,8 mm. Além dessas folgas, deve-se definir a espessura das placas, com as quais se fará a construção das chicanas, e frente às condições do processo são dadas por normas e padrões da construção dos trocadores de calor.

A definição de como se posicionam as chicanas no interior do trocador, deve levar em conta a existência do espaçamento chicana/chicana, estabelecido por norma, e que está compreendido entre 0,2 e 1,0 diâmetros da carcaça do trocador. Quanto menor for o espaçamento entre as chicanas com maior eficiência se dará a transferência de calor originando coeficientes de troca mais elevados, mas resultando também numa perda de carga mais acentuada ao longo do equipamento. O espaçamento normalmente utilizado para as chicanas está compreendido entre 0,3 e 0,5 diâmetros da carcaça. Além das chicanas, o trocador de calor tipo carcaça e tubos, utiliza placas de suporte para sustentação dos tubos. As placas de suporte nada mais são do que chicanas segmentadas com uma tolerância menor na folga de seus furos, com valores normalmente iguais a 0,4mm. Estes suportes de sustentação também obedecem a critérios de espaçamento, utilizando-se, por exemplo, espaçamento de 1 metro para tubos de 16mm, e de 2 metros para tubos de 25 mm de diâmetro. Tanto as chicanas como as placas de apoio são sustentadas e fixadas em suas posições por tirantes e espaçadores. O número de barras de fixação é dado por normas específicas e dependerá do diâmetro do trocador. Poderão ser em número de 4 barras de 16 mm para trocadores que tenham a carcaça até 380 mm de diâmetro, ou 8 barras de 12,5 mm para carcaças de 1 m de diâmetro. Os pesquisadores que dedicaram seus trabalhos ao estudo dos fluxos dos fluidos de processos pelas folgas das chicanas são: Saffar-Avvar (1995), Roetzel e Lee (1994), Roetzel e Lee (1993), Hessel Greaves e outros (1993), Keene e outros (1993), Grant e Cotchin (1984).

2.3.4 - Placa do feixe tubular

A placa de fixação do feixe tubular, também denominada de espelho do trocador, é uma peça importante nos trocadores de carcaça e tubos, principalmente nos casos em que a mistura dos fluidos do processo pode originar situações de risco elevado. Essas placas ficam submetidas tanto à pressão existente do lado da carcaça, como à pressão do processo no lado dos tubos. Para a construção da placa dos tubos pode se obedecer às normas TEMA ou a norma inglesa BS 5500, sendo a sua espessura definida por essas normas de construção, mas como regra geral pode-se dizer que nunca podem ter uma espessura inferior à espessura dos tubos que estão sendo utilizados no feixe tubular do trocador, com um limite de até 25 mm para diâmetro dos tubos.

Nos casos em que a mistura dos fluidos de processo pode originar riscos letais, por exemplo, risco de explosão, a construção da placa do feixe tubular pode ser feita sob a forma de placas duplas com ventilação entre elas. Esse tipo de construção origina uma estanqueidade eficaz entre câmaras. Na construção de um trocador, como a placa diminui o real comprimento dos tubos, devemos levar esse fator em conta, quando da construção do equipamento. Numa primeira aproximação considera-se 25 mm de comprimento a mais para cada tubo quando do projeto do trocador.

2.3.5 - Velocidade dos fluidos

Na medida em que a velocidade dos fluidos do processo é elevada, os coeficientes de troca térmica e a perda de carga no equipamento aumentam. As velocidades a serem utilizadas devem ser tais que evitem a sedimentação de algum tipo de sólido que esteja presente nos fluidos e, por outro lado essa velocidade deve ser tal que não origine erosão no equipamento. Para o caso de líquidos circulando no lado dos tubos, utiliza-se de 1,0 a 2,0 m/s, com velocidade máxima de 4,0 m/s. No lado da carcaça, a velocidade normalmente está compreendida entre 0,3 e 1,0 m/s. Para vapor, a velocidade a ser utilizada dependerá da pressão do processo e da massa específica do fluido. As substâncias que apresentam peso molecular elevado podem ser utilizadas com as seguintes velocidades no lado da carcaça:

ł	* vácuo	50 a	70 1	n/s.
*	pressão atmosférica	. 10 a	. 30	m/s.
*	altas pressões	5 a	10	m/s.

No caso de trocadores de calor que apresentam elevadas velocidades do fluido no lado da carcaça, por exemplo por volta de 3,0 m/s, torna-se importante a análise de como os tubos estão fixados, podendo ocorrer condições de ressonância por vibração dos tubos. Pesquisadores como Moretti (1973), Thorngren (1970), Lord e outros (1970), estudaram o efeito das vibrações sobre os tubos dos trocadores de calor.

A velocidade dos gases é um parâmetro importante a ser analisado, porque interfere sobre a troca térmica, por atuar diretamente sobre o comportamento da película de condensado. Rohsenow (1985) apresentou equações que levaram em conta as variáveis

do processo sobre os coeficientes da troca térmica, enquanto outros trabalhos de autores tais como Palen e outros (1977) e Breber e Palen (1979), Butterworth (1977) e Taborek (1974) apresentam estudos sobre o efeito da velocidade dos fluidos do processo sobre a condensação.

Butterworth (1977) em seu trabalho desenvolveu um método para o cálculo da condensação em trocadores de calor do tipo carcaça e tubos, com o condensado se formando fora dos tubos, considerando que o coeficiente global de transferência de calor era constante para cada passo e para um ponto no interior da carcaça.

Taborek (1974) analisou a condensação para o caso de condensador do tipo carcaça e tubos montado na posição horizontal apresentando altas velocidade dos fluidos do processo e considerando um banco ideal de tubos definindo a expressão:

$$Nu = 0.3 \operatorname{Re}^{0.6} \operatorname{Pr}^{0.4} \sqrt{\left(\frac{\rho_l}{\rho_g} + 1\right)}$$
 (2.3.5-1)

2.3.6 - Parâmetros significativos do processo

Quando num processo de condensação a mistura gasosa à entrada do processo é formada por gases não condensáveis, estes concentram-se ao longo do processo e podem levar a uma diminuição significativa da eficiência do processo de transferência de calor. Alguns trabalhos aparecem na literatura tratando da purga dos gases inertes, durante os processo de condensação: Grant (1969), Eissenber e Bogue (1970). Durante o processo de condensação de misturas contendo gases não condensáveis pode ocorrer a formação de névoas devido a corrente gasosa atingir a condição de supersaturação. Verifica-se que a tendência para a formação de névoas é uma propriedade inerente da mistura e fica definida pela relação Pr/Sc. O estudo da formação de névoas nos processos de condensação foi realizado por pesquisadores tais como Browers e Geld (1996), Browers

(1991), Gardner (1974), LoPinto (1982), Steinmeyer (1972). Colburn e Edison (1941). Khan (1972) estudando a condensação para dois valores de temperatura e variando a quantidade de não condensáveis na corrente gasosa, estabeleceu que existia um valor mínimo para a velocidade do vapor deixando o último banco de tubos.

2.3.7 - Aumento da transferência de calor

Na medida em que as mais diversas áreas tecnológicas se preocupam com aspectos referentes à economia de energia, mais intensos se tornam os estudos sobre os mecanismos de transferência de calor e massa, dando-se uma maior ênfase ao desenvolvimento de técnicas que levam a aumentos no rendimento desses processos. Assim ao longo dos últimos 50 anos publicaram-se mais de 5000 artigos referentes aos processos de transferência de calor e matéria e que mostravam diferentes alternativas de como se pode aumentar a eficiência desses processos. No final dos anos 70, esse tipo de estudo apresentou um significativo aumento em número de publicações, chegando a cerca de 300 trabalhos em um ano.

Bergles e outros (1979) definiram 13 modos pelos quais se podia aumentar a área de transferência de energia:

- superfícies previamente preparadas;
- superfícies rugosas;
- superfícies estendidas ou expandidas;
- uso de dispositivos de deslocamento;
- uso de dispositivos para criar turbilhões no fluxo;
- uso de dispositivos que atuam sobre a tensão superficial;
- uso de aditivos para gases;
- uso de aditivos para líquidos;
- agitação mecânica;
- vibração das superfícies;

- vibração dos fluidos do processo;
- uso de campos eletromagnéticos;
- uso de superfícies porosas com injeção ou sucção.

Webb (1980) considera num estudo posterior que essas técnicas na realidade podiam ser classificadas em dois grandes grupos: técnicas ativas e técnicas passivas. Enquanto que nas técnicas ativas se faz necessário a ajuda de alguma fonte externa de energia, por exemplo um campo eletromagnético, nas técnicas passivas, o aumento da área dar-se-ia por exemplo, apenas por modificações introduzidas na geometria das superfícies que contatam com os fluidos do processo. Nos itens seguintes do trabalho se abordará de maneira breve os principais métodos para aumento das áreas de troca térmica.

2.3.7.1 - Acabamento das superfícies

No estudo da condensação em gotas Griffith (1985) recorreu ao processo de tratamento das superfícies de troca térmica para aumentar a taxa de transferência de energia, enquanto Tanawasa (1978) estudou os processos de condensação à escala industrial determinando quais as dificuldades que apresentavam, enquanto Glicksman e outros (1973) estudando a condensação de vapor em película e em tubos dispostos horizontalmente, verificaram que o coeficiente médio da troca térmica podia ser aumentado em 20 % utilizando materiais não "molháveis" que envolviam os tubos, e dentre eles citavam o Teflon®. Holden e WanniaraChchi (1987) recorreram a recobrimentos orgânicos para estudar a condensação de vapor.

Os estudo sobre a troca térmica com mudança de fase se dirigiram a certa altura para a análise da rugosidade dos tubos. Assim aparece este fator como um parâmetro capaz de aumentar a capacidade da troca nos processos de condensação, e sendo apresentada nos trabalhos de Medwell e Nicol (1965), Nicol e Medwell (1966). Carnavos (1980), por sua vez, verificou que o aumento da eficiência no processo de condensação podia se dar numa ordem de 4 a 5 vezes sobre os valores dos coeficientes de transferência de calor. Dentre os trabalhos significativos sobre a condensação e o efeito da rugosidade das superfícies estão os de Cox e outros (1970), que estudaram a troca térmica em unidade piloto, Luu e Bergles (1981), Fenner e Ragi (1979).

2.3.7 2 - Superfícies expandidas

Se a rugosidade superficial das áreas de troca térmica aumenta, a eficiência dos processos também aumenta, aparecendo na literatura trabalhos que se dedicaram ao estudo de técnicas para "aumentar" as áreas onde se dá a transferência de calor para os processos de condensação. Os coeficientes de transferência de calor baseados nas áreas totais são superiores quando se utilizam as superfícies denominadas de estendidas ou expandidas. Os pesquisadores Rudy e Webb (1981), Rudy e Weeb (1985), Weeb e Rudy (1985) estudaram o caso da transferência de calor em tubos aletados, considerando diferentes fluidos de processo. Yau e Cooper (1985) dedicaram-se ao estudo da influência do espaçamento das aletas nos tubos de condensadores, analisando a eficiência do processo.

Dentre os trabalhos pioneiros tem-se o de Beatty e Katz (1948), Thomas e outros (1979) e de Gregorig (1950) que estudaram a condensação para tubos aletados, e apresentaram modelos teóricos para esses casos, sendo que este último autor analisou a troca térmica em superfícies expandidas por ondulações convexas.

Nakayma e outros (1975) estudaram superfícies estendidas, em três dimensões, para tubos de condensadores horizontais, Termoexcel-C, encontrando coeficientes de troca superiores em até 7 vezes maiores com relação aos calculados para tubos lisos, enquanto que Arai (1977) estudou tubos aletados comercialmente disponíveis.

Taborek (1974) em seu trabalho de revisão sobre os processos de transferência de calor estabelece qual o melhor espaçamento das aletas para se obterem melhores

condições nos processos de condensação, mostrando que a retenção do condensado é uma função da geometria da aleta e da tensão superficial do condensado.

Chandran e Watson (1976) obtiveram valores para o coeficiente de transferência de calor 200 vezes superiores em relação aos obtidos para superfícies lisas quando utilizavam tubos aletados com pinos circulares, considerando como base a mesma área total. Trabalho muito significativo foi desenvolvido por Carnavos (1980) apresentando teste dos mais diversos tipos de tubos de condensadores, utilizados horizontalmente, e disponíveis comercialmente. Verificou que de um modo geral havia um aumento de cerca de 175 % na transferência global de energia. O trabalho de Alexander e Hoffman (1971) serve como um guia para a escolha de tubos a serem utilizados em trocadores verticais. Verificaram que em média o coeficiente global de transferência de calor aumentava em cerca de 200 % nos processo de dessalinização. Vrable e outros (1974) estudaram a condensação do Freon R-12® em tubos horizontais internamente aletados, verificando que o coeficiente de transferência aumentava cerca de 200 %. Estudo semelhante foi realizado por Reisbig (1974) aumentando a área de troca térmica por volta de 175 %.

Webb e Gee (1979) utilizaram tubos com aletas de pinos quadrados, enquanto que Notaro (1979) desenvolveu o cálculo para tubos aletados com técnicas especiais nos quais depositavam sobre a superfície dos tubos partículas metálicas de maneira aleatória, com a película do condensado se formando sobre essas partículas e a camada líquida de condensado escorrendo nas partes lisas dos tubos. Desenvolvimentos dentro dessa linha de pesquisa, mas realizados numa escala maior de projeto, à escala industrial, foram conduzidos por Blumenkrantz e Taborek (1970), Palen e outros (1971).

Marto e outros (1979) consideram os diferentes tipos de tubos aletados dispostos horizontalmente, apresentando geometrias diferentes para os processos de condensação. Dentre as diferentes formas citam-se os tubos corrugados de forma helicoidal, os tubos deformados de modo helicoidal apresentando geometria em espiral internamente e externamente. Trabalho importante e que serve como guia para a seleção de tubos com superfícies expandidas para condensadores é o desenvolvido por Mehta e Rao (1979). Withers e Young (1971) analisaram o uso de tubos de superfícies expandidas e constituintes de um banco de tubos no trocador. Para tubos com a superfície expandida por ranhuras, tanto verticais como horizontais encontra-se na literatura os trabalhos de Thomas (1968) e de Thomas (1967), respectivamente. Thomas e outros (1979) realizaram um estudo comparativo do processo de condensação entre tubos lisos e tubos com ranhuras espaçadas, e de forma helicoidal, verificando um aumento de 3 vezes nos dados obtidos quando se utilizavam tubos com superfícies expandidas. Para o caso do uso de fios helicoidais, Kumar e Judd (1970) determinaram um aumento de 30 a 100 % para o coeficiente de transferência de calor, enquanto que Lopina e Bergles (1969) determinaram aumentos acima de 90 % para o caso de fios. Hong e Bergles (1976) estudaram casos de fluidos de processo em regime laminar, com aumento da superfície realizada também por fios. Mori (1981) e outros estudaram a otimização das superfícies externas expandidas nos processo de condensação, enquanto que Barnes e Rohsenow (1981) determinaram analiticamente a eficiência das trocas térmicas na condensação.

À escala industrial aparecem os trabalhos de Lewis e Sather (1979), e Lorenz e outros (1979). Dentre os vários autores que estudaram a condensação do Freon ® em tubos com superfícies expandidas, aparecem os trabalhos de Royal e Bergles (1978), Luu e Bergles (1981), Rifert e Zadiraka (1978). Mais recentemente aparecem os trabalhos sobre condensação em tubos aletados e publicados por Yau e Cooper (1986), Yau e Cooper (1985), Sarma e Mayinger (1992), que estudaram o uso de aletas metálicas porosas, e ainda o trabalho de Wen e outros (1994).

2.3.7.3 - Dispositivos de agitação e vibração

Aumentando-se a agitação dos fluidos de processo junto às superfícies de troca térmica, a taxa de transferência de energia aumenta, e nessa linha de estudo alguns pesquisadores estudaram a influência deste parâmetro sobre a condensação, por exemplo introduzindo telas metálicas no interior dos equipamentos para aumentar a agitação dos

fluidos de processo. Outros utilizaram misturadores estáticos, anéis, discos, ou mesmo esferas que colocados junto das áreas de troca, tornavam mais intensa a agitação dos fluidos e deste modo obtinham uma maior eficiência na transferência de calor. Aparecem na literaturas os trabalhos de Azer e outros (1977), Fan e outros (1978). Nestes casos, de uso de dispositivos de agitação incluem-se ainda os trabalhos de Royal e Bergles já citados anteriormente, assim como a publicação de Royal e Bergles (1978), Luu e Bergles (1979), Luu (1979), Shklover e Gerasimov (1963), e Traviss e Rohsenow (1973).

Ainda com o objetivo de se aumentar a agitação dos fluidos, aparecem na literatura estudos em que a vibração é exercida sobre os equipamentos de tal modo que seus efeitos se fazem sentir sobre os fluidos em contato com as áreas de troca térmica. Em outros casos atua-se sobre os fluidos de processo, já que por algum motivo não se pode atuar sobre o equipamento. Nestes casos os trabalhos publicados tem mostrados que os processos de transferência de energia e matéria são alterados ao se introduzirem vibrações no sistema, e enquadram-se aqui os estudos de Dent (1970), Brodov e outros (1977), quando analisaram os processos de condensação em presença de vibrações aumentando assim em cerca de 10 a 15 % as taxas de troca térmica. Nos casos em que se torna difícil a vibração dos equipamentos onde se realizam os processo de transferência de calor aplicam-na aos fluidos; e para a condensação tem-se o trabalho de Mathewson e Smith (1979) que recorreram aos efeitos da vibração acústica sobre um processo de mudança de estado do isopropanol.

2.3.7.4 - Uso de campos eletromagnéticos

Velkoff e Miller (1965) estudaram o efeito de campos elétricos uniformes e não uniformes, no processo de condensação do Freon R-113® para placas planas, enquanto Choi e Reynolds (1966) e Choi (1967) estudaram a condensação desse composto em tubos.

2.3.8- Aspectos do projeto mecânico.

Ao se desenvolver o projeto de trocadores de calor e analisando-se os diversos parâmetros a serem considerados, deve-se definir quais os níveis de pressão exigidos pelo processo, considerando-se os equipamentos como vasos de pressão, e levando-se em conta que podem ocorrer vazamentos para o ambiente, ou do ambiente para o interior do equipamento, no caso de se utilizar vácuo, ou ocorrer o vazamento entre diferentes compartimentos do trocador em estudo. Durante a elaboração do projeto mecânico os aspectos de segurança devem ser confrontados com os parâmetros de processo, a pressão de projeto, em seus valores mínimos e máximos. As tensões que surgem no equipamento quando de sua operação no processo químico, não podem ser desvinculadas desses critérios de análise de segurança, mesmo porque pode haver uma interdependência entre as variáveis do processo, tais como temperatura e pressão, e as condições de falha mecânica do equipamento.

Num trocador de calor a diferença de temperatura entre as diversas correntes dos fluidos do processo adquire grande importância quando da definições do parâmetros para cálculos do projeto mecânicos referentes ao desenho de construção do trocador de calor. Gardner (1974) por exemplo, considera diferentes tipos de quadrantes no trocador para diferentes valores das temperaturas. As especificações que dizem respeito à construção dos trocadores de calor seguem as normas existentes, e dentre as diversas normas pode considerar-se a Boiler and Pressure Vessel Code of the American Society of Mechanical Engineers (ASME Code).

Para a elaboração do projeto mecânico de um trocador de calor, seleção dos materiais e sua construção segue-se o TEMA, *American Tubular Heat Exchangers Manufactures Association*, ou por exemplo normas inglesas, e dentre elas tem-se a BS 3274, da *British Standard*. Além dessas normas existe a HEI, Heat Exchange Institute,

British BS 1500,a Dutch Stoomwezen, e a ISO International Standards Organization: Pressure Vessels Standards. Considerando o trocador de calor como um vazo de pressão, aplica-se o ASME Seção VIII, enquanto que segundo as normas britânicas segue-se a BS 5500 para projeto da carcaça, com os flanges obedecendo à norma BS 3274.

O trocador de calor do tipo carcaça e tubos é o que apresenta dois fatores considerados de grande importância para o presente estudo. Um deles é a grande área de troca térmica disponível que se pode conseguir com um projeto adequado ao processo, e o outro fator é que esse tipo de equipamento ocupa um pequeno volume que facilita os estudos referentes ao arranjo (leiaute) da instalação. Além disso, ao se levar em conta os aspectos de segurança industrial, o trocador do tipo carcaça e tubos é o tipo mais seguro, até mesmo porque suas normas de construção se encontram muito bem estabelecidas, já que é utilizado há algum tempo na industria química em geral.

Os trocadores de calor do tipo carcaça e tubos podem apresentam diferentes opções quanto à sua construção mecânica, podendo-se escolher quais os tipos de extremidades que podem ser usadas no equipamento, os diferentes tipos de chicanas, uso ou não de tubos aletados. Abre-se então um número razoável de alternativas que podem definir um trocador de calor de carcaça e tubos. Os tubos normalmente utilizados nesse tipo de trocador não são aletados, a não ser nos casos especiais. Quando da seleção de um trocador de calor do tipo carcaça e tubos, é importante que se escolha qual o melhor arranjo para os fluxos dos fluídos de processo, com as correntes fluidas podendo ser arranjadas em paralelo ou contra - corrente, ou os fluxos arranjados em múltiplas passagens.

As diferentes maneiras da construção interna dos trocadores de calor de carcaça e tubos são apresentadas com certo detalhe no trabalho de Mueller (1973), dando o autor ênfase aos aspectos de corrosão, que pode conduzir a vazamentos dos fluidos de processo.

Na definição da disposição e escolha dos tubos deve-se considerar a facilidade com que a limpeza pode ser feita, definindo-se na medida do possível os tubos de diâmetros maiores. Se o aspecto de arranjo no projeto for importante, deve-se dar preferência a trocadores de menores dimensões, utilizando-se tubos de menores diâmetros. Para dimensão dos tubos pode-se utilizar as normas inglesas BS 3606 e BS 3274. Normalmente os tubos encontrados no mercado estão na gama de 5/8 polegada (16mm) e 2 polegadas (50mm). De um modo geral, os mais utilizados tem diâmetros compreendidos entre 5/8 a 1 polegada. Na fabricação de trocadores de um modo geral; se usa o diâmetro de 1/2 ou 3/4 para dar início aos cálculos do trocador. No caso de uso de tubos longos pode-se obter um trocador de menor diâmetro, reduzindo assim seu custo, considerando uma mesma área de troca térmica para os casos em análise. Os tubos normalmente encontrados no mercado são de 6 pés (1,83 m), 8 pés (2,44 m), 12 pés (3,66 m) e 16 pés (4,88 m) de comprimento. O número de tubos que normalmente se pode acomodar dentro de uma carcaça pode ser encontrado nas publicações de Kern (1950), Ludwig (1965), Perry e Chilton (1973), com esse número dependendo do tamanho dos tubos, do passo e do número de passagens.

Durante a elaboração do projeto da carcaça de um trocador, segue-se a TEMA, com a qual se pode construir trocadores de diâmetro até 60 polegadas (1520 mm), ou utiliza-se a norma britânica, BS 3274, para a construção de equipamentos desde 6 polegadas (150 mm) até 42 polegadas (1067 mm).

2.4 - Métodos de cálculo e projeto do trocador de calor

Para o projeto de um trocador a ser utilizado num processo de condensação os métodos que podem ser utilizados pertencem a duas grandes categorias:

- os que consideram o estado de equilíbrio, Webb e outros (1996),
- e os métodos diferenciais, Taylor e outros (1986), Marriott (1989).

Nos métodos de equilíbrio não se consideram os processos de transferência de massa no lado da fase do vapor, com o fluxo global do vapor e do líquido condensado num plano normal ao fluxo principal, estando em equilíbrio numa temperatura intermediária entre o ponto de orvalho e de ebulição do fluxo de alimentação. Este método é mais indicado para os casos em que a condensação ocorre de modo que o vapor e o condensado não se separam, com a composição global local sendo a mesma da composição do vapor de alimentação.

Nos métodos diferenciais, consideram-se as taxas locais de transferência de calor e massa que são combinadas com as equações diferenciais dos balanços de energia e matéria, levando-se em conta sob a forma diferencial as temperaturas do vapor e do fluido de arrefecimento e a composição do vapor ao longo do equipamento.

O método de equilíbrio apesar da sua simples aplicação e de não considerar que os processos de transferência de matéria estão envolvidos diretamente no processo, não requerem o conhecimento, por exemplo, dos valores das difusividades binárias. Uma desvantagem da aplicação desse método é que não se consideram os aspectos de formação de névoas no processo de condensação que são resultantes do afastamento das condições de equilíbrio. Ward (1960) analisa a aplicação do método de equilíbrio para o caso de haver separação das fases vapor e condensado.

2.4 1- Concepção do processo de dessublimação

Para a transferência de calor em que um dos fluidos do processo muda de fase forma-se uma resistência adicional sobre as superfícies de troca devido à presença do produto resultante dessa mudança de fase. No processo de condensação o produto é um líquido que flui sobre as paredes do feixe tubular, enquanto que no presente estudo de dessublimação, o produto é um sólido que se deposita na superfície externa dos tubos. Neste trabalho a dessublimação do UF₆ consta de um fluxo de gases que contém um componente que é dessublimado a uma temperatura definida pelo processo, enquanto que os outros componentes gasosos não condensáveis percorrem todo equipamento sem sofrerem mudança de estado.

Na condensação, à medida que o processo se dá o composto gasoso condensável vai se acumulando no interior do equipamento, até uma quantidade tal que a película líquida localizada sobre as áreas de troca térmica altera os mecanismos de transferência de energia, matéria e de momento. Se o trocador de calor tem ainda por finalidade acumular sob forma de bateladas, em seu interior, o composto que muda de estado, com o propósito de recolhê-lo, trabalhando em ciclos de armazenamento, de modo a poder acumular em seu interior o produto e descarregá-lo numa fase posterior.

À entrada do equipamento a mistura gasosa está superaquecida, com o componente condensável numa condição que pode estar distante da condição de saturação. Num trecho inicial no interior do equipamento, o fluxo gasoso superaquecido da alimentação entra em contato com as paredes frias do trocador de calor, iniciando seu arrefecimento, formando-se uma camada sólida sobre as paredes frias do trocador. Num determinado local se atinge a condição de saturação, e inicia-se então a mudança de estado do componente condensável formando-se névoas do composto condensável, ainda na corrente gasosa.

As variações da transferência de momento também se fazem presentes na condensação, já que se originam variações nos fluxos da mistura gasosa. À medida que se dá o acúmulo do composto condensável o valor da perda de carga no equipamento se altera, modificando os perfis de velocidade, com o fluxo gasoso originando turbilhões na superfície do condensado e que dependerá da velocidade dos gases de processo, ocorrendo ondulações sobre o condensado.

Se o equipamento for projetado para operar em bateladas, o espaço disponível para o fluxo dos gases diminui à medida que o seu enchimento progride, ou seja, o equipamento tende para condição de enchimento e entupimento, ou de inundação, aumentando também a tendência para se desenvolverem regimes turbulentos nos espaços mais estreitos de passagem dos gases, enquanto as vazões da mistura gasosa são elevadas e constantes. Seria prematuro afirmar que as condições de processo em alguns casos ditam as "regras do jogo" para a melhor concepção do trocador de calor. Deste modo, nos casos em que há mudança de estado de um composto no interior do trocador de calor de calor devemos analisar em detalhe qual a melhor geometria do trocador, considerando algumas alternativas, tais como:

- como se dará o acúmulo do condensado?
- como se fará a descarga do produto?
- operará ou não por bateladas o equipamento?

2.4.2 - Deposição de sólidos

Um trocador de calor, como qualquer outro equipamento que irá integrar um processo químico, passa pelas diferentes etapas de projeto: Projeto Conceitual, Projeto Básico, e Projeto Detalhado, com as atividades da engenharia sendo exercidas desde a sua *concepção* até às etapas de *fabricação, instalação e operação*. Nessas fases, deve-se analisar dentre os mais diversos fatores intervenientes no processo, o da deposição de material sobre as áreas de troca térmica, quer seja de um líquido, no caso da condensação, quer seja de um sólido, no caso da dessublimação, ou mesmo os sólidos depositados e originados pelo processo, no caso de formação de incrustação. No caso de troca térmica e que podem ser estudadas sob os seguintes aspectos:

- métodos da formação da incrustação,
- variação da espessura da incrustação com o tempo,
- atuação dessa camada na troca térmica como um isolante.

Inclui-se uma breve análise da bibliografia sobre a deposição de sólidos em trocadores de calor, já que no presente caso da dessublimação também se deposita sobre as paredes do equipamento uma camada sólida, que cresce continuamente.

2.4.3 - Incrustação

Ao se formarem depósitos no interior de um trocador, verifica-se que à medida que a camada de sólidos se deposita e cresce sobre os tubos, alteram-se as condições com que se dão as transferências de calor e massa. Caso ocorra mudança de estado físico de um dos compostos do processo, alteram-se também as condições de transferência de momento, variando ao longo do equipamento, com o tempo e os perfis de concentração, de temperatura e de pressão que se alteram ponto a ponto. O TEMA, Tubular Exchanger Manufacturer's Association estabelece, para projeto de trocadores de calor alguns valores para o fator de incrustação, enquanto que Rohsenow e Hartnett (1973) apresentam tabelas com fatores de incrustação para serem utilizados no projeto desses equipamentos.

Epstein (1978) definiu a incrustação formada no interior dos trocadores de calor como sendo um "acúmulo indesejável de material sólido nas fronteiras de fases", com o coeficiente global de troca térmica sendo dado pela equação seguinte:

$$1/U = 1/h_1 + R_{f1} + z/k_W + A_2/A_1 + 1/h_2 + R_{f2}$$

Muitos trabalhos já foram publicados sobre esse tema, entre os quais encontram-se os de Taborek e outros (1972), Bott e Walker (1971) e Suitor e outros (1977). Taborek e outros (1972) desenvolveram métodos para previsão de valores da incrustação, enquanto que em seu trabalho, Epstein (1978) classifica a incrustação em seis categorias segundo suas causas imediatas:

 Incrustações em escamas que ocorrem em processos de evaporação e, de modo geral em áreas de troca térmica superaquecidas, e que são originadas a partir de deposições de sais cristalizados sobre as áreas de troca térmica.

- Incrustação de particulado, incluindo-se neste caso as partículas sólidas que se depositam originadas por processos de sedimentação de sólidos; e tendo como força motriz da deposição o efeito da gravidade, ou qualquer outro mecanismo capaz de depositá-las sobre as paredes do trocador.
- Incrustações resultantes de reações químicas, por exemplo, quando ocorrem processos de polimerização, ou reações de precipitação no seio do fluido de processo.
- Incrustação por corrosão, quando originada por reações de corrosão entre as paredes do trocador de calor e os fluidos de processo, resultantes de processos químicos e/ou eletroquímicos.
- Incrustação biológica, quando se dá o acúmulo de material biológico nas paredes do trocador.
- Incrustação criogênica que se forma em processos que utilizam áreas de troca subarrefecidas, onde ocorre cristalização de um componente do fluido do processo.

Uma classificação semelhante foi apresentada por Bott (1973), enquanto Bott e Pinheiro (1976) estudaram detalhadamente a deposição biológica. Alguns autores analisaram a validade de se utilizarem esses conceitos, e mostraram a necessidade de se equacionar melhor a formação dos diferentes tipos de incrustação: Bott e Walker (1972), Suitor e outros (1977), Braun (1977), Taborek e outros (1972).

Conforme a classificação anterior, num trocador de calor de carcaça e tubos, capaz de acumular um composto por mudança de estado físico de um componente do fluxo gasoso do processo, pode se originar depósito devido a subarrefecimentos, devido a corrosão e/ou ainda por precipitação de partículas que se depositam sobre a área de troca de energia térmica devido a ação da gravidade, ou tendo como força motriz o gradiente de concentrações.

Considerando que a quantidade de material sólido que cresce sobre a área de troca térmica, por unidade de área, representa uma resistência à troca, chamada de resistência de incrustação, ela pode ser representada segundo diferentes leis, levando em conta a evolução de sua espessura no tempo. Na realidade define-se a variação no tempo da taxa de troca térmica do processo e, que pode apresentar o seguinte comportamento:

- aumento linear da resistência com o tempo,
- taxa de deposição decrescente com o tempo e,
- comportamento assintótico com o tempo.

Só após algum tempo de operação em processo do trocador de calor é que se pode distinguir entre esses diferentes tipos de crescimento da incrustação com o tempo. Autores tais como Hasson e Zahavi (1970) Hasson e outros (1968), Watkinson e Martinez (1976) e Bott e Gudmundson (1977), verificaram experimentalmente que a incrustação apresenta-se como uma resistência de comportamento assintótico. As tensões de cizalhamento originadas no processo podem alterar a espessura da camada de sólidos depositados, ocorrendo casos de remoção do depósito por efeitos dessas tensões. Morse e Knudsen (1977) analisaram o comportamento assintótico desse tipo de resistência à troca térmica, e concluíram que uma aderência maior da deposição sobre as paredes, tende a uma curva sob forma de uma assimptota mais intensa, o que parece diminuir a influência das tensões de cizalhamento sobre os sólidos depositados, enquanto que, Hasson e outros (1968) consideram que fatores importantes para a formação da incrustação, são os que envolvem processos de transferência de matéria por difusão e reações químicas.

McAllister e outros (1961) verificaram para o caso de trocadores de calor que utilizavam água do rio um comportamento assintótico intenso da resistência da camada incrustada, constatando a existência de uma elevada aderência para os depósito sólidos formados sobre os tubos do trocador. Dentre os autores que consideram em seus modelos a renovação dos depósitos sólidos, por mecanismos de migração das partículas em direção à corrente principal do processo, encontra-se o trabalho de Beal (1973). Este faz a distinção entre o depósito perdido em direção à corrente principal de fluxo, e o sólido que permanece aderente nas superfícies de troca térmica. A influência da incrustação sobre os perfis de temperatura nos processos de troca térmica foram estudados por Hauster e Thalmayer (1975).

2.4.4 - Modelos representativos da incrustação

Alguns modelos matemáticos desenvolvidos para representar a incrustação, consideram-na, no geral, de modo simplista, levando em conta uma série de simplificações tais como:

- a camada sólida é homogênea em toda sua espessura,
- a rugosidade superficial da incrustação é desprezada,
- para cada caso, só está presente um tipo de incrustação,
- as condições do fluxo permanecem constantes, permanecendo constante o valor da perda de carga no equipamento,
- de um modo geral, não se considera a condição de regime transitório, desde o início do processo quando a superfície do feixe tubular ainda se encontra limpa.

Os modelos de um modo geral também não consideram alguns parâmetros de operação tais como, as flutuações dos valores das variáveis de processo que podem ocorrer nos processos de troca térmica, o projeto do equipamento, a natureza dos processos, as condições iniciais da superfície e seu estado após sofrer corrosão, nem consideram as propriedades da própria incrustação. Estes modelos levam em conta apenas os parâmetros mais usuais do processo tais como:

- temperatura,
- velocidade do fluido,
- concentração e,
- tempo.

Alguns desses parâmetros são de difícil análise em simultâneo, pelo fato de exigirem modelos matemáticos de difícil resolução, ou mesmo porque sob o ponto de vista físico não podem ser analisados segundo equações que os representem simultaneamente.

Um composto qualquer que se deposita sobre o feixe tubular do trocador, o faz segundo um mecanismo que pode ser analisado por balanço material entre o composto que chega à superfície de troca térmica e o que a deixa entrando novamente na corrente do processo. Alguns estudos foram desenvolvidos para representar a resistência criada sobre a superfície dos tubos, dentre eles os de Kern e Seatton (1959). Consideram a quantidade de matéria depositada como sendo constante com o tempo, enquanto que a quantidade de matéria que reentra no fluxo de processo depende da quantidade que realmente se aderiu à superfície, aumentando segundo uma assimptota com o tempo, em relação ao fluxo de matéria que se difunde para a parede.

De um modo geral, considera-se que a incrustação é resultante de dois processos que ocorrem simultaneamente; um de deposição sobre as paredes de troca térmica e o outro de reentrada no fluxo principal do processo, gasoso ou líquido, de uma quantidade de sólidos que deixa a camada já depositada, representando-se por:

$$dm/d\theta = q_D - q_E$$

Pelo modelo de Kern e Seatton (1959) o valor de q_D permanece constante, enquanto que q_E aumenta com o tempo e é proporcional segundo uma assimptota ao valor de q_D . Esses pesquisadores levam em conta que a deposição é uma função linearmente dependente da velocidade do fluido do processo e da concentração global do composto na corrente principal do processo:

$$\mathbf{q}_{\mathrm{E}} = \mathbf{k}_{1} \mathbf{c}_{\mathrm{b}} \mathbf{v}$$

com k₁ sendo um coeficiente que engloba todas as variáveis do processo de troca térmica.

Rohsenow e Choi (1961) consideram a incrustação originando uma resistência à troca térmica, proporcional à sua espessura e inversamente proporcional à condutividade térmica do depósito formado. Neste caso a resistência da incrustação é dada por:

$$R_f = b_s / k_s$$

sendo bs a espessura do depósito e ks a sua condutividade térmica. Neste caso, a velocidade de depósito da incrustação será dada por:

$$R_f/d\theta = 1/k_s db_s/d\theta$$

Epstein(1978) desenvolveu modelo para representar a incrustação, apresentando diversos métodos para cálculo dos fluxos da matéria que se difunde em direção à parede, e dos fluxos da matéria que reentra na corrente de processo. Como nos casos clássicos de transferência de matéria, a taxa de deposição é proporcional à concentração dos componentes da mistura e ao coeficiente de transferência de matéria:

$$q_D = K c$$

sedo K o coeficiente de transferência de matéria e que depende do tamanho das partículas que se depositam.

Segundo o modelo de Claxton e Collier (1973) o coeficiente de transferência de matéria depende do tamanho das partículas que se depositam sobre a área de troca térmica. Os autores classificam os mecanismos que contribuem para a deposição de sólidos, considerando o tamanho das partículas:

deposição de compostos moleculares dissolvidos,

- deposição de pequenas partículas dissolvidas cujo coeficiente de difusão seja pequeno,
- deposição de partículas cujo tamanho origina efeitos inerciais no meio, penetrando na região laminar e cuja intensidade do transporte é uma função da turbulência do fluxo da corrente principal,
- deposição de partículas de grande tamanho cujo percurso é da ordem do diâmetro dos tubos.

Esses autores consideram ainda que a quantidade do material que se deposita sobre uma superfície unitária de troca térmica, depende do fator de resistência R_p , da densidade do sólido, da condutividade térmica e da espessura do depósito sólido. Determinando-se experimentalmente a quantidade de material depositado por unidade de área, ou o fator de incrustação em função do tempo, obtêm-se o que a literatura trata como sendo curvas de incrustação, e ainda a existência de um período inicial em que a deposição não ocorre, que denominaram período de incubação . Essas curvas podem apresentar os seguintes comportamentos:

- linear e crescente o com tempo, com a quantidade de sólido aumentando linearmente à medida que o processo se desenvolve,
- velocidade de deposição decrescente com o tempo,
- comportamento assintótico com o tempo, atingindo-se um determinado valor no tempo em que a deposição por unidade de área torna-se independente dessa variável.

Taborek e outros (1972) desenvolveram um modelo que considera a reentrada das partículas no fluxo fluido da corrente principal do processo. Definem que o transporte é proporcional às tensões de cizalhamento, e inversamente proporcional a aderência existente entre as partículas e as paredes do feixe tubular do trocador de calor.

Cleaver e Yates (1973), Cleaver e Yates (1975), Cleaver e Yates (1976) concluíram que a reentrada dos sólidos no fluxo de processo se deva a pequenas explosões e turbulência, que se originam de modo aleatório, formando turbilhões locais
que "arrancam" o sólido das paredes de troca térmica sendo transportadas em direção ao fluxo principal do processo.

Birchall (1979) estudou incrustação em processos que utilizam água do mar e dos rios. Trabalhos de Watkinson e Epstein (1969), Watkinson e Epstein (1970) definiram modelos cuja finalidade é representar a dependência da incrustação com a velocidade de fluido de processo, recorrendo às analogias entre os processos de transferência de energia e matéria desenvolvidas por Metzner e Friend (1958), enquanto que os estudos conduzidos por Bott e Gudmundson (1977) também mostraram haver uma dependência entre a velocidade do fluido e o mecanismo de formação da incrustação.

A incrustação também é originada pela precipitação de compostos dissolvidos nos fluidos de processo. Alterações de variáveis tais como a temperatura e concentração, podem dar origem a condições tais que levem o processo a atingir o ponto de saturação, no interior do fluxo de processo, dando origem a precipitados que se depositam sobre as superfícies de troca térmica. Nesta linha de estudos estão incluídos os trabalhos de Watkinson e Martinez (1975), Bott e Gudmundson (1977), Hasson e outros (1968), Mansfield (1979), e Bridgwater (1979). Poucos são os trabalhos que consideram o efeito simultâneo de alguns parâmetros de processo para a formação da incrustação: Newson (1979), Bott e Walker (1974). Em se tratando da incrustação biológica, pode-se consultar os trabalhos desenvolvidos por Epstein (1978), e Jensen (1977). Pesquisadores tais como Taylor e Wallace (1968), Lawler (1979), Hauster e Thalmayer (1975), Gillies (1979), Crittenden e Kolacskowski (1979) , estudaram a formação das incrustações a partir de reações químicas.

Como resultado da formação de sólidos na corrente global do processo, sua precipitação e deposição sobre as paredes dos tubos do equipamento, é natural que se considere também a dissolução desse material. Watkinson e Martinez (1975) consideraram que ao longo dos equipamentos de troca térmica ocorrem mudanças de temperatura e assim se alterem as condições de saturação. Definiram dois processos, que

denominaram de deposição resultante da solubilidade direta (normal) dos compostos presentes, ou a deposição que resulta da solubilidade inversa, quando se atinge o ponto de super saturação na corrente global do processo. Taborek e outros (1972) consideram os processos de deposição representados por reações químicas de ordem n com uma dependência do tempo de residência do material incrustado.

Os trocadores de calor que trabalham com fluidos corrosivos apresentam incrustação cujos mecanismos de formação são explicados por modelos desenvolvidos por Masterson e outros (1969), e levam em conta que os sais se depositam sobre as paredes da troca térmica obedecendo a vários mecanismos, que ocorrem principalmente em ebulidores. Mann (1975) supôs que a deposição de sais sobre as paredes dos trocadores dependia principalmente da temperatura da parede e da pressão desenvolvida no processo químico.

2.4.5 - Influência da incrustação

Ocorrendo a deposição de material sólido sobre as paredes dos tubos do trocador de calor, uma primeira alteração que pode ocorrer é a de natureza hidrodinâmica. Alteram-se neste caso os valores da perda de carga. Se pequenas partículas se depositam preenchendo micro - rugosidades das paredes dos tubos, é natural que a perda de carga diminua, numa ordem de grandeza infinitêsimamente pequena, e consequentemente a taxa de transferência de energia diminua de um valor muito pequeno. Existem também os casos em que as deposições de material levam o equipamento a apresentar uma perda de carga crescente, atuando a incrustação como uma rugosidade que aumenta sobre a superfície de troca térmica. Cohen (1969) analisou o efeito da deposição sobre as superfícies e concluiu que para os casos em que os equipamentos não operavam sob condições de ebulição, a transferência de energia térmica se dava por condução através do depósito. Para os casos de ebulição nucleada, Cohen e Taylor (1967) estudaram superfícies com depósito e isentas de sólidos. Macbeth (1977) analisou a troca térmica em equipamentos geradores de vapor. Shires (1972) estudou as variações da perda de carga no interior de trocadores de calor, originadas por deposições de sólidos, e concluiu que, para os casos em que os trocadores de calor operavam com fluidos monofásicos ou multicomponentes as alterações nos valores da perda de carga eram diferentes.

Outros autores estudaram os trocadores sob ponto de vista técnico - econômico analisando os custos adicionais causados pelas incrustações formadas. A título de exemplo, cita-se o trabalho de Pritchard (1979) que salienta os custos adicionais devido à incrustação, os quais originavam valores da ordem de 100 milhões de libras, durante o ano de 1977 na Inglaterra.

Apesar da bibliografia sobre trocadores de calor ser extensa, quer seja analisada sob um ponto de vista mais cientificado, quando são abordados os modelos matemáticos representativos dos modelos da condensação, quer sejam publicações com características mais tecnológicas que tratam mais do projeto dos trocadores de calor, muito pouco se encontra sobre o assunto sublimação. Os temas pesquisados nessa revisão da literatura tem como objetivo levar à formação de um conceito de como se abordou a escolha do tipo de trocador a ser utilizado na dessublimação / sublimação do hexafluoreto de urânio, as normas que foram seguidas para a construção desses equipamentos, assim como a análise de fatores tais como deposição de sólidos sobre as áreas de troca térmica, e a escolha das partes integrantes do trocador, tais como chicanas, aletas e seleção do espelho do trocador, e que foram de extrema importância para a melhor seleção do equipamento em estudo.

Assim, da análise da literatura conclui-se que os processos de dessublimação têm despertado pouco a atenção dos pesquisadores, sendo as investigações quase sempre dirigidas para um ou outro processo, uma ou outra condição específica. Como conseqüência o desenvolvimento de projetos de equipamentos nos quais se desenvolvem esses processos ressentem-se disso sendo pouco citados na literatura.

CAPÍTULO III

PROPRIEDADES DOS COMPOSTOS

3.1 - Introdução

Os processos de transferência de calor, massa e de momento que se desenvolvem durante a operação de um trocador de calor podem ter suas taxas alteradas, e dependentes da distância que os fluidos percorrem no interior do equipamento, e do tempo que dura o processo. As equações representativas dos transportes de energia, matéria e momento, tornam-se dependentes da composição global do fluxo, para um determinado local do trocador, tanto no sentido radial como longitudinal. As propriedades a serem consideradas neste trabalho, englobarão duas categorias, ou seja, as propriedades físico químicas e as propriedades de transporte. No primeiro caso estão incluídas a temperatura, pressão e a composição, enquanto que no segundo caso se consideram por exemplo, a difusividade, e a viscosidade. Realizar-se-á uma revisão bibliográfica dos trabalhos que publicaram as propriedades dos diversos compostos envolvidos no processo, apresentando-as sob forma de equações, tabelas ou gráficos.

3.2 - Propriedades do hexafluoreto de urânio

De um modo geral, as propriedades para o hexafluoreto de urânio foram determinadas e publicadas na sua grande maioria durante o período inicial do desenvolvimento do ciclo do combustível nuclear, a partir da década de 30 até fins dos anos 60.

3.2.1 - Coeficiente de difusão do UF₆

O processo de difusão do hexafluoreto de urânio foi estudado por Ney e Armistead (1947), que consideraram para difusão a equação:

$$\rho D = 234,726 \ 10^{-6} \text{ poise} \ (3.2.1-1)$$

válida para temperatura de 30 °C, sendo $D = 1,26 \text{ cm}^2 / \text{ s}$, para pressão de 10 mm Hg.

Para uma gama de temperaturas compreendidas entre 0 e 71 °C, Brown e Murphy (1965) determinaram experimentalmente o coeficiente de difusão, dado pela equação seguinte, e válida para a temperatura de 30 °C:

$$\rho D = 221 \pm 8 \ 10^{-6} \text{ poise} \quad (3.2.1-2)$$

DeMarcus e Starnes (1954), consideraram para o coeficiente de difusão do hexafluoreto de urânio o seguinte valor:

$$\rho D = 236 \ 10^{-6} \text{ poise} \quad (3.2.1-3)$$

enquanto que McMillan (1954), o calcularam teoricamente, obtendo:

$$\rho D = 265 \ 10^{-6} \text{ poise} \quad (3.2.1-4)$$

A equação indicada por Brower e Murphy (1965) pode ser escrita como:

$$\rho D = 1,117 T^{0,925} 10^{-7} N s/m^2 (3.2.1-5)$$

para um erro de mais ou menos 3,5%. A equação anterior tem seus dados representados no gráfico do Apêndice A.1-1.

3.2.2 - Densidade do UF₆

A densidade do hexafluoreto de urânio é um parâmetro importante a ser considerado quando do cálculo dos trocadores de calor para a recolha desse composto

como um sólido, e pode ser representada pelo valor apresentado no Relatório Procon (1985):

$$\rho_s = 5,16 \ 10^{3} \ \text{kg/m}^{3} \ (3.2.2-1)$$

ou um valor de 5,35 10^{-3} kg/cm³ para temperatura de - 50° C, ou valor de 4,85 g/cm³ para a temperatura de 63°C e o valor de 5,05 g/cm³ para a temperatura de 25 °C, valores estes dados por Katz e Rabinowitch (1951).

Pesquisadores se dedicaram à determinação da densidade do hexafluoreto de urânio sólido verificando que, entre temperaturas de 20 °C e 62.5 °C variava linearmente com a temperatura. Os valores da densidade apresentam-se no Apêndice A.1-2.

Hoard e Stroupe (1944) consideram para densidade do hexafluoreto de urânio sólido à temperatura de 24 °C o valor 4,95 g/cm³, com esses mesmos autores apresentando o valor de 5,06 \pm 0,005 g/cm³ para uma temperatura de 25 °C. Relatórios Procon (1985) mostram um valor para a densidade do UF₆ de 5,09 \pm 0,06 g/cm³. Wechsler e Hoge (1943) determinaram para densidade do UF₆ sólido o valor de 4,93 g/cm³, válido para uma temperatura de 62,5 °C, enquanto que Wechsler e Hoge (1949) considerando a densidade medida do hexafluoreto de urânio líquido e a relação entre os volumes desse composto, como líquido e como sólido determinaram o valor para sua densidade no estado sólido como sendo 4,87 g/cm³, à temperatura de 62,5 °C.

Para o hexafluoreto de urânio gás, Amphlett e outros (1948), considerando as condições de baixa pressão e temperatura de 49,2 °C, e levando em conta o comportamento de gás ideal determinaram:

$$\rho_v = MP/RT = 4.291 \text{ p/T g/cm}^3 (3.2.2-3)$$

onde tem p em atmosferas e a temperatura em ^oK

Magnuson (1955) obteve apresentou a seguinte equação para a densidade do vapor entre temperaturas de 50 $^{\circ}$ C a 140 $^{\circ}$ C :

$$\rho_v = 4,291 \text{ P/T} (1+1,2328 \ 10^6 \text{ p/T})^3 \text{ g/cm}^3 (3.2.2-4)$$

A densidade pode ser calculada pela equação apresentada por Spackman e outros (1978):

$$\rho_v = 0.0423 \text{ p/T} \text{ kg/cm}^3$$
 (3.2.2-5)

com T(0 K) e p(ton.), equação válida para um intervalo de temperaturas entre 0 0 C e 150 0 C. Esta equação está representada no gráfico do Apêndice A.1-3. Nos Apêndices A-1.4 e A-1.5 podemos ver os valores da densidade o hexafluoreto de urânio gasoso para as condições explicitadas em cada uma dessas figuras.

3.2.3 - Viscosidade do UF₆

Dentre os diversos trabalhos sobre a determinação da viscosidade do hexafluoreto de urânio, tem-se o de Fowler e outros (1942) que a determinaram para vapor, e para pressões superiores a 760 mmHg. Pesquisadores tais como Llewellyn (1953) e Roberts (1944) chegaram a valores da densidade para pressões menores que 50 mmHg. As equações seguintes representam a viscosidade do hexafluoreto de urânio dadas por Cohen (1953), levando em conta os trabalhos de:

LLewellyn para temperaturas entre 0 °C e 200 °C:

$$\mu = 2,10 \ 10^{-6} \ \mathrm{T}^{0,729} \ (3.2.3-1)$$

Fowler, válida para temperaturas compreendidas entre 150 °C e 260 °C padrão ar:

$$\mu = 2,46 \ 10^{-6} \ \mathrm{T}^{0,772} \ (3.2.3-3)$$

e para padrão o nitrogênio a equação seguinte:

$$\mu = 1,78 \ 10^{-6} \ T^{0,827}$$
 (3.2.3-2)

McMillan (1954) tomando a pesquisa de Myerson e Eicher (1952) válida para condições de fluxo laminar e para temperaturas entre 40 °C e 200 °C, chegaram a expressão:

$$\mu = 0.6163 \text{ T}^{0.933} \text{ micropoise} (3.2.3-3)$$

Myerson e Eicher ((1952) apresentam a equação:

$$\mu = =0.865 \text{ T}^{0.928} \text{ micropoise } (3.2.3-4)$$

onde no Apêndice A.1-6 apresentamos os valores da viscosidade do hexafluoreto de urânio gasoso, obtidos pela equação anterior. No Apêndice A-1.7 podemos ver os valores para a viscosidade do UF_6 segundo os diversos autores citados na figura.

3.2.4 - Condutividade térmica do UF₆

Dos Relatório Procon (1985) pode-se considerar para casos práticos de transferência de calor um valor para a condutividade térmica do hexafluoreto de urânio sólido valores entre 0.36 e 0.68 kcal/h.m ^oC, podendo-se considerar nos cálculos de troca térmica o valor 0,57 kcal/h.m.^oC. No trabalho de Dunthorn (1968)encontra-se o valor 4.10 ⁻⁴ cal/s.cm ^oC. Em seu trabalho, Cresswell (1976)apresenta o seguinte valor para a condutividade térmica do hexafluoreto de urânio

$$k_s = 7 \ 10^{-3} \ cal/s \ cm^{9}C \ (3.2.4-2)$$

ou o valor de 10⁻³ cal/cm.s.⁰C, dado por Smiley (1959).

Valores da condutividade térmica do hexafluoreto de urânio gasoso foram calculados entre 0 °C e 125 °C e a equação representativa é dada por Agron e Taylor (1945) apresentando um erro de mais ou menos 8%:

$$k_v = 1,46 (1 + 0,0042 \text{ T}^{\circ}\text{C}) 10^{-5} \text{ cal/cm seg}^{\circ}\text{C} (3.2.4-3)$$

podendo ainda se calcular a condutividade térmica pela equação apresentada por Chamberlein (1975):

$$k_v = 6,11 (1 + 0,0042 \text{ T}) \text{ W/m}^{0} \text{K}$$
 (3.2.4-4)

sendo esta equação válida para temperaturas compreendidas entre 0 e 150 °C.

No Apêndice A.1-8 tem-se a representação gráfica da condutividade térmica, com os valores obtidos pela equação 3.2.4-3 anterior. No Apêndice A-1.9 representam-se os valores da condutividade térmica do hexafluoreto de urânio gasoso segundo os autores explicitados na figura do apêndice.

3.2.5 - Números de Schmidt e de Prandtl.

Considerando o coeficiente de difusão e a viscosidade determinadas para o hexafluoreto de urânio, calcula-se o Número de Schmidt e que é dado pela equação:

$$S_c = \eta/\rho D = 0,775 T^{0,003}$$
 (3.2.5-1)

considerando-o independente da temperatura, dentro de uma grandeza de erro aceitável tem-se o valor apresentado por Spackman e outros (1978):

$$S_c = 0.79 \pm 4.5 \%$$
 (3.2.5-2)

Conhecendo-se a condutividade térmica específica, e viscosidade, calcula-se o Número de Prandtl, para o qual Spackman e outros (1978) apresentam:

$$P_r = C_p / \mu k = 0.95 \pm 9\%$$
 (3.2.5-3)

e que é aceitável dentro de uma certa margem de erro como independente da temperatura.

3.2.6 - Calor específico do UF₆

Gaunt (1953) obteve o valor do calor específico a partir dos espectros vibracionais do composto, enquanto Kirschenbaum (1943) obtiveram a partir da pressão de vapor. A equação apresentada por este autor é:

$$C_p = 32,43 + 7,936 \ 10^{-3} \text{ T} - 32,068 \ 10^4/\text{T}^2 \text{ cal/g.mole}^{\circ}\text{C}.$$
 (3.2.6-1)

Para o calor específico do hexafluoreto de urânio tem-se a equação de Kirschenbaum (1943) corrigida:

$$C_p = 32,33 + 7,912 \ 10^{-3}T - 31,972 \ 10^4/T^2 \ cal/gmole \ ^0C$$
 (3.2.6-2)
ou
 $C_p = 135270 + 33,104T - 1,3377 \ x10^9/T^2 \ J/mole \ ^0C$ (3.2.6-3)

sendo esta equação válida para temperaturas compreendidas entre 0 $^{\circ}$ C e 150 $^{\circ}$ C, e com um erro limite de ±1%. No Apêndice A.1-10, apresentam-se os valores Do calor específico do hexafluoreto de urânio resultantes da equação anterior. No Apêndice A-1.11 apresentam-se valores obtidos por diversos autores.

Para o UF6 sólido, o trabalho de Kirshenbaum (1943) tem-se a seguinte equação válida para temperaturas compreendidas entre 250 a 337 °K:

 $C_{ps} = [20,0827 + 161,158 \times 10^{-3} + 104,792 \times 10^{4}/T^{2}]$ cal/mole ^oC (3.2.6-3)

O trabalho de Glassner (1958) no dá:

$$C_{ps} = 12,34 + 92,23 \ 10^{-3} T \ cal/gmole^{0} C \ (3.2.6-4)$$

ou:

$$C_{ps} = 20,0827 + 161,158 \ 10^{-3}T + 104,792 \ 10^{4}/T^{2} \ cal/mole \ ^{\theta}C \ (3.2.6-5)$$

No Apêndice A-1.12 mostram-se os valores do calor específico para o hexafluoreto de urânio sólido segundo o trabalho de Brickwedde e outros (1948)

3.2.7 - Entalpias de mudança de estado

Simon (1943) e Llewellin (1943) apresentam as seguintes expressões para representar o calor de vaporização do hexafluoreto de urânio:

 $\Delta H_v = 8.890 - 0.0225 T^2 + 1.85 T cal/gmole {}^{0}C$ (3.2.7-1)

 $\Delta H_v = 6.920 - 5,3(T - 65) - 0,184 (T - 65)^2 \text{ cal/gmole }^{\circ}C (3.2.7-2)$

enquanto Kirchenbaum (1943) apresenta a seguinte relação para a vaporização do UF_6 :

$$\Delta H_{v} = 2.473 + 14,476 \text{ T} - 0,028646 \text{ T}^{2} + 997,670 \text{ T}^{-1} \text{ cal/mole} \, {}^{0}\text{C} \quad (3.2.7-3)$$

Dentre os diversos trabalhos que apresentam o valor do calor de fusão para o hexafluoreto de urânio, citamos o trabalho de Brickwedde e outros (1948), que apresentaram o valor dado pela equação seguinte:

 $\Delta H_{f} = 19.193 \text{ J/mole.}$ (3.2.7-4)

ou:

$$\Delta H_{\rm f} = 4588 \text{ cal/mole} (3.2.7-5)$$

Oliver e outros (1953) obtiveram:

$$\Delta H_{f} = \Delta H_{s} - \Delta H_{v}$$
 (3.2.7-6)

podendo-se utilizar:

 $\Delta H_{f} = 4,56 \text{ kcal/mole} (3.2.7-7)$

Weinstock e outros (1959) chegaram ao valor:

 $\Delta H_{f} = 4,555 \text{ kcal/mole} (3.2.7-8)$

Pesquisadores britânicos, mais recentemente, consideraram o valor do calor de fusão do hexafluoreto de urânio como sendo:

 $\Delta H_{f} = 4.5 \pm 0.5 \text{ kcal/mole} (3.2.7-9)$

sendo válida para uma temperatura de 64.5 °C.

3.2.8 - Pressão de vapor do UF₆

Autores tais como Oliver e outros (1953) apresentaram equação para a pressão de vapor do hexafluoreto de urânio sólido:

$$\log_{10} P = 6.383,53 + 0,007537 T {}^{\circ}C - (942,76)/(T {}^{\circ}C + 183,416)$$
 (3.2.8-1)

apresentando essa equação desvio de $\pm 0.05\%$ sendo recomendada para uma temperatura entre 0 °C e 64°C. Weinstock e outros (1959) determinaram que a pressão de vapor do UF₆ sólido como sendo 17,70 mm. Também os trabalhos de Awbery (1943), e Llewellyn (1953) determinaram os valores da pressão de vapor para o hexafluoreto de urânio sólido. Para a pressão de vapor do hexafluoreto de urânio desenvolveram-se uma série de trabalhos cujas equações listamos a seguir:

Para um intervalo de temperaturas compreendido entre 64 °C e 116 °C, Oliver e outros (1953) apresentaram a seguinte equação:

$$\log_{10} P = 6.994,64 - (1.126,288)/(T^{\circ}C + 221,963)$$
 (3.2.8-2)

válida para temperaturas maiores que 0 $^{\circ}$ C com a pressão dadas em mmHg, apresentando um desvio de ±0.035. No Apêndice A.1-13 apresenta a pressão do vapor do hexafluoreto de urânio para uma gama de temperaturas compreendidas entre 0 $^{\circ}$ C e 150 $^{\circ}$ C, enquanto que o Apêndice A.1-14 apresenta valores para temperaturas entre 0 $^{\circ}$ C e 67 $^{\circ}$ C.

Awbery (1943) e Llewellyn (1953) determinaram valores para a pressão de vapor do hexafluoreto de urânio para valores negativos de temperatura, alguns dos quais se encontram tabelados no Apêndice A.1-15. Amphlett e outros (1948) medindo a pressão de vapor do hexafluoreto de urânio de 12 a 50°C, consideraram a seguinte expressão para o sólido:

$$\log P = 10,74 - 2592/T \quad (3.2.8-4)$$

enquanto que Weinstock e Crist (1948) obtinham para a pressão de vapor do UF_6 sólido a expressão:

Log P = -3,77962 logT - (3023,479/T) = 21,87103 (3.2.8-5) para um intervalo de temperaturas entre 0 e 64^oC

Masi (1949)considera para a pressão de vapor do sólido a expressão:

$$Log P = -(2858,2/T) + 16,3619 - 1,9116 logT (3.2.8-6)$$

enquanto Llewellyn (1953) recorria a equação:

$$Log P = -2551/T - 75,0 E^{-2560/T} - 1,01 \log T + 13,797 \quad (3.2.8-7)$$

para temperaturas na gama de 0 a -15 °C.

Dentre outros autores que pesquisaram a pressão de vapor do hexafluoreto de urânio, sólido ou líquido citam-se os trabalhos de Kirshenbaum (1943), Katz e Rabinowitch (1951). A equação de Kirshenbaum mostra-se a seguir:

 $Log P = -57,7043 - 149610/T^2 + 307,18/T + 26,436 log T - 0,016796 T (3.2.8-8)$

3.2.9 - Calor de sublimação

No Apêndice A-1.16 apresentam-se os valores do calor de sublimação para diferentes trabalhos. Kirshenbaum (1943) expressaram o calor de sublimação pela equação:

$$\Delta H_{s} = (1405 + 52,512T - 0,076822 T^{2} + 1368,000 T^{-1}) \text{ cal/mole }^{0}C (3.2.9-1)$$

Os valores do calor de sublimação variando com a temperatura encontram-se no Apêndice A.1-17. A expressão que representa a variação do calor de sublimação com a temperatura é dada a seguir, e publicado por Katz e Rabinovitch (1951). Na literatura aparecem muitos trabalhos de pesquisa sobre a determinação do calor de sublimação e dentre eles podemos citar os trabalhos de Oliver e outros (1953), Weinstock e Crist (1948), Awsbery (1953), Llewellin (1953).

 $\Delta H_{s} = (12.600 - 875.600 e^{-2560/T} - 2T) (3.2.9-2)$

A temperatura de sublimação é dada na Tabela 3.2.9-1 mostrando os valores de diferentes pesquisadores.

Tabela 3.2.9-1 - Temperatura de sublimação do UF₆ a uma atmosfera

Temperatura (°C)	Referência
56,54	Oliver e outros (1953)
56,50	Weinstock e Crist (1948)
56,70	Amphlett e outros (1948)
56,76	Awsbery (1943)

No que diz respeito ao ponto triplo, a tabela 3.2.9-2 mostra os valores de pressão e temperatura:

Temperatura (°C)	Pressão (mm HG)	Referência
64,02 ± 0,05	1137,47	Oliver e outros (1953)
64,052	1142	Brickwedde e outros (1948)
65,0±0,25	1161	Llewellyn (1953)
64,45	1148,0	Awbery (1943)
64 , 8±0,4		Dewitt (1960)
	1133 ± 7	Weinstock e Crist (1948)

Tabela 3.2.9.-2 - Valores da temperatura e pressão para o ponto triplo

3.3 - Propriedades do flúor

A seguir faz-se uma breve revisão bibliográfica das propriedades do flúor.

3.3-1 - Densidade do vapor saturado

A empresa Matheson Gas Products adota como 0,00564 g/cm 3 o valor da densidade para o flúor gás. A International Critical Tables (1928) apresenta o valor para a densidade do flúor igual a 1,31 sp.gr. relativa ao ar para temperatura de 60 0 F.

3.3.2 - Viscosidade do vapor de flúor

Aoyama e Kanda (1937) determinaram os valores da viscosidade do flúor (lb/ft.seg), e estão apresentados no gráfico do Apêndice A .1-18.

Pelo catálogo da empresa Matheson Gas Products (1981) obtêm-se o valor de 0,0218 centipoise para condições de 0 °C e 1 atmosfera de pressão. No Apêndice A-1-19

tem-se a viscosidade do flúor, gráfico apresentado por Yaws (1977). Svehla (1962) também apresenta em seu trabalho valores para as propriedades do flúor.

3.3.3 - Condutividade térmica do flúor

Pela tabela de constantes físicas da empresa Matheson Gas Products (1981) obtêm-se o valor para a condutividade térmica do flúor: 0,0592 cal/(seg.cm²)(^oC/cm). Yaws (1977) apresenta os valores da condutividade térmica do flúor, e que mostramos no Apêndice A-1.20

3.3.4 - Calor específico do flúor

No Apêndice A .1-21, pode ver-se os valores do calor específico do flúor determinados por Butkov e Rozenbaum (1950), considerando-o como gás ideal, para uma gama de temperatura entre 298.1 ^oK a 5000 ^oK. Murphy e Vance (1939) determinaram dentre as diversas propriedades do flúor, valores para a capacidade calorífica e que se encontram no Apêndice A-1-22, ou os valores dados pela equação:

Murphy e Vance (1939):

$$C_p = 7,295 + 2,2034 \ 10^{-3} \text{ T} - 7,566 \ 10^{-7} \ \text{T}^2 \ \text{cal/mole} \ ^0\text{C} \quad (3.3.4-1)$$

A equação anterior apresenta-se particularmente adequada para temperaturas abaixo de 1000 °K. Cole (1952) desenvolveu a equação para o flúor molecular:

 $C_p = 7,986085 + 9,60946 \ 10^{-4} \ T - 15,8418 \ 10^{-8} \ T^2 \ cal/mole \ ^0C \ (3.3.4-2)$

Yaws (1977) apresenta a capacidade calorifica do flúor em função da temperatura, como se mostra no Apêndice A-1.24

3.4 - Propriedades do nitrogênio

A seguir se apresentam as propriedades do nitrogênio.

3.4.1 - Densidade

Com os valores tabelados em Silva (1972), traça-se o gráfico que se apresenta no Apêndice A-1.25, para os valores da massa específica do nitrogênio gasoso, determinada sob condições de pressão absoluta de 1 kg/cm².

3.4.2 - Viscosidade do nitrogênio

A viscosidade dinâmica do nitrogênio pode ser calculada pela equação desenvolvida por Yaws(1977) página 210:

$$\eta = A + BT + CT^2 \quad (3.4.2.1)$$

O gráfico do Apêndice A-1.25 mostra os valores da viscosidade do nitrogênio gasoso tirados do trabalho de Silva (1972), e o gráfico apresentado do Yaws (1977) no Apêndice A-1.26.

3.4.3 - Condutividade térmica

Os valores da condutividade térmica para o nitrogênio gasoso, foram medidos experimentalmente para baixas pressões por Franck e Wicke (1951), enquanto que os trabalhos de Reid e Sherwood (1966) e Thodos e Schafer (1959) apresentam valores para uma maior gama de temperaturas. Comparados os valores com os de Svehka (1962) verifica-se existir um desvio que oscila de 2 a 13 %, e quando comparados com os trabalhos de Touloukian e outros (1970) e de Ho e outros (1972) o desvio é de cerca de 8%. Na figura do Apêndice A-1-27 vê-se os valores da condutividade térmica do nitrogênio gasoso, que é dado pelo gráfico apresentado por Yaws (1977).

No Apêndice A-1.28, apresentam-se os valores da condutividade térmica do nitrogênio gasoso, Silva (1972).

3.3.4 - Capacidade calorífica

A figura do Apêndice A.1-29 mostra os valores da capacidade calorífica do nitrogênio gasoso frente a temperatura, enquanto o gráfico do Apêndice A-1.30 apresenta a curva dos valores da capacidade calorífica do nitrogênio gasoso frente a temperatura, cujos dados obtiveram-se do trabalho de Silva (1972)

Ao se analisar a literatura pertinente as propriedades físicas e de transporte dos compostos envolvidos no processo, verifica-se que em sua grande maioria as publicações datam da época em que se deu o desenvolvimento da tecnologia do ciclo do combustível nuclear.

CAPÍTULO IV

EQUIPAMENTO: DESENVOLVIMENTO, PROJETO E TESTES

4.1 - Introdução

Conforme já foi definido, o presente estudo tem como principal objetivo a obtenção de um trocador de calor que obedece a um projeto especial, no interior do qual o hexafluoreto de urânio é manuseado em três estados da matéria: sólido, durante sua captura no processo, líquido e gás durante o processo de descarga, fazendo-se necessário para tal o estudo em diferentes escalas de produção, já que os riscos envolvidos nessa etapa do desenvolvimento tecnológico eram elevados.

Para se situar melhor a questão convém recordar que o presente trabalho é parte integrante de uma etapa do processo de produção do hexafluoreto de urânio que, por sua vez constitui uma das etapas do Ciclo do Combustível Nuclear e que o desenvolvimento tecnológico necessitava um estudo de todos os processo químicos com as diversas operações unitárias desenvolvidas nas três escalas de pesquisa, ou seja a Escala de Bancada, Piloto e Semi-industrial.

De acordo também com o já anunciado na introdução deste trabalho durante essas etapas da pesquisa, realizaram-se os projetos conceitual, básico e detalhado dos dessublimadores de hexafluoreto de urânio, que foram concebidos de modos diferentes e projetados com diferentes geometrias para que se atingissem os objetivos definidos para cada uma dessas fases da pesquisa, tendo como alvo final se alcançar o domínio da tecnologia à escala industrial.

Descreve-se a seguir os procedimentos experimentais, assim como os diferentes trocadores de calor que foram projetados e construídos, e que foram utilizados no processo de dessublimação do hexafluoreto de urânio.

4.2 - Dessublimador de hexafluoreto de urânio

A produção do hexafluoreto de urânio é feita por uma reação heterogênea do tipo gás/sólido entre o flúor gasoso e o tetrafluoreto de urânio sólido, num reator do tipo tubular especialmente projetado para esse processo. O hexafluoreto de urânio é obtido num meio reagente cujas temperaturas podem atingir temperaturas por volta de 1000 °C, com essa temperatura sendo controlada nas paredes do reator a um valor máximo de 500 °C.

Durante a reação, as partículas do tetrafluoreto de urânio diminuem de tamanho à medida que reagem com o flúor, e as mais finas são transportadas pela corrente gasosa que contém também o UF₆. Devido à presença dessas pequenas partículas sólidas de tetrafluoreto de urânio, o hexafluoreto de urânio na forma gasosa é a seguir purificado por filtração, sendo então a seguir encaminhado para a unidade de dessublimação, onde é armazenado temporariamente no próprio dessublimador, sendo também aí separado dos compostos não condensáveis. Estes fluem em direção a um sistema de absorção de gases residuais da unidade de produção de UF₆.

Durante a pesquisa realizada construíram-se diferentes unidades de produção de hexafluoreto de urânio, com diferentes capacidades, e para cada uma delas projetaram-se diferentes tipos de dessublimadores, com os quais se recolheu o hexafluoreto de urânio. Nesses trocadores de calor especiais, que foram projetados para a retenção do UF_6 obtinham-se quantidades diferentes de hexafluoreto de urânio. Os dessublimadores projetados tinham a função de reterem o hexafluoreto por dessublimação, e purificá-lo, separando-o da corrente gasosa que continha flúor, nitrogênio, como compostos contaminantes.

Apesar da descrição apresentada ser resumida, sobre as diferentes unidades da Conversão que foram projetadas e construídas, o objetivo principal do trabalho realizado sempre tratará de modo mais específico do processo de dessublimação do hexafluoreto de urânio e dos trocadores de calor projetados e construídos para tal finalidade.

Na seqüência descreve-se o processo de dessublimação do hexafluoreto de urânio e as diferentes etapas da **concepção**, de **projeto**, de **fabricação**, de **montagem** e de **arranque** das unidades para início de **produção** propriamente dita.

4.3 - Processos envolvidos

Dentre os mais diversificados processos químicos envolvidos na obtenção do hexafluoreto de urânio, um de grande importância é a dessublimação do UF_6 que o separa da corrente gasosa, recolhendo-o no estado sólido no interior de trocadores de calor. Durante a fase de projeto dos trocadores de calor, levou-se em conta o acúmulo do UF_6 no estado sólido, obedecendo-se a alguns critérios:

* **Projeto da Escala de Bancada:** inicialmente a quantidade acumulada de hexafluoreto de urânio nos trocadores de calor deveria ser pequena, já que o principal objetivo era a aquisição de conhecimentos qualitativos, trabalhando-se numa etapa de pesquisa exploratória.

* **Projeto da Escala Piloto**: neste caso a retenção do composto por dessublimação dar-se-ia num determinado tipo de equipamento que cuja geometria fosse já representativa do projeto final, ou seja, representa-se o melhor possível a escala semi-industrial e a industrial.

* **Projeto da Escala Semi-Industrial:** as atenções voltavam-se para minimização dos erros a serem cometidos quando do projeto definitivo do dessublimador na escala industrial.

Em qualquer uma dessas etapas, os dessublimadores foram concebidos de modo a se evitarem entupimentos prévios, com solidificação do produto em locais indesejáveis do equipamento e em quantidades que não levassem a plena capacidade de armazenagem. Esses entupimentos indesejáveis tornariam o equipamento impróprio para uso, já que as quantidades do hexafluoreto a serem acumuladas em seu interior e previstas no projeto, jamais seriam atingidas, e deste modo a capacidade de produção definida para a planta química também não seria obtida. O trocadores de calor apresentariam perfis de temperatura, de concentração e de pressão diferentes em cada uma das escalas, isto porque os equipamentos tiveram diferentes concepções, que na ocasião supunha-se serem as mais adequadas para aquele estágio da pesquisa. Os projetos desenvolvidos deveriam resultar em equipamentos que originassem operações de produção estáveis e que conduzissem a condições mais representativas dos fenômenos envolvidos. Em cada estágio do desenvolvimento, seja o de bancada, piloto ou semi-industrial, tomar-se-iam decisões que levassem a uma concepção mais adequada do trocador para a etapa seguinte.

Os dessublimadores deveriam acumular quantidades do produto previamente determinadas pela capacidade de produção de cada unidade construída. Após o ciclo de armazenamento do hexafluoreto de urânio seria iniciada a operação de descarga desse produto. Um dos parâmetros a ser definido previamente era a capacidade de armazenamento do hexafluoreto de urânio, por cada batelada, e para cada usina de produção. Como os dessublimadores operavam em bateladas, acumulando o UF₆ no estado sólido, no espaço devidamente projetado e deixado para tal finalidade, esse espaço dependia da geometria interna e externa do trocador, e do tipo de dessublimador projetado. Considerava-se importante que esse acúmulo obedecesse a uma distribuição a mais uniforme possível no interior do equipamento, com um crescimento progressivo da espessura da camada sólida, sem que ocorresse entupimento, principalmente nas regiões junto à entrada do equipamento.

Os perfis de temperatura, de pressão e de concentração ao longo do trocador, deveriam se desenvolver de modo que o enchimento do equipamento se desse de maneira progressiva, evitando os bloqueios causados por material solidificado em locais onde tal deposição não deveria ocorrer. As taxas das transferências de energia e de matéria deveriam ser tais que o produto não se acumulasse de modo indesejável no interior do trocador, causando entupimentos, e conseqüentemente deixando-o apenas parcialmente cheio, ou com quantidades de hexafluoreto de urânio tão pequenas que não teriam nem mesmo representatividade para qualquer processo em estudo.

Na corrente de alimentação, à entrada do dessublimador, os gases estavam superaquecidos com o hexafluoreto de urânio numa concentração abaixo da quantidade da saturação. A dessublimação ocorria porque os trocadores de calor eram arrefecidos com fluidos refrigerantes, atingindo-se a saturação. Para cada uma das etapas da pesquisa, utilizaram-se concepções diferentes do sistema de arrefecimento, com temperaturas desde - 180 °C a -10 °C, para as diferentes escalas do projeto. Com o transcorrer do tempo de operação o hexafluoreto de urânio se depositava sobre as paredes do trocador, crescia na forma de uma camada sólida porosa.

No caso da dessublimação o processo de transferência de matéria dá-se à custa do gradiente de concentrações, existente entre o fluxo global e a concentração junto as paredes do trocador. Como a camada do hexafluoreto de urânio sólido vai aumentando sobre as paredes frias do equipamento, e como esse sólido apresenta-se poroso, adquire propriedades de um isolante térmico, com os perfil de temperatura se alterando à medida que o processo de sublimação progride.

Com o desenrolar do processo de dessublimação, e com o fluxo gasoso percorrendo o trocador de calor, a temperatura da mistura gasosa diminui, atingindo-se as condições de saturação, até se chegar às condições de supersaturação. Neste ponto formam-se névoas do composto sublimável ainda na corrente gasosa. Essas névoas são prejudiciais ao rendimento do processo, já que o material que deveria ficar retido no interior do equipamento, depositando-se sobre os tubos, passa a ser arrastado ao longo do trocador, não sendo por ele retido. No caso de formação de névoas, e para não se perder o produto sob a forma de flocos finos e que são transportados pela corrente gasosa, deixando o dessublimador, poderse-ia utilizar algum tipo de equipamento de separação gás/sólido, por exemplo um filtro, colocado à saída do equipamento. Outra maneira de se minimizar a quantidade de produto transportado seria evitar a formação de névoas, atuando sobre as condições do processo. Esse arraste de névoas leva o processo a ter um baixo rendimento de retenção do hexafluoreto de urânio.

A espessura da camada de sólido depositado ao longo das paredes frias do trocador sabe-se ser não uniforme, dependendo sua espessura dos gradientes de temperatura e de concentração ao longo do equipamento.

4.4 - Mecanismo da condensação

O equacionamento da dessublimação é semelhante ao da condensação como se mostra a seguir. Esses processos estão baseados na teoria da película, onde os fenômenos de transferência de energia e matéria estão dependentes de uma série de resistências, que se localizam em camadas hipotéticas ou reais, com essas resistências estimadas individualmente e então somadas.

4.4.1 - Equações representativas do processo

As equações apresentadas são representativas dos processos de condensação e da dessublimação, com a taxa de transferência de matéria num determinado ponto no interior do equipamento dada por:

equação do depósito de sublimado por unidade de área:

$$-V_{i}\frac{dY}{dA} = K(p_{cg} - p_{cw}) \quad (4.4.1.1)$$

ou taxa da transferência de massa para mistura gasosa superaquecida:

$$\left(\frac{\partial m_c}{\partial \theta}\right)_z^0 = M_c K \left(p_{cg} - p_{cw}\right) \quad (4.4.1.2)$$

onde fazendo-se arranjo dos termos da equação 4.4.1-2 obtêm-se:

$$\left(\frac{\partial m_c}{\partial \theta}\right)_z^0 = M_c K p_{cg} \left(1 - \frac{p_{cw}}{p_{cg}}\right) \quad (4.4.1-3)$$

O primeiro termo da equação 4.4.1-3 representa a taxa de transferência de matéria do composto condensável desde a corrente gasosa até à superfície dos tubos, não levando em conta a contribuição da saturação e, m_c é a quantidade de produto que se condensa ou dessublima e que permanece sobre a superfície fria, por unidade de área.

Para se determinar a espessura pontual do depósito sólido sobre à parede fria do trocador, considera-se a equação seguinte que é obtida dividindo-se e multiplicando-se a equação 4.4.1-3 pela densidade do composto condensável ou dessublimável:

$$\left(\frac{\partial m_c}{\partial \theta}\right)_z^0 = \rho_s M_c K \frac{1}{\rho_s} \left(1 - \frac{p_{cw}}{p_{cg}}\right) \quad (4.4.1-4)$$

ou considerando a equação 4.4.1-1 obtêm-se:

$$-V_i \frac{dY}{dA} = \frac{\rho_s}{M_c} \frac{db}{d\theta} \quad (4.4.1-5)$$

$$\left(\frac{\partial b}{\partial \theta}\right)_{z}^{0} = M_{c} K p_{cg} \frac{1}{\rho_{s}} \left(1 - \frac{p_{cw}}{p_{cg}}\right) \quad (4.4.1-6)$$

e considerando

$$\frac{p_{cw}}{p_{cg}} = \beta$$
 (4.4.1-7)

obtêm-se a expressão:

$$\left(\frac{\partial b}{\partial \theta}\right)_{z}^{0} = M_{c} K p_{cg} \frac{1}{\rho_{s}} (1-\beta) \quad (4.4.1-8)$$

sabendo que m_c é a massa do composto condensável ou dessublimável que se deposita por unidade de área de troca térmica, e que dividida pela densidade desse composto, no estado

líquido ou sólido, dá origem à espessura do material depositado. No caso do hexafluoreto de urânio, as equações 4.4.1-5 e 4.4.1-6 representam a variação da espessura da camada sólida depositada com o tempo, para um determinado local no interior do equipamento.

4.4.2 - Analogia entre a transferência de energia e de matéria

Levando em conta a analogia de Chilton e Colburn (1939) tem-se:

$$j_h = \frac{h}{C_m G_g} \Pr^{2/3} = j_m = \frac{K p_{\ln ig}}{G_g} S c^{2/3}$$
 (4.4.2-1)

Pela expressão anterior correlaciona-se o coeficiente de transferência de matéria K com o coeficiente (h) de transferência de calor.

A expressão representativa da pressão parcial média logarítmica dos compostos não sublimáveis para a película é dada por:

$$p_{\ln ig} = \frac{p_{ig} - p_{iw}}{\ln\left(\frac{p_{ig}}{p_{iw}}\right)} \quad (4.4.2-2)$$

podendo-se ainda escrever:

$$P_T = p_{ig} + p_{cg} \quad (4.4.2-3)$$

e junto à parede:

$$P_T = p_{iw} + p_{cw}$$
 (4.4.2-4)

$$p_i = p_T - p_c = p_T - x_c p_T$$
 (4.4.2-5)

Pode-se então escrever:

$$p_{ig} = P_T - p_{cg} \quad (4.4.2-6)$$

$$p_{ig} = P_T - x_{cg}P_T$$
 (4.4.2-7)
 $p_{iw} = P_T - p_{cw}$ (4.4.2-8)

Substituindo na equação 4.4.2-2 os valores de 4.4.2-6 e 4.4.2-8 obtêm-se:

$$p_{\ln ig} = \frac{p_{cw} - p_{cg}}{\ln \frac{P_T - x_{cg} P_T}{P_T - p_{cw}}}$$
(4.4.2-9)

Considerando o valor de (β) dado pela equação 4.4.1-7 e multiplicando e dividindo por p_{eg} a equação 4.4.2-9 obtêm-se:

$$p_{\ln ig} = \frac{p_{cg} \left(\frac{p_{cw}}{p_{cg}} - \frac{p_{cg}}{p_{cg}} \right)}{\ln \frac{P_T - x_{cg} p_T}{P_T - p_{cw}}} \qquad (4.4.2-10)$$

e arranjando os termos do denominador chega-se a equação:

$$p_{\ln ig} = \frac{p_{cg} \left(\frac{p_{cw}}{p_{cg}} - \frac{p_{cg}}{p_{cg}} \right)}{\ln \frac{P_T - (1 - x_{cg})}{P_T \left(\frac{P_T}{P_T} - \frac{p_{cw}}{p_T} \right)}}$$
(4.4.2-11)

podendo escrever-se:

٠

$$p_{\text{ln}ig} = \frac{p_{cg}(\beta - 1)}{\ln \left[\frac{P_{T}(1 - x_{cg})}{P_{T}\left(1 - \frac{p_{cw}}{P_{T}}\right)} \right]} \quad (4.4.2-12)$$

A equação anterior pode ser escrita na seguinte forma:

$$p_{\ln ic} = \frac{p_{cg}(1-\beta)}{\ln\left[\frac{\left(1-\frac{p_{cw}}{P_{T}}\right)}{\left(1-x_{cg}\right)}\right]} (4.4.2-13)$$

A finalidade de se recorrer à analogia de Chilton e Cloburn é se correlacionar os dados da transferência de calor e de matéria, já que o valor de K que é o coeficiente de transferência de matéria é de difícil obtenção, originando equações expressas somente em função do coeficiente (h) de transferência de calor.

Considerando a equação que representa a variação da espessura do sólido depositado com o tempo, equação 4.4.1-8, a equação 4.4.2-1, representativa da analogia e a equação anterior 4.4.2-13 que define a pressão logarítmica média parcial, e isolando o valor de K obtêm-se:

$$K = \frac{h \Pr^{2/3} \frac{G_g}{M_m}}{C_m G_g p_{\ln ig} S c^{2/3}} \quad (4.4.2-14)$$

$$K = \frac{h}{M_{m}C_{m}p_{\ln ig}} \left(\frac{\Pr}{Sc}\right)^{2/3} \quad (4.4.2-15)$$

Substituindo o valor de K dado pela equação 4.4.2-15 em 4.4.1-8

$$\left(\frac{\partial b}{\partial \theta}\right)_{z}^{0} = M_{c} \frac{h}{M_{m}C_{m}p_{\ln ig}} \frac{1}{\rho_{s}} p_{cg} \left(1-\beta\right) \left(\frac{\Pr}{Sc}\right)^{2/3} \quad (4.4.2-16)$$

Substituindo o valor de plnig dado pela equação 4.4.2-13

$$\left(\frac{\partial b}{\partial \theta}\right)_{z}^{0} = \frac{M_{c}h}{M_{m}C_{m}} \frac{1}{\rho_{s}} p_{cg} \left(1-\beta\right) \left(\frac{\Pr}{Sc}\right)^{2/3} \frac{\ln\left[\frac{\left(1-\frac{p_{cw}}{P_{T}}\right)}{\left(1-x_{cg}\right)}\right]}{p_{cg} \left(1-\beta\right)} \quad (4.4.2-17)$$

simplificando a equação anterior:

$$\left(\frac{\partial b}{\partial \theta}\right)_{z}^{0} = \frac{M_{c}h}{M_{m}C_{m}} \frac{1}{\rho_{s}} \left(\frac{\Pr}{Sc}\right)^{2/3} \ln\left[\frac{\left(1-\frac{p_{cw}}{P_{T}}\right)}{\left(1-x_{cg}\right)}\right] \quad (4.4.2-18)$$

A equação 4.4.2-18 é representativa da taxa de crescimento da camada sólida por área unitária de troca térmica, na qual não mais figura o coeficiente de transferência de matéria, mas apenas o coeficiente de transferência de calor. A equação é válida quando o fluxo da mistura gasosa está superaquecido, com o coeficiente de transferência de calor não levando em conta a parcela do calor latente relativo a mudança de estado para a condensação ou dessublimação.

4.4.3 - Condições de saturação

As equações anteriores só são válidas para condições em que os gases do processo se encontram no estado superaquecido, não atingindo as condições de saturação. Desse modo elas não são representativas dos fenômenos que realmente ocorrem no equipamento, porque a medida que a mistura gasosa troca calor com as paredes frias do equipamento, logo a seguir a sua entrada no trocador, fluem em seu interior tendendo ao longo do equipamento para a condição de saturação. Considerando a mistura gasosa superaquecida a deposição do sólido dá-se devido a troca térmica junto a superfície. A medida que a mistura gasosa flui ao longo do trocador de calor, também troca calor sensível, arrefecendo e tendendo para a condição de saturação. No caso da mistura atingir a saturação, a dessublimação ocorre na corrente gasosa, e além de se depositar o sólido sobre a superfície, ocorre a formação de sólido no seio da mistura gasosa e o fator α leva em conta a formação das névoas na corrente gasosa. Assim, atingida a condição de saturação, deve-se levar em conta a deposição do composto sublimável, definindo-se a espessura do sólido pela seguinte equação:

$$\left(\frac{\partial b}{\partial \theta}\right)_{z} = \frac{1}{(1-\alpha)} \left(\frac{\partial b}{\partial \theta}\right)_{z}^{0}$$
 (4.4.3-1)

Levando em conta a equação 4.4.2-18 e a equação 4.4.3-1 tem-se:

$$\left(\frac{\partial b}{\partial \theta}\right)_{z} = \frac{M_{c}h}{\rho_{s}M_{m}C_{m}(1-\alpha)} \left(\frac{P_{r}}{S_{c}}\right)^{2/3} \ln\left(\frac{1-\frac{P_{cg}}{P_{T}}}{1-x_{cg}}\right) \quad (4.4.3-2)$$

O fator α é zero para as condições do gás superaquecido e representa a quantidade de matéria que atinge a área de troca térmica e que não é originada pela transferência de matéria sob as condições de saturação. O fator α representa na realidade a quantidade de matéria que muda de estado ainda na corrente gasosa e origina névoas do produto que podem ser transportadas por longas distâncias no interior do trocador.

4.4.4 - Perfis de concentração e de temperatura

Ao se fazer o balanço diferencial de matéria, considerando-se uma seção transversal do dessublimador, e levando em conta a concentração global média dos gases, a velocidade de crescimento dos sólidos sobre as paredes frias pode ser representada por:

$$\frac{1}{v_g} \left(\frac{\partial x_{cg}}{\partial \theta} \right)_z + \left(\frac{\partial x_{cg}}{\partial z} \right)_{\theta} + \frac{\left(1 - x_{cg} \right)^2}{V_i} \frac{\rho_s P_e}{M_c} \left(\frac{\partial b}{\partial \theta} \right)_z = 0 \quad (4.4.4-1)$$

onde P_e é o perímetro do canal por onde flui a mistura gasosa.

Considerando a equação 4.4.4-1 que multiplicada por dz origina:

$$\left(\frac{\partial x_{cg}}{\partial \theta}\right)_{z}\frac{dz}{v_{g}} + \left(\frac{\partial x_{cg}}{\partial z}\right)_{\theta}dz + \frac{\left(1 - x_{cg}\right)^{2}}{V_{i}}\frac{\rho_{s}P_{e}}{M_{c}}\left(\frac{\partial b}{\partial \theta}\right)_{z}dz = 0 \quad (4.4.4-2)$$

sendo a velocidade definida por $v_g = \frac{dz}{d\theta}$ pode-se escrever a equação 4.4.4-2 da forma:

$$\left(\frac{\partial x_{cg}}{\partial \theta}\right)_{z} d\theta + \left(\frac{\partial x_{cg}}{\partial z}\right)_{\theta} dz + \frac{\left(1 - x_{cg}\right)^{2}}{V_{i}} \frac{\rho_{s} P_{e}}{M_{c}} \left(\frac{\partial b}{\partial \theta}\right)_{z} dz = 0 \quad (4.4.4-3)$$

Considerando o fluxo de matéria por unidade de área representado por:

 $\left(\frac{\partial n_c}{\partial \theta}\right)_z$ = fluxo de matéria pontual e dependendo da distancia z ao longo do equipamento sendo a vazão mássica representada por:

sendo a vazão mássica representada por:

$$\left(\frac{\partial n_c}{\partial \theta}\right)_z dA = m_c \quad (4.4.4-4)$$

Dividindo a equação anterior 4.4.4-4 pelo mol do composto condensável ou dessublimável, obtêm-se a vazão molar:

$$\mathbf{\dot{n}}_{c} = \left(\frac{\partial m_{c}}{\partial \theta}\right)_{z} \frac{1}{M_{c}} dA \quad (4.4.4-5)$$

Como a densidade do sólido é dada por:

$$\rho_s = \frac{m_s}{V_s} \quad (4.4.4-6)$$

e considerando a equação

.

$$\frac{\left(\frac{\partial m_c}{\partial \theta}\right)_z}{\rho_s} = \left(\frac{\partial b}{\partial \theta}\right)_z \quad (4.4.4-7)$$

$$\left(\frac{\partial m_c}{\partial \theta}\right)_z = \rho_s \left(\frac{\partial b}{\partial \theta}\right)_z \quad (4.4.4-8)$$

Substituindo a equação 4.4.4-8 em 4.4.4-5 obtêm-se expressão da vazão molar relacionada com a variação da camada sólida depositada sobre a área de troca térmica:

$$\dot{n}_{c} = \rho_{s} \left(\frac{\partial b}{\partial \theta}\right)_{z} \frac{1}{M_{c}} dA \quad (4.4.4-9)$$

Considerando que a dessublimação ocorre na periferia do tubo e o perímetro é dado por

 $P_e = \pi D$ (4.4.4-10)

$$dA = P_e dz \quad (4.4.4-11)$$

$$\dot{n}_{c} = \rho_{s} \left(\frac{\partial b}{\partial \theta}\right)_{z} \frac{1}{M_{c}} P_{e} dz \quad (4.4.4-12)$$

Pela equação da continuidade tem-se:

$$n_c = n_{cf} - n_{ce}$$
 (4.4.4-13)

com n_{ce} n_{cf} durante o processo de dessublimação, já que parte do material fica retido dentro do volume de controle.

Considerando a definição de fração molar, escreve-se

$$x_{cf} = \frac{\dot{n}_{cf}}{\dot{n}_{cf} + V_i} \quad (4.4.4-14)$$

$$x_{ce} = \frac{n_{ce}}{n_{ce} + V_i} \quad (4.4.4-15)$$

que representam respectivamente a fração molar do composto sublimável à saída e à entrada do volume de controle. Para variação elementar da fração molar tem-se:

$$dx_{cg} = \frac{n_{cf}}{n_{cf} + V_i} - \frac{n_{ce}}{n_{ce} + V_i} \quad (4.4.4-16)$$

Desenvolvendo:

•

$$dx_{cg} = \frac{n_{cf} n_{ce} + V_i n_{cf} - n_{ce} n_{cf} - n_{ce} V_i}{\binom{i}{n_{cf} + V_i} \binom{i}{n_{ce} + V_i}} \quad (4.4.4-17)$$

$$dx_{cg} = \frac{V_i \begin{pmatrix} \cdot & \cdot \\ n_{cf} - n_{ce} \end{pmatrix}}{\begin{pmatrix} \cdot \\ n_{cf} + V_i \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cdot \\ n_{ce} + V_i \end{pmatrix}} \quad (4.4.4-18)$$

$$dx_{cg} = \frac{V_i \begin{pmatrix} \bullet \\ n_{cg} \end{pmatrix}}{\begin{pmatrix} \bullet \\ n_{cf} + V_i \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \bullet \\ n_{ce} + V_i \end{pmatrix}} \quad (4.4.4-19)$$

Considerando que

٠

$$x_{ij} + x_{cf} = 1 \quad (4.4.4-20)$$

$$x_{ie} + x_{ce} = 1 \quad (4.4.4-21)$$

$$V_i = V_{if} = V_{ie} \quad (4.4.4-22)$$

$$x_{if} = \frac{V_i}{V_i + n_{cf}} \quad (4.4.4-23)$$

$$x_{ie} = \frac{V_i}{V_i + n_{ce}} \quad (4.4.4-24)$$

$$x_{if} = 1 - x_{cf} \quad (4.4.4-25)$$

$$x_{ie} = 1 - x_{ce} \quad (4.4.4-26)$$

e levando em conta a equação 4.4.4-19 que multiplicada e dividida por V_i resulta em :

$$dx_{cg} = \frac{V_i}{V_i} \frac{V_i \begin{pmatrix} \bullet \\ n_c \end{pmatrix}}{\begin{pmatrix} \bullet \\ n_{cf} + V_i \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \bullet \\ n_{ce} + V_i \end{pmatrix}} \quad (4.4.4-27)$$

Rescrevendo:

•

$$dx_{cg} = \frac{V_i}{\binom{\bullet}{n_{cf} + V_i}} \frac{V_i}{\binom{\bullet}{n_{ce} + V_i}} \frac{\binom{\bullet}{n_c}}{V_i} \quad (4.4.4-28)$$

e levando em conta as equações 4.4.4-23, 4.4.4-24, 4.4.4-25 e 4.4.4-26 obtêm-se:

$$dx_{cg} = (1 - x_{cf})(1 - x_{ce})\left(\frac{n_c}{V_i}\right) \quad (4.4.4-29)$$

Para variação elementar pode-se considerar que $x_{ce} \cong x_{cf} \cong x_c$ e assim obtêm-se:

$$dx_{cg} = \left(1 - x_{cg}\right)^2 \left(\frac{n_c}{V_i}\right)$$
 (4.4.4-30)

Considerando que a concentração do composto sublimável sofre alteração ao longo do equipamento com o tempo de operação tem-se:

$$dx_{cg} = \left(\frac{\partial x_{cg}}{\partial \theta}\right)_{z} d\theta + \left(\frac{\partial x_{cg}}{\partial z}\right)_{\theta} dz \quad (4.4.4-31)$$

Substituindo o valor dador por 4.4.4-30 obtêm-se:

$$\left(\frac{\partial x_{cg}}{\partial \theta}\right)_{z} d\theta + \left(\frac{\partial x_{cg}}{\partial z}\right)_{\theta} dz = \left(1 - x_{cg}\right)^{2} \left(\frac{\mathbf{n}_{c}}{V_{i}}\right) \quad (4.4.4-32)$$

Substituindo o valor de n_c dado pela equação (4.4.4-12) na equação anterior (4.4.4-32), obtêm-se

$$\left(\frac{\partial x_{cg}}{\partial \theta}\right)_{z} d\theta + \left(\frac{\partial x_{cg}}{\partial z}\right)_{\theta} dz = \frac{\left(1 - x_{cg}\right)^{2}}{V_{i}} \left[-\rho_{s}\left(\frac{\partial b}{\partial \theta}\right)_{z}\frac{1}{M_{c}}P_{e}dz\right] \quad (4.4.4-33)$$

$$\left(\frac{\partial x_{cg}}{\partial \theta}\right)_{z} d\theta + \left(\frac{\partial x_{cg}}{\partial z}\right)_{\theta} dz + \frac{\left(1 - x_{cg}\right)^{2}}{V_{i}}\rho_{s}\left(\frac{\partial b}{\partial \theta}\right)_{z}\frac{1}{M_{c}}P_{e}dz = 0 \quad (4.4.4-34)$$

Dividindo a equação anterior por dz tem-se:

•

$$\left(\frac{\partial x_{cg}}{\partial \theta}\right)_{z}\frac{d\theta}{dz} + \left(\frac{\partial x_{cg}}{\partial z}\right)_{\theta}\frac{dz}{dz} + \frac{\left(1 - x_{cg}\right)^{2}}{V_{i}}\rho_{s}\left(\frac{\partial b}{\partial \theta}\right)_{z}\frac{1}{M_{c}}P_{e} = 0 \quad (4.4.4-35)$$

Considerando que a velocidade dos gases pode ser definida por $\frac{dz}{d\theta}$

$$\frac{d\theta}{dz} = \frac{1}{v_g} \quad (4.4.4-36)$$

e supondo que a variação da concentração do composto dessublimável ou condensável dáse numa proporção muito maior ao longo da distância do que com o passar do tempo num determinado local, tem-se:

$$\left(\frac{\partial x_{cg}}{\partial z}\right)_{\theta} \gg \left(\frac{\partial x_{cg}}{\partial \theta}\right)_{z} \quad (4.4.4-37)$$

e a equação 4.4.4-35 pode ser escrita como se segue:

$$\frac{dx_{cg}}{dz} = -\frac{\left(1 - x_{cg}\right)^2}{V_i} \rho_s \left(\frac{\partial b}{\partial \theta}\right)_z \frac{1}{M_c} P_e \quad (4.4.4-38)$$
Sendo a variação da espessura do sólido com o tempo para um determinado local expressa pela equação anterior 4.4.3-2, que substituída na equação (4.4.4-38) obtêm-se:

$$\frac{dx_{cg}}{dz} = -\frac{\left(1 - x_{cg}\right)^2}{V_i} \frac{P_e}{M_m C_m} \frac{h}{(1 - \alpha)} \left(\frac{\Pr}{Sc}\right)^{2/3} \ln\left[\frac{\left(1 - \frac{P_{cw}}{P_T}\right)}{\left(1 - x_{cg}\right)}\right] \quad (4.4.4-39)$$

que representa a variação da concentração do composto condensável ou dessublimável ao longo da distância percorrida pelo fluxo gasoso, e dependendo apenas do coeficiente de transferência de calor, não sendo dependente do coeficiente de transferência de massa.

Para a equação representativa da troca de calor, considera-se a parcela que leva em conta a convecção, a perda de calor sensível do gás mais a parcela relativa ao calor de dessublimação do composto gasoso se transformando em sólido e em névoas ainda na corrente gasosa obtendo-se a equação seguinte levando em conta Y que é a relação da fração molar do composto sublimável pela fração molar dos inertes e sua vazão V_i :

$$h(T_g - T_w) = L\alpha\lambda - V_i M_m C_m \frac{dT_g}{dA} - V_i Y M_m C_m \frac{dT_g}{dA} \quad (4.4.4-40)$$

Esta equação pode ser escrita sob a forma seguinte:

$$h(T_{g} - T_{w})\frac{a}{(1 - e^{-a})} = \lambda \alpha \frac{ha}{(1 - \alpha)M_{c}C_{c}} - \frac{V_{i}}{P_{e}(1 - x_{cg})}M_{m}C_{m}\frac{dT_{g}}{dz} + h(T_{g} - T_{w})\frac{M_{c}C_{c}}{M_{m}C_{m}}\left(\frac{P_{r}}{S_{c}}\right)^{2/3}\ln\left[\frac{\left(1 - \frac{P_{cw}}{P_{T}}\right)}{\left(1 - x_{cg}\right)}\right]$$
(4.4.4-41)

com o fator $a/(1-e^{-a})$ representando a parcela da transferência de calor devido ao fluxo de massa, fator este que foi definido por Colburn e Edison (1941). Para o caso da concentração global do composto sublimável ser pequena, isto é, para x_{cg} ser baixa, a contribuição para a troca térmica dada pela parcela correspondente a transferência de massa, é pequena, o que implica dizer que o valor de (a) é pequeno.

Na equação anterior, a é definido por

$$a = \frac{M_c C_c}{M_m C_m} \left(\frac{P_r}{S_c}\right)^{2/3} \ln \left[\frac{\left(1 - \frac{P_{cw}}{P_T}\right)}{\left(1 - x_{cg}\right)}\right] \quad (4.4.4-42)$$

e o valor de L é dado por:

$$L = \frac{ha}{M_c C_c (1 - \alpha)} \quad (4.4.4-43)$$

representando a taxa de transferência de calor devido à mudança de estado, por unidade de área. Se a concentração do composto condensável ou dessublimável não é alta, a parcela do calor transferido devido à transferência de matéria considera-se pequena.

A equação 4.4.4-41 pode ser escrita da seguinte forma, levando em conta as equações (4.4.4-42) e (4.4.4-43):

$$\frac{a}{(1-e^{-a})}h(T_g - T_w) = \alpha L\lambda - \frac{V_i}{P_e(1-x_{cg})}M_m C_m \frac{dT_g}{dz} + h(T_g - T_w)a \quad (4.4.4-44)$$

$$\frac{a}{(1-e^{-a})}h(T_g - T_w) - \alpha\lambda L - h(T_g - T_w)a = \frac{V_i}{P_e(1-x_{cg})}M_mC_m\frac{dT_g}{dz} \quad (4.4.4-45)$$

Isolando o valor de dT_g/dz obtêm-se:

$$-\frac{dT_g}{dz} = \frac{P_e(1-x_{cg})\left\{+\frac{ah}{(1-e^{-a})}(T_g - T_w) - \alpha\lambda L - h(T_g - T_w)a\right\}}{V_i M_m C_m}$$
(4.4.4-46)

Levando em conta o valor de L dado pela equação 4.4.4-40

$$\frac{dT_g}{dz} = \frac{P_e (1 - x_{cg}) ah \left[\frac{-(T_g - T_w) + (1 - e^{-a})(T_g - T_w)}{(1 - e^{-a})} + \frac{\lambda \alpha}{M_c C_c (1 - \alpha)} \right]}{V_i M_m C_m}$$
(4.4.4-47)

obtendo-se

$$\frac{dT_g}{dz} = \frac{P_e\left(1 - x_{cg}\right)ah\left[\frac{\alpha\lambda}{M_cC_c\left(1 - \alpha\right)} + \frac{\left(T_g - T_w\right)}{e^a\left(1 - e^{-a}\right)}\right]}{V_iM_mC_m} \quad (4.4.4-48)$$

$$\frac{dT_g}{dz} = \frac{P_e \left(1 - x_{cg}\right) ah \left[\frac{\lambda \alpha}{M_c C_c \left(1 - \alpha\right)} + \frac{\left(T_g - T_w\right)}{\left(e^a - 1\right)}\right]}{V_i M_m C_m} \quad (4.4.4-49)$$

que é a equação representativa do perfil de temperatura. Para o caso de gases superaquecidos, o valor de α é zero, e as equações dos perfis de temperatura (4.4.4-49) e de concentração (4.4.4-39) são resolvidas numericamente para o comprimento do trocador. Determinados os perfis, os resultados são usados na equação 4.4.2-18, calculando-se então a taxa de crescimento da camada sólida, e sendo os cálculos repetidos, calculando-se novos perfis até se obter uma variação com o tempo quasi-estacionário.

4.4.5 - Perfil nas condições de saturação

Ao se atingirem as condições de saturação, a deposição do composto sublimável na parede de troca térmica não se dará apenas pelos processos convencionais de transferência



de matéria. Neste caso, haverá formação de material sólido ainda na corrente gasosa, dandose deste modo a formação do sólido tanto no seio do gás como na superfície sólida da área de troca térmica. Assim, leva-se em conta que tanto a concentração como a temperatura do composto sublimável seguem a equação de Clausius-Clapeyron na sua forma diferencial, e que o sólido formado na corrente gasosa se deposita de modo rápido logo a partir da sua formação na mistura gasosa:

$$\frac{dx_c}{dT_g} = \frac{x_c \lambda}{RT_g^2} \quad (4.4.5-1)$$

De modo semelhante ao já citado anteriormente Thompson (1949) definiu para a fração de névoas formadas no seio da corrente gasosa o fator α definido pela expressão:

$$\alpha = 1 - \frac{a_1 + a_2}{T_g - T_w + a_1} \quad (4.4.5-2)$$

com

.

$$a_{1} = \frac{\lambda}{C_{m}M_{m}} \left(\frac{C_{m}D_{v}\rho_{g}}{k_{g}}\right)^{2/3} \left(1 - \frac{p_{cw}}{p_{cg}}\right) \ln(1+Y) \quad (4.4.5-3)$$

onde

$$\frac{p_{\ln ig}}{p_g} = \frac{1}{\ln(1+Y)} \quad (4.4.5-4)$$

$$a_{1} = \frac{\lambda}{M_{m}C_{m}} \left(\frac{C_{m}\rho_{g}D_{v}}{k_{g}}\right)^{2/3} \left(1 - \frac{p_{w}}{p_{g}}\right) \frac{p_{\ln ig}}{p_{g}} \quad (4.4.5-5)$$

$$a_{2} = \frac{RT^{2}}{\lambda Y} \left(\frac{C_{m} \rho_{g} D_{v}}{k_{g}} \right)^{2/3} (1 - \beta) \frac{p_{\ln ig}}{p_{g}} \quad (4.4.5-6)$$

sendo D_v um diâmetro característico para cada tipo de geometria usada no trocador.

A medida que a mistura gasosa flui pelo interior do trocador de calor, as condições a que fica submetida dirigem-na para as condições de saturação; mesmo que essa condição seja atingida, deve-se conhecer se continuará ou não sob estado de saturação. Para tal calcula-se a fração de sublimável que forma névoas na corrente gasosa. Se a fração de névoas for positiva, indica que a mistura gasosa permanecerá sob condições de saturação.

A partir das equações (4.4.4-39), (4.4.4-49) e 4.4.5-1, que representam respectivamente os perfis de concentração, de temperatura e a equação da saturação dada pela equação de Clausius - Clapeyron obtêm-se o valor de α e que é dado pela expressão:

$$\alpha = 1 - \frac{\frac{\lambda}{C_m M_m} + \frac{RT_g^2 (1 - x_{cg})}{\lambda x_{cg}}}{\frac{\lambda}{C_m M_m} + \frac{C_c M_c (T_g - T_w)}{C_m M_m (e^a - 1)}}$$
(4.4.5-7)

Atingida a condição de saturação, a equação 4.4.5-7 é utilizada para calcular o valor de α para cada ponto no interior do equipamento, determinando-se então os perfis para a condição de saturação. No caso de ocorrer a dessublimação do composto na corrente gasosa, deve-se determinar o valor de α em cada ponto do equipamento, utilizando a equação anterior de transferência de massa juntamente com a equação de Clausius-Clapeyron, e obtendo assim os perfis de temperatura e de concentração a partir do instante em que o gás adquiriu a condição de saturação. Isto leva a se formar um local no interior do dessublimador onde se inicia a saturação, e é nesse ponto que provavelmente ocorrerá o entupimento do equipamento.

À medida que o sólido começa a se depositar sobre as paredes frias do equipamento, iniciam-se mudanças nos processos de transferência de energia e de matéria. Considerando T_w como sendo a temperatura na interface gás - sólido, seu valor dependerá da espessura da camada de hexafluoreto de urânio sólido depositado. No início do processo de dessublimação considera-se a temperatura da interface gás/sólido igual à temperatura do fluido de arrefecimento. A camada de sólido é delgada, não causando grande variações nas temperaturas no sentido radial. À medida que o sólido se deposita e, devido a sua baixa condutividade térmica, e que depende da sua porosidade, a temperatura da interface gás - sólido varia. O gradiente de temperaturas no sentido radial tende a se modificar de modo que a temperatura na interface se afasta do valor da temperatura do fluido de arrefecimento que flui internamente aos tubos do trocador, e o valor de T_w progride na direção a temperatura apresentada pelo fluxo da mistura gasosa, tornando-se assim importante a parcela relativa à transferência de calor por condução através da camada de sólido depositado.

A obtenção da temperatura T_w pode ser feita aplicando-se a equação de transferência de energia entre a espessura do sólido e a transferência na sua superfície, levando-se em conta o calor latente de mudança de estado na superfície:

$$\frac{k_s}{b} (T_w - T_r) = \frac{ah}{(1 - e^{-a})} (T_g - T_w) + \frac{ah\lambda}{M_c C_c} \quad (4.4.5-8)$$

A temperatura da superfície do sólido T_w terá um limite máximo quando a espessura da camada sólida atingir seu valor máximo. Para resolução do problema, determina-se o perfil da temperatura T_w , pelo processo de tentativa e erro. Considerando que o valor da temperatura na interface sólido/gás deve apresentar um limite máximo, que não deve ser ultrapassado para não ocorrer uma propagação de erro cujos resultados não apresentem significado físico real, determina-se esse limite considerando a equação (4.4.3-2) que representa a variação da espessura da camada de sólido com o tempo, a para um determinado ponto do equipamento sendo igual a zero, ou seja que representa a máxima espessura da camada sólida:

$$\frac{db}{d\theta} = \frac{M_c h}{\rho_s M_m C_m (1-\alpha)} \left(\frac{P_r}{S_c}\right)^{2/3} \ln \left[\frac{\left(1-\frac{p_{cw}}{P_T}\right)}{\left(1-x_{cg}\right)}\right] = 0 \quad (4.4.5-9)$$

Para o valor máximo $\frac{db}{d\theta}$ deve ser zero, e para que a equação anterior seja nula a parcela logarítmica deve ser nula, já que todas as variáveis não pertencentes ao logaritmo não podem ser nulas. Obtêm-se então:

$$\frac{\left(1 - \frac{p_{cw}}{p_T}\right)}{\left(1 - x_{cg}\right)} = 1 \quad (4.4.5-10)$$

ou

$$\frac{1 - \frac{P_{cg}}{P_T}}{1 - x_{cg}} = 1 \quad (4.4.5-11)$$

$$1 - \frac{p_{cw}}{P_T} = 1 - x_{cg} \quad (4.4.5-12)$$

$$\frac{p_{cw}}{p_T} = x_{cg}$$
 (4.4.5-13)

Como p_{cw} é a pressão de vapor do composto condensável na superfície do sólido, T_w terá um valor correspondente à temperatura de saturação; a medida que o processo de dessublimação progride. aumenta a espessura da camada sólida, e a temperatura T_w da superfície do sólido tende a aumentar, atingiria valores superiores ao valor da temperatura de saturação da mistura gasosa. Ocorrendo esse aumento, o sólido inicia o processo de sublimação, passando agora do estado sólido para a corrente gasosa, numa região de saturação no interior do trocador de calor, o que não seria possível. Na região de saturação, com a mistura gasosa sob condições de saturação, a taxa de troca de calor é mantida, devido

a existência de uma pequena diferença de temperatura entre a corrente gasosa T_g e a superfície da camada sólida T_w .

Para as região de saturação não pode ocorrer a sublimação do sólido para o gás, isto porque o gás ainda se encontra sob condições de saturação e deve haver um gradiente de temperatura mesmo que pouco intenso entre a temperatura da mistura gasosa e a temperatura da parede do sólido em contato com o fluxo gasoso, e é esse gradiente que mantém a transferência de calor na direção da dessublimação.

Para a região superaquecida ocorrendo o descrito anteriormente existirá um limite para a espessura da camada sólida formada e um limite para a temperatura da parede do sólido em contato com o fluxo gasoso. Deste modo, podem ocorrer duas hipóteses: uma é a de ocorrer entupimento do trocador e a outra é o caso da camada sólida não obstruir.

Na região em que o gás esteja superaquecido não havendo a diferença anterior de temperatura, atinge-se uma espessura da camada sólida máxima em que se inicia o processo de sublimação, passando o composto sólido para o fluxo gasoso. Neste caso deve haver um limite superior para a espessura da camada sólida, e um limite para um valor máximo de T_w . Considerando a equação 4.4.5-8 pode escrever-se para a condição de se formar a espessura máxima do sólido:

$$\frac{k_s}{b_{max}} (T_{wmax} - T_r) = \frac{ah}{(1 - e^{-a})} (T_g - T_{wmax}) + \frac{ah\lambda}{M_c C_c} \quad (4.4.5-14)$$

com ko fator de correção $a/(1-e^{-a})$ levando em conta a quantidade de calor transferido devido ao processo de transferência de matéria, para o caso de baixas concentrações do condensável.

Pela equação (4.4.2-18) e levando em conta a expressão (4.4.4-42) que define o valor de (a) pode escrever-se:

$$\frac{db}{d\theta} = \frac{ah}{\rho_s(1-\alpha)} \frac{1}{C_c} \quad (4.4.5-15)$$

ou para o caso de gás superaquecido sendo $\alpha = 0$ obtem-se:

$$\frac{db}{d\theta} = \frac{ah}{\rho_s C_c} \quad (4.4.5-16)$$

Para condições de saturação, de modo semelhante que o caso anterior, considerando a equação que representa a variação da espessura da camada sólida com o tempo, equação (4.4.3-2) e o valor de (a) dado pela equação (4.4.4-42), e substituindo o valor de a na equação (4.4.2-18), que multiplicada e dividida por C_c obtêm-se a equação (4.4.5-15).

Isolando o valor de a obtêm-se:

$$a = \frac{C_c \rho_s (1 - \alpha)}{h} \frac{db}{d\theta} \quad (4.4.5-17)$$

A camada sólida crescendo e tendendo para um valor máximo de sua espessura implica que a derivada da equação 4.4.5-15 deve tender para zero, e deste modo o valor de a também tenderá para zero, com o valor do limite dado por:

$$\lim_{a \to 0} \frac{a}{\left(1 - e^{-a}\right)} = 1 \quad (4.4.5 - 18)$$

A equação 4.4.5-14 considerando o valor limite dado pela equação (4.4.5-18) se reduz à expressão:

$$\frac{k_s \left(T_{wmax} - T_r\right)}{b_{max}} = h \left(T_g - T_{wmax}\right) \quad (4.4.5-19)$$

Resolvendo para o valor de T_{wmax} tem-se:

$$k_{s}T_{wmax} - k_{s}T_{r} = hb_{max}T_{g} - hb_{max}T_{wmax}$$
 (4.4.5-20)

isolando o valor de T_{wmax} e colocando em evidência obtêm-se:

$$T_{wmax}\left(k_s + hb_{max}\right) = k_s T_r + hb_{max} T_g \quad (4.4.5-21)$$

Da expressão anterior obtêm-se o valor da temperatura máxima da superfície do sólido:

$$T_{wmax} = \frac{k_s T_r + h b_{max} T_g}{k_s + h b_{max}} \quad (4.4.5-22)$$

Para o valor de b_{max} obtêm-se:

$$T_{wmax}k_s + hb_{max}T_{wmax} = k_sT_r + hb_{max}T_g$$
 (4.4.5-23)

Isolando o valor de b_{max} da equação anterior obtêm-se:

$$b_{max}(hT_{wmax} - hT_g) = k_sT_r - T_{wmax}k_s$$
 (4.4.5-24)

com o valor de b_{max} dado por:

$$b_{max} = \frac{k_s (T_r - T_{wmax})}{h (T_{wmax} - T_g)} = \frac{k_s (T_{wmax} - T_r)}{(T_g - T_{wmax})} \quad (4.4.5-25)$$

com essas equações representando as condições limite dos processos físicos. À medida que a espessura do sólido cresce, a temperatura na interface sólido/gás aumenta, até um valor que o sólido que já se encontrava depositado pode sublimar retornando para o estado

gasoso, incorporando-se novamente ao fluxo global da mistura gasosa. Verificamos que este mecanismo não pode ocorrer quando o fluxo gasoso se encontra sob condições de saturação em que existe uma diferença de temperaturas entre o fluxo global da mistura gasosa e a temperatura na parede, ocorrendo ainda uma transferência de energia devido ao gradiente de temperaturas existente. Para uma espessura máxima do depósito de sólidos a temperatura na interface sólido/gás atingirá um máximo.

Ao analisarmos o comportamento da espessura do depósito em função do tempo, para uma determinada posição no interior do equipamento, e para uma região de superaquecimento, e considerando a equação 4.4.5-9, sendo $\alpha = 0$ tem-se:

$$\int_{0}^{b} \frac{db}{\ln\left(\frac{1 - \frac{P_{cw}}{P_{T}}}{1 - x_{cg}}\right)} = \frac{hM_{c}}{C_{m}M_{m}\rho_{s}} \left(\frac{P_{r}}{S_{c}}\right)^{2/3} \theta \quad (4.4.5-27)$$

Para tal devem ser consideradas algumas hipóteses: no ponto em análise a temperatura do gás e a composição não devem variar de modo significativo com o tempo; a concentração do composto dessublimável no fluxo gasoso é pequena; as propriedades físicas e as de transporte são constantes.

4.5 - Projeto do equipamento

A pesquisa para o desenvolvimento do dessublimador que tem por finalidade a retenção e purificação do hexafluoreto de urânio obedeceu a uma criteriosa análise de alternativas, que foram levantadas e estudadas ao longo de estudos realizados, desde à escala laboratorial até o projeto, fabricação, montagem e operação do equipamento à escala semi-industrial. Esta pesquisa obedeceu em linhas gerais às etapas que a seguir se descrevem.

4.5.1 - Formulação geral do problema.

Para o desenvolvimento do equipamento, considera-se além das variáveis do processo, definidas pelas próprias condições do processo químico em estudo, as variáveis de projeto para as quais atribuímos valores dentro de uma gama limitada pelas condições das instalações de produção. Consideramos conhecidas as seguintes variáveis e que são definidas pelo processo:

* concentração do UF₆ à entrada do dessublimador;

* vazão da mistura gasosa à entrada do equipamento;

* composição molar dos compostos não sublimáveis;

* quantidade do sólido a ser recolhido em cada batelada;

* tempo transcorrido durante o processo de recolha do sólido,

* temperatura da corrente gasosa à entrada do dessublimador;

* pressão do processo ou seja a pressão de operação;

* densidade do UF₆ sólido depositado;

* condutividade térmica do sólido depositado;

* capacidade calorífica da mistura gasosa;

* viscosidade da mistura gasosa;

* condutividade térmica da mistura gasosa;

* pressão de vapor do sólido;

* peso molecular dos compostos envolvidos;

* números admensionais de Prandtl, Reynolds e de Schmidt.

Estes dados ou são definidos pelo processo químico, ou são propriedades obtidos quando da análise da literatura existente sobre as propriedades de transporte e físicas dos diferentes compostos.

4.5.2 - Temperatura de refrigeração

Considerando conhecida a percentagem do hexafluoreto de urânio presente na corrente gasosa da alimentação e a quantidade que deve ser retida, calcula-se qual a sua pressão parcial na corrente de entrada e qual o seu valor à saída do equipamento. Utilizando a equação que nos relaciona à pressão de vapor do UF_6 em função da temperatura, e utilizando os valores das variáveis de processo previamente definidos, determina-se a que temperatura se deve arrefecer o trocador de calor, para obter-se os valores definidos como critérios de projeto.

4.5.3 - Formação de névoas e cálculo da área da seção transversal

À medida que o fluxo gasoso atinge as condições de saturação formam-se flocos de "neve" do composto sublimável na corrente gasosa e que podem ser transportados além da saída do equipamento, percorrendo grandes trechos de tubulações do processo, e diminuindo o rendimento da retenção do produto. Nestes casos, concebe-se ou não junto à seção de saída do dessublimador retentores de particulado, tipo filtro, para evitar que o UF₆ seja perdido, e que possa se depositar no interior das tubulações de processo. Deste modo, os sólidos sob forma de névoas e que podem ser transportados para fora do equipamento, acabam por ser retidos ainda no interior do trocador de calor. Estes filtros não foram projetados para o trocador em estudo, devido aos valores de perda de carga que originam, e ainda porque o processo em estudo trabalha sob condições de vácuo de pequena intensidade, com valor próximo das condições ambientais. Neste caso haveria elevada probabilidade da ocorrência de entupimento à saída do equipamento com o uso dos filtros. Tendo conhecimento da formação de névoas de UF₆ no processo, considera-se como um parâmetro importante a ser levado em conta, e é a velocidade linear da corrente gasosa ao longo do dessublimador que irá definir o quanto de material será transportado em direção às tubulações. Deste modo, quanto maior for a velocidade da corrente da mistura gasosa, maior será a probabilidade de transporte de sólidos, e para tal considera-se a relação dada por Cooper e Resnick (1945) entre a velocidade dos gases e a velocidade linear da corrente gasosa no interior do equipamento:

peso (libras) do UF₆ levado até à saída do dessublimador dividido pelo peso (lb) do UF₆ que foi alimentado ao equipamento é igual a $0,1 v^{3,8}$, sendo v a velocidade linear dos gases.

Como as velocidades não devem ser elevadas, utilizam-se valores por volta de 15 cm/s ou menores. Saliente-se que o valor máximo da velocidade a ser usada depende do tamanho e do peso das partículas ("névoa") formadas durante o processo de dessublimação. Se as partículas forem pequenas e de baixo peso, a velocidade que pode ser utilizada adquire valores bem baixos. A capacidade de retenção será dada por:

$$C_{ret} = (m_c)_e - (m_c)_f = M_c [(n_c)_e - (n_c)_f] \quad (4.5.3.1)$$

A eficiência de retenção do processo dada pela expressão, $\varepsilon = 0.1v^{3.8}$ (4.5.3.2)

$$C_{ret} = M_c \Big[\big(n_c \big)_e \Big] \varepsilon \quad (4.5.3.3)$$

Como as frações molares dos compostos são definidas por:

$$x_{c} = \frac{(n_{c})}{n_{T}} \quad (4.5.3.4)$$
$$x_{i1} = \frac{(n_{i1})}{n_{T}} \quad (4.5.3.5)$$
$$x_{i2} = \frac{(n_{i2})}{n_{T}} \quad (4.5.3.6)$$

Considerando a equação dos gases perfeitos tem-se:

$$P_T V = n_e RT$$
 (4.5.3.8)

e sendo V a vazão volumétrica dos gases, e S a área da seção transversal, a velocidade dos gases v será dada por:

$$v = \frac{V}{S}$$
 (4.5.3.9)

Como é conhecida a vazão da mistura gasosa à entrada do trocador, e considerou-se uma velocidade para o fluxo da mistura gasosa que deve levar em conta o transporte ou não das

partículas que se formam na fase gasosa, pode-se chegar a um valor inicial da área que determinará a seção mínima para o escoamento da mistura gasosa.

4.5.4 - Características e número de dessublimadores

Ao se definir o projeto de cada unidade de dessublimação, ela foi concebida de modo a se utilizar um número mínimo de trocadores de calor, número esse dependente da capacidade de produção, definida previamente, nas escalas de bancada, piloto e semiindustrial, e relativas aos objetivos a serem atingidos em cada uma dessas escalas, principalmente quanto a quantidade de material sólido a ser retido.

Na escala de bancada montaram-se 3 dessublimadores dispostos em série, enquanto que na escala piloto e na escala semi-industrial usaram-se respectivamente um e três trocadores de calor. Na escala semi-industrial, apesar do uso de três dessublimadores, por razões operacionais e de segurança, cada um deles obedecia às condições de produção previamente definidas, ou seja, a capacidade de retenção do hexafluoreto de urânio de cada equipamento era tal que condizia com condições de recolha do hexafluoreto de urânio segundo a capacidade operacional da unidade. Quando do projeto definitivo, para a escala industrial, montou-se também três dessublimadores cuja capacidade de cada um satisfazia as condições de produção.

Quanto à concepção do feixe tubular a ser utilizado no dessublimador, considerou-se inicialmente tubos aletados internamente, com a recolha do UF_6 se fazendo internamente aos tubos. Neste caso o trocador de calor apresentaria uma pequena área de troca térmica e como conseqüência uma área disponível para solidificação do material que estaria muito dependente da eficiência das aletas. Surgem para este caso, variáveis de processo importantes que devem ser analisadas com critério, para que o projeto do trocador resulte na obtenção de um equipamento que apresente um elevado rendimento durante o processo de dessublimação, levando a uma retenção eficiente do produto e mais, numa quantidade

compatível com a capacidade de produção da unidade. Dentre essas variáveis podemos citar:

- * diâmetro dos tubos do trocador,
- * eficiência das aletas,
- * velocidade dos gases.

Como já se comentou a deposição do sólido ocorre de modo diferente no interior do trocador, e ao longo do equipamento, obtendo-se um crescimento não uniforme, na superfície de troca térmica, e ao longo dos tubos, apresentando espessuras diferentes para cada ponto do dessublimador. Com diferentes número de aletas e apresentando diferentes eficiências, no início do processo, a deposição dos sólidos ocorre a uma taxa elevada, e a eficiência das aletas apresenta valores mais elevados quando comparados com valores à saída do trocador. À medida que a espessura da camada sólida aumenta, a eficiência das aletas diminui. Considerando a aleta como uma placa que apresenta diferentes valores de eficiência, deve-se levar em conta então seus diferentes pontos superficiais, devendo-se estabelecer uma diferença entre a eficiência pontual da aleta e a sua eficiência global. Neste caso, a eficiência da troca térmica é mais elevada junto à base da aleta e, por conseguinte, a deposição de sólidos é mais eficaz junto à sua base. Se por um lado a eficiência na base da aleta é maior, e o sólido se deposita com maior eficácia, crescendo em espessura, e à medida que esse crescimento ocorre esse sólido atua como um isolante térmico, cada vez mais eficaz, a eficiência para retenção do sólido deve-se alterar. Para se analisar em detalhe a eficiência das aletas deveria se estabelecer uma correlação entre a eficiência da aleta e os coeficientes de transferência de calor envolvidos nos processos, mas que não faz parte da proposta deste trabalho.

4.5.5 - Cálculo da área de troca térmica

Considerando o dessublimador como sendo um trocador de calor de carcaça e tubos, com chicanas e aletas podemos utilizar a equação seguinte, McAdams (1950) para definir o coeficiente de troca térmica

$$\frac{h}{G_g C_m} = \frac{C_{al}}{R_e^{1/2} P_r^{2/3}} \quad (4.5.5-1)$$
$$\frac{h}{G_g C_m} = 0.67 \left(\frac{G_g X}{\mu}\right)^{-1/2} \text{ Pr}^{-2/3} \quad (4.5.5.2)$$

Em condições normais de operação, o coeficiente da troca térmica entre a corrente gasosa e a superficie dos tubos, normalmente, está compreendido na gama de 2,4 a 7,3 kcal/ h m² °C. Considerando que o fluxo de calor é dado pela soma do calor sensível mais uma parcela correspondente a metade do calor latente, já que a outra parcela do calor latente está diretamente ligada a condensação na parede, pode escreve-se:

$$q = m_g C_m \Delta T + 1/2\lambda x_g m \quad (4.5.5-3)$$

$$q = \left\{ C_{ig} x_{ig} + C_{cg} x_{cg} \right\} G_g \left(T_{ge} - T_{cf} \right) + 1/2\lambda G_g x_g \quad (4.5.5.4)$$

Conhecendo os valores da capacidade calorífica da mistura gasosa, a fração molar do hexafluoreto de urânio à entrada do equipamento, sua capacidade calorífica, a vazão da mistura gasosa, a temperatura da mistura gasosa à entrada do equipamento, a temperatura de saída, e o calor latente de sublimação, calcula-se o calor transferido. Considerando um valor médio para o coeficiente h, tem-se:

$$q = Ah\Delta T_{\rm in} \quad (4.5.5-5)$$

A diferença logarítmica será dada por:

$$T_{\rm in} = \frac{T_{ge} - T_{gf}}{\ln\left(\frac{T_{ge} - T_r}{T_{gf} - T_r}\right)} \quad (4.5.5.6)$$

Levando em conta as variáveis de processo conhecidas, e citadas anteriormente pode-se numa primeira aproximação, determinar qual a superfície de troca térmica exigida pelo processo, para acúmulo da quantidade do hexafluoreto de urânio e que satisfaz uma determinada capacidade de produção.

4.5.6 - Evolução do perfil do depósito de sólido

Durante o processo de dessublimação o composto que muda de fase deposita-se como um sólido sobre as paredes dos tubos do trocador, seja no interior ou no exterior dos tubos, dependendo de como foi concebido o equipamento e o processo químico em estudo. Como se pretende determinar a quantidade de sólido que se deposita ao longo do equipamento, isto implica em se saber, ponto a ponto, qual a altura da camada de sólido aderida sobre as paredes do feixe tubular. O conhecimento da espessura do sólido depositado é de grande importância, já que o sólido atuando como um isolante térmico, à medida que se deposita, faz com que a taxa de transferência de energia térmica diminua com o tempo de operação, e ao longo do feixe tubular. O fluxo de calor deve variar à medida que o processo progride, armazenando o produto, para uma determinada posição no interior do trocador. Ao se considerar uma outra posição sobre o feixe tubular a espessura de sólido já apresenta outro valor, com a taxa de troca de energia apresentando também outro valor. Assim o conhecimento da espessura da camada sólida ao longo do trocador é um parâmetro importante do processo. Sabendo-se como a espessura do sólido varia ao longo do trocador e de quais parâmetros depende, conhece-se os perfis de depósito do sólido, e assim se consegue uma melhora na taxa global de transferência de energia térmica. No processo de dessublimação surgem locais no interior do trocador que apresentam deposições máximas do sólido depositado, sendo que um deles situa-se logo à entrada do trocador, enquanto que o outro se localiza junto ao ponto onde se dá a saturação da mistura gasosa, e no qual se inicia a formação das "névoas" de UF₆. Um dos pontos em que a deposição do hexafluoreto de urânio pode apresentar um elevado valor e nas proximidades do bocal de entrada da mistura gasosa, enquanto que o outro é junto ao ponto de saturação dos gases.

4.5.7 - Considerações sobre a distribuição das aletas

Conhecendo-se a maneira como o sólido se deposita, ou seja, se conhecemos ao longo do tempo e ao longo do trocador, o comportamento do perfil da camada sólida, tanto no sentido radial, como no sentido longitudinal, no trocador, assim como a real área de troca térmica disponível, pode-se ter idéia da melhor disposição das aletas no interior do equipamento. Nesses casos usam-se chicanas como dispositivos para aumento da área de troca térmica, utilizadas normalmente nos trocadores de calor de carcaça e tubos, e que dão origem ao fluxo transversal da corrente gasosa, em relação ao feixe tubular, e que por serem longos apresentam a vantagem de originarem maiores áreas de troca. Dentre os diferentes tipos de aletas existentes, as de disposição radial, são as que apresentam uma maior relação de superfície específica para as suas relações de volume.

Ao se elaborar o estudo da melhor disposição das aletas no interior do dessublimador, deve-se considerar a sua melhor distribuição, levando em conta que, o sólido depositado não deve crescer a ponto de causar a obstrução do fluxo da mistura gasosa no interior do equipamento, acompanhando-se para cada geometria escolhida o valor que a abertura para o fluxo adquire frente ao processo de dessublimação. Qualquer entupimento que ocorra no interior do trocador faz com que não se chegue ao equipamento com o produto, na quantidade prevista inicialmente no projeto, ou seja, o sólido não atingirá a quantidade suficiente para preencher o espaço vazio definido durante a fase de projeto do dessublimador. Nessa fase de estudo variáveis como, condutividade térmica e densidade do sólido devem ser analisadas com um certo critério, já que podem alterar em muito os cálculos a serem realizados.

Ao se detalhar o conhecimento sobre a densidade e condutividade térmica do sólido, podemos conhecer com uma certa margem de certeza, qual é a espessura do depósito sólido junto ao ponto de saturação e, deste modo, se prever qual o espaço a ser deixado e pelo qual passará o fluxo de gases sem ocorrer entupimento.

4.5.8 - Porosidade como fator de incerteza

A condutividade térmica do hexafluoreto de urânio sólido é um parâmetro importante do processo, já que a variação de seus valores pode conduzir a desvios significativos nos resultados dos cálculos da transferência de energia. A deposição do sólido dá-se de forma tal que a camada sólida formada apresenta um elevado grau de porosidade, originando baixa eficiência nos processos de transferência de energia térmica. Neste estudo considera-se a condutividade térmica do UF₆ como sendo 0,145 kcal/h m. ^oC, enquanto que a mistura gasosa a entrada do equipamento tinha para a condutividade térmica valores compreendidos na gama de 0,004 a 0,04 kcal/h.m.^oC. O valor da porosidade do hexafluoreto de urânio sólido não é encontrada na literatura como um valor perfeitamente conhecido, e deste modo o valor condutividade térmica é então estimado como médio, e dado por 0,149 kcal/h m ^oC. Deste modo a condutividade térmica apresentará também um valor pertencente a um intervalo de confiança com certa margem de erro. Os valores da densidade do sólido e da condutividade podem conduzir a cálculos que levam a valores do espaço livre para o fluxo incorretos e que podem por conseguinte levar a condições de entupimento do trocador.

4.5.9 - Critérios de projeto

As variáveis que levam a um bom funcionamento do dessublimador, e que estão relacionadas com a capacidade de armazenagem do UF_6 e das quais irá depender a capacidade de produção da unidade são principalmente as seguintes:

- área de troca térmica, e
- geometria interna.

Durante a fase do projeto conceitual considerou-se que essas variáveis deviam levar em conta parâmetros tais como a quantidade de sólido a ser retida no interior do equipamento, para um determinado intervalo de tempo de operação, dentro de um rendimento aceitável de retenção do produto. Nesta fase do projeto, analisou-se alguns fatores referentes a operação do dessublimador e que se listam a seguir:

- O ciclo de tempo compreendido entre o início da alimentação da mistura gasosa, quando se da início a deposição dos sólidos e o início da operação de descarga do material.
- A circulação do fluido refrigerante e o arranjo do equipamento como parte integrante da instalação fabril.

No que concerne as alternativas para a realização do arrefecimento do dessublimador, concluiu-se que poderia se realizar essa operação utilizando salmoura, ou um fluido de refrigeração, pertencente por exemplo à "família" do Freon®.

Definiu-se o modo de arrefecimento como sendo realizado por uma planta de refrigeração, recorrendo a um circuito fechado de refrigerante, com o fluido térmico sendo pressurizado e sofrendo posterior expansão até se atingir a temperatura de refrigeração apropriada ou seja, uma unidade de arrefecimento convencional mas de grande capacidade.

Para se fazer a descarga do hexafluoreto de urânio acumulado, realizou-se o aquecimento da massa acumulada, descarregado-o sob a forma líquida. Esse aquecimento podia ser realizado por meio de resistências elétricas ou pela circulação de um fluido térmico aquecido. Devido às elevadas taxas de corrosão que o fluido de processo pode apresentar e devido às condições de segurança, optamos por utilizar um fluido de aquecimento circulando pelo interior dos tubos e, se possível, o mesmo fluido que utilizaríamos para arrefecimento

Ao se estabelecer a pressão de projeto do dessublimador levou-se em conta fatores de segurança e as taxas de corrosão que o processo químico poderia originar no equipamento.

No que diz respeito aos ciclos de arrefecimento, numa gama de temperaturas compreendidas entre -10 °C e -30 °C e os ciclos de aquecimento, realizados por volta de 120

 $^{\circ}$ C, houve a preocupação, na elaboração do projeto com aspectos de fadiga dos materiais e tensões residuais que porventura pudessem existir nos materiais originadas pelos processos de fabricação mecânica. Deste modo, durante a elaboração do projeto fez-se determinadas considerações de modo a não ocorrerem situações de aquecimento brusco da massa sólida retida no interior do equipamento, com uma taxa de aquecimento definida de tal modo a se realizar a liquefação do UF₆ lentamente. Com isto evitar-se-ia aquecimentos localizados na massa sólida, que poderiam originar sobretensões localizadas e que dariam origem a riscos de ruptura localizada no interior do trocador. Em decorrência, durante o processo de descarga e à medida que se realizava o aquecimento do trocador, acompanhava-se o aumento da pressão do vaso, verificando de modo indireto qual a taxa de transferência de energia térmica evitando-se, deste modo, o surgimento de sobrepressões localizadas no equipamento.

Quanto ao modo de se realizar a descarga do material, apresentavam-se duas possibilidades: poderia se descarregar o UF₆ tanto sob a forma de um líquido, como de um gás. Apesar de haver um aumento no nível de risco, optou-se pela descarga na forma de um líquido, por ser a mais viável sob o ponto de vista operacional. Para se realizar a descarga do hexafluoreto de urânio sob forma de um líquido, tomaram-se todos os cuidados, tanto a nível do projeto do dessublimador, como ao nível do projeto das tubulações, para se evitar qualquer tipo de acidente, que poderia ocorrer, devido ao vazamento do fluido de processo.

Definida a descarga na forma líquida, dever-se-ia também levar em conta que a quantidade de produto retida no dessublimador após se realizar a descarga do equipamento, deveria ser uma quantidade mínima. Para que a descarga se realizasse em sua totalidade, ou deixasse a menor quantidade residual de produto no dessublimador, após cada operação de esvaziamento do trocador, os dessublimadores eram projetados de modo a que as suas montagens mantivessem uma leve inclinação, de cerca de 5 graus, na direção do bocal de descarga do líquido.

Os bocais de entrada da mistura gasosa de alimentação e os bocais de saída dos gases residuais foram mantidos aquecidos com traços elétricos, evitando-se, deste modo, os prováveis entupimentos dessas linhas de processo, já que estes surgem quando o hexafluoreto de urânio atinge condições de temperatura e pressão que levam a sua dessublimação no interior das tubulações, acabando por obstruir as tubulações de processo ou os bocais dos equipamentos. Assim além de se utilizar traços elétricos em todos os bocais do dessublimador, as tubulações de processo também foram aquecidas, evitando-se que o produto se solidificasse ao longo das linhas da planta química.

Dependendo das condições operacionais em que se conduzia a unidade de dessublimação, uma grande quantidade de névoas de hexafluoreto de urânio poderia atingir a saída do equipamento, provocando obstruções freqüentes. Na prática, verificou-se que as linhas de saída de gases residuais em direção ao sistema de exaustão eram trechos de freqüentes entupimentos, e nesses trechos o sistema de aquecimento foi montado de modo a não se ter nenhum ponto frio nas paredes dos tubos.

O sistema de aquecimento dos bocais do equipamento e linhas do processo, consistia de traços elétricos construídos com resistência elétrica encapsulada em "tripa" de silicone, que era enrolada ao longo das tubulações e acessórios tais como conexões e válvulas de processo e de controle. O acabamento do isolamento foi construído com calhas de fibra de vidro, revestidas com calhas de alumínio corrugado. Nos bocais dos manômetros que mediam a pressão de vapor do hexafluoreto de urânio foram montadas lâmpadas de aquecimento por infravermelho, não se permitindo, assim, a solidificação do produto junto ao bocal do manômetro ou no interior do bourdon.

4.6 - Dessublimadores construídos

Ao se desenvolver o projeto do dessublimador houve que considerar que sua geometria deveria ser compatível com os processos de transferências de calor, de um fluxo de processo para outro, tendo-se por finalidade armazenar uma determinada quantidade de produto por batelada, e que nesse equipamento se daria origem à dessublimação. Esta ocorreria desenvolvendo a deposição de um sólido sobre as paredes frias do trocador de calor, que atuaria como um isolante térmico. Assim a obtenção do UF₆ envolveria processos de dessublimação e sublimação respectivamente, para a recolha e descarga do produto, e de modo compatível com a capacidade de produção, obedecendo às normas de segurança. Nesse sentido, por exemplo trocador de calor seria construído segundo as normas estabelecidas, (TEMA e ASME), para vasos de pressão onde se manipulariam fluidos letais. Além das etapas de armazenamento e de descarga do hexafluoreto de urânio, no equipamento ocorreria também uma etapa importante de purificação. Isto explica-se pelo fato da retenção do produto no trocador se dar no estado sólido, enquanto que os componentes não condensáveis da mistura de alimentação deixam o equipamento em direção ao sistema de absorção. Os gases não condensáveis nas condições de operação percorrem todo o processo químico, sendo parte deles originados na unidade de geração de flúor, e outra parte introduzida como gás inerte ao longo de todo o processo. Esses gases residuais passam pelo dessublimador e são absorvidos no final do processo químico em colunas de absorção do tipo de "spray" de cone cheio. A mistura gasosa não retida pelo dessublimador é formada principalmente por flúor e nitrogênio.

Numa primeira fase do projeto construíram-se os equipamentos na escala de bancada para que se pudesse "sentir" o comportamento do processo como um todo, desde as etapas de produção e recolha do hexafluoreto de urânio. Foi nesta escala que se tornou importante o conhecimento de como ocorreria a retenção do hexafluoreto de urânio no processo sob a forma de um sólido, e quais as dificuldades que seriam encontradas ao se operar toda a planta de bancada de modo contínuo. A análise da operação em contínuo do

conjunto de todos equipamentos era importante, já que se previa o surgimento de problemas causados por entupimentos, devido a dessublimação de forma e em locais indesejáveis do processo.

Descrever-se-á a seguir as diferentes etapas do trabalho de pesquisa através das quais se pode chegar ao projeto do equipamento à escala semi-industrial. O trabalho iniciou-se pela observação de que maneira ocorria a dessublimação do UF₆ em pequenos trocadores de calor. Apesar dos equipamentos na etapa da pesquisa, escala de bancada, serem todos construídos em ligas metálicas, Monel e aço inoxidável 304, e com capacidade de recolha do produto numa quantidade máxima de três quilos para cada batelada, constituíram-se essas atividades como integrantes da escala de bancada ou de laboratório, levando-se em conta a baixa capacidade de produção da planta e baixa capacidade de armazenamento do produto.

4.6.1 - Escala de laboratório

Na escala de bancada ou de laboratório, trabalhou-se com materiais metálicos, porque na planta se manipulavam compostos extremamente corrosivos, entre eles o flúor e o próprio hexafluoreto de urânio, e ainda porque um dos objetivos era obter o produto com um grau de pureza elevado, segundo as especificações existentes para o UF₆. Além do domínio da tecnologia, dever-se-ia obter o hexafluoreto de urânio com características tais que pudesse ser utilizado nas etapas posteriores do ciclo do combustível nuclear, ou seja com um pureza que obedecesse às especificações estabelecidas e pudesse ser alimentado nas unidades de enriquecimento do urânio.

4.6.1-1- Objetivo da escala de bancada

Considerando que o trabalho de pesquisa tinha como principal objetivo atingir um alvo que era o projeto de um dessublimador industrial, e com uma margem pequena de erro quando da realização do projeto industrial, e ao consideramos que sobre esse tema pouca literatura está disponível, fez-se necessário percorrer um caminho longo nessa pesquisa, começando o estudo pela escala de bancada, até se atingir um nível de conhecimento a partir do qual se realizaria o projeto detalhado para as etapas posteriores, ou seja, as etapas piloto e semi-industrial. Na figura 4-1 apresenta-se de modo esquemático o fluxograma da planta química, à escala de bancada, da unidade de produção de hexafluoreto de urânio que se descreve de modo resumido a seguir.



Figura 4-1 - Fluxograma da unidade de produção à escala de bancada

A unidade de processamento químico na escala de bancada foi projetada, montada e era formada por duas principais unidades: a unidade de geração de flúor, que possuía duas células eletroquímicas, que forneciam flúor em quantidade suficiente para a produção do hexafluoreto de urânio, e outra unidade, na qual se realizava a de produção do hexafluoreto de urânio. O flúor, após passar por colunas de absorção contendo pastilhas de fluoreto de sódio, para retenção do fluoreto de hidrogênio, era introduzido num reator do tipo tubular e no qual se realizava a produção do hexafluoreto de urânio, e no qual se fazia a reação entre o flúor gasoso e o tetrafluoreto de urânio, sólido. O hexafluoreto de urânio mantido na forma gasosa a uma temperatura superior a 100 °C era encaminhado para um sistema separador de partículas sólidas, um ciclone, situado logo após o reator tubular, retendo-se neste equipamento as partículas de UF₄ que não tinham reagido, e que eram arrastadas pela corrente gasosa. Na seqüência do processo, o hexafluoreto de urânio era alimentado a um conjunto de três dessublimadores do tipo tubular, que estavam dispostos em série.

Além das unidades de produção de flúor e de hexafluoreto de urânio, eram também partes integrantes do processo outras plantas auxiliares, que forneciam utilidades tais como nitrogênio gasoso, água de refrigeração, corrente elétrica contínua e retificada, e um sistema de estocagem de fluoreto de hidrogênio, que se encontrava num local seguro e separado das unidades de produção, em parte por ser uma unidade de risco elevado. No final do processo de fabricação do UF₆ instalou-se uma unidade de absorção de gases residuais do processo, formada por colunas de absorção, onde se utilizava solução aquosa de hidróxido de potássio como solução de absorção.

4.6.1.2 - Metodologia utilizada

Ao se construir essa unidade de produção de hexafluoreto de urânio na escala de bancada tinha-se como já foi dito em vista alcançar o domínio de todos os processos químicos constituintes de uma etapa importante do Ciclo do Combustível Nuclear, que era a obtenção do hexafluoreto de urânio. Foi a partir dessa fase que se pode conceber, mesmo que de forma preliminar qual seria a mais adequada forma geométrica e qual o tipo mais adequados que os equipamentos principais e constituintes do processo de fabricação do UF_6 deveriam apresentar. Na realidade, foi a partir da operação da unidade de bancada em contínuo, por intervalos de tempo satisfatórios e representativos das operações que seriam realizadas na escalada piloto, que se concebeu qual seria o projeto conceptual das fases seguintes, e as formas mais adequadas dos equipamentos.

Foi também a partir da operação em contínuo dessa pequena planta química que se definiu os projetos dos reatores eletroquímicos de geração de flúor, do reator de produção de hexafluoreto de urânio, e que se conceberam os dessublimadores, o sistema de absorção de gases, os sistemas de alimentação das matérias primas, todo o processo de tratamento dos efluentes, o projeto da unidade de retificação de corrente elétrica, e que se começou a delinear os manuais de operação das diferentes unidades, levando em conta quais os locais da futura planta química que apresentariam riscos de operação mais elevados.

Foi durante a operação dessa unidade de bancada de produção de hexafluoreto de urânio, que se testaram e se definiram quais os melhores componentes acessórios constituintes da planta química, como materiais das tubulações e forma mais adequada das montagens, quais os materiais de construção a serem utilizados, tipo de construção mecânica a ser feita, definições de montagem nas fases do projeto mecânico, seleção e especificação das válvulas de processo mais indicadas para a unidade e que poderiam ser usadas, com uma elevada margem de segurança, nas etapas seguintes, ou seja, nas escalas piloto e semi-industrial.

4.6.1.3 - Dessublimador à escala de bancada

Tanto a capacidade nominal de projeto, como a capacidade real da unidade de produção do hexafluoreto de urânio, nesta fase do desenvolvimento, eram pequenas,

obtinha-se o produto numa taxa de cerca de alguns quilos por semana, correspondente às bateladas permitidas pela dimensão dos equipamentos.

O principal objetivo dessa construção era o levantamento de dados de processo, tentando-se levar as operações de produção do modo mais contínuo possível para se determinar os pontos "vulneráreis" do processo químico e a ocorrência de situações que conduzissem a paragens da produção. Além disso, pretendia se analisar os aspectos relacionados com a segurança industrial, levantando-se informações que seriam utilizadas nas definições finais, a serem feitas nas etapas posteriores, referentes às unidades de produção com maiores capacidades.

O sistema de retenção do UF_6 na escala de bancada era formado por uma bateria contendo três dessublimadores dispostos em série. Na figura 4.2 se apresenta o projeto do dessublimador de bancada. Na figura 4.3 mostra-se um dos três dessublimadores usados com as válvulas acopladas.



Figura 4.2 - Desenho esquemático do dessublimador de bancada.



Figura 4.3 - Dessublimador utilizado à escala de bancada.

Os dessublimadores eram constituídos por cilindros metálicos de Monel® com altura de 500 mm e diâmetro 120 mm. No topo possuíam dois bocais, onde se instalaram válvulas flangeadas do tipo macho. Por um dos bocais se alimentava o hexafluoreto de urânio gasoso, a temperatura de cerca de 85 °C, enquanto que pelo outro bocal se permitia à saída do UF₆ gasoso que não era retido no dessublimador. O UF₆ que deixava o primeiro dessublimador passava para o dessublimador seguinte e assim sucessivamente, até que a corrente gasosa apresentasse pequenas quantidades do UF₆ à saída do terceiro dessublimador. Os gases que deixavam o terceiro dessublimador eram encaminhados para o sistema de absorção.

Em cada dessublimador, a tubulação por onde se admitia o hexafluoreto de urânio era construída na forma de tubo pescador, cujo diâmetro aumentava no interior do cilindro de Monel. Essa construção foi assim definida porque já se previa a existência de uma provável zona de entupimento, que se localizaria nessa região do dessublimador, devido à cristalização do produto, levando à obstrução na zona interna do equipamento, e não permitindo a continuidade do fluxo de gases. A disposição dos tubos no interior dos dessublimadores foi concebida de modo a se evitar o mais possível o curto-cicuito dos fluxos gasosos, e se aumentar o tempo de residência da corrente da mistura gasosa no interior desses equipamentos, contatando do modo mais eficiente possível com as paredes frias do trocador. Na figura 4.4 se apresenta um fluxograma esquemático dos dessublimadores utilizados à escala de bancada onde se mostra como se definiram as tubulações e válvulas de processo e os locais de amostragem.



Figura 4.4 - Conjunto dos três sublimadores.

Para se realizar o arrefecimento dos dessublimadores, eles foram envolvidos externamente por vasos de Dewar construídos em aço inoxidável 304. Esses vasos possuíam dupla parede entre as quais se fazia vácuo, e desempenhavam o papel de "garrafas térmicas". Os dessublimadores eram colocados no interior dos vasos de Dewar, e estes eram preenchidos com um fluido apropriado de arrefecimento até um determinado nível de temperatura.

Na figura 4.5 mostra-se o conjunto do dessublimador de bancada e do vaso de Dewar que o envolvia, e as válvulas de processo conectados ao equipamento.



Figura 4.5 - Dessublimador de bancada envolvido por vaso de Dewar.

O sistema de arrefecimento utilizado para a dessublimação à escala de bancada foi testado para diversas temperaturas e para diferentes fluidos de refrigeração. Inicialmente utilizou-se nitrogênio líquido, -195 °C, logo se concluindo a inviabilidade desse processo por ser antieconómico e inadequado ao processo pelas baixas temperaturas desenvolvidas. Este processo era inviável para ser aplicado numa escala de produção maior, mesmo porque o processo de dessublimação do hexafluoreto de urânio não necessitava de temperaturas de arrefecimento tão baixas quanto as desenvolvidas pelo nitrogênio líquido, o que representava gasto desnecessário. Uma das grandes desvantagens desse sistema relacionava-se com os materiais de elevado custo, devido às temperaturas criogênicas atingidas nesse sistema de arrefecimento. Além disso, o uso conjunto de temperaturas extremamente baixas para o arrefecimento com nitrogênio líquido e altas cerca de 100°C para a descarga do produto na forma líquida, levava à hipótese de se originar fragilização dos materiais constituintes dos dessublimadores. De fado, os equipamentos ficavam sujeitos à temperaturas criogênicas, de por volta de -190 °C, enquanto que na etapa de descarga a temperatura na parede dos dessublimadores atingiria de 100 a 110 °C.

Nos casos em que se operava a unidade de dessublimação utilizando o nitrogênio líquido originava-se um intenso arrefecimento dos dessublimadores, com temperaturas muito baixas se propagando até os bocais de entrada e saída da mistura gasosa, onde se originavam entupimentos por solidificação, cristalização do hexafluoreto de urânio, que obrigavam a paragens da operação da unidade. As válvulas utilizadas, apesar da criteriosa seleção mostraram-se inadequadas ao processo de recolha do hexafluoreto de urânio frente a temperaturas baixas quando se utilizava o nitrogênio líquido. Apesar dos ensaios prévios realizados com diferentes tipos de válvulas, concluiu-se que eram os pontos fracos da unidade de dessublimação. Como as temperaturas eram muito baixas, atingia-se um nível de arrefecimento do sistema tal que as válvulas ficavam envolvidas por camadas de gelo na superfície exterior de seu corpo, tornando impossível as operações de abertura e fechamento.

Apesar das tubulações de processo serem todas aquecidas por traço elétrico, constatou-se que os trechos de tubos junto aos bocais dos dessublimadores necessitavam de um sistema de aquecimento mais eficaz, já que atingiam baixas temperaturas, por condução a partir do banho de arrefecimento. Isto levava a entupimentos tanto em trechos dos tubos, como nas próprias válvulas do processo. Para se evitar o congelamento das válvulas, desmontou-se a unidade de dessublimação e instalaram-se as válvulas a uma distância maior dos bocais de entrada e de saída dos dessublimadores. Numa fase posterior os três dessublimadores foram operados à temperatura de -15, -25, e -40 °C.

4.6.2 - Escala piloto

Recolhidos os dados e obtidas as informações sobre as operações na planta de bancada, foram analisadas e conheceram-se quais as dificuldades operacionais do sistema de dessublimação como um todo. As dificuldades encontradas na operação da unidade de bancada foram analisadas de modo criterioso e foram utilizadas para se definir o trocador de calor capaz de operar continuamente e como deveria ser o projeto conceitual do equipamento para uma escala maior de recolha do produto. Dentre os diferentes tipos de trocadores de calor existentes, alguns foram eliminados devido à geometria não ser compatível com as condições operacionais do processo. Um parâmetro importante do processo de cristalização do hexafluoreto de urânio era que o equipamento a ser projetado deveria possuir espaço interno previamente definido no projeto, de modo a permitir acúmulo de produto sólido no seu interior. Esse espaço previamente definido no projeto conceitual deveria ser compatível com a capacidade de produção da planta química. Consultando a literatura verificou-se que os trocadores de calor do tipo tubos concêntricos e de placas não apresentariam grande volume interno, capaz de armazenar continuamente consideráveis quantidades do hexafluoreto de urânio. E não só, dever-se-ia também levar em conta que o hexafluoreto de urânio ao passar do estado sólido para líquido, quando das etapas de descarga do produto, apresentaria um grande aumento de volume, o que era traduzido na literatura consultada, pela variação dos valores da densidade. Assim, o equipamento a ser selecionado teria que apresentar um grande volume de armazenamento do produto, tanto para o sólido como para o líquido, não se podendo esquecer da existência do risco de acidente por ruptura hidráulica do equipamento e, como conseqüência, o vazamento de um produto altamente tóxico.

Os trocadores de calor compactos, do tipo de placas, pareciam não atender às condições do processo, por exigência de espaço interno de dimensões tais que deveria acumular o hexafluoreto de urânio no estado sólido em grandes quantidades, além das condições a serem obedecidas quanto às pressões de processo. E mais, quando de sua descarga, o produto aquecido passando para o estado líquido, com todas as válvulas de entrada e saída fechadas, deveria abrigar ainda um maior espaço, devido a uma característica do hexafluoreto de urânio de aumentar de volume e aumentar a pressão de vapor com o aumento da temperatura. Numa análise prévia de alternativas, qualquer equipamento cujo interior fosse formado de pequenas áreas vazias disponíveis utilizáveis para armazenagem, foi considerado não adequado para o processo de dessublimação do hexafluoreto de urânio. Apesar da literatura apontar para trocadores de calor de carcaça e tubos, não se dispensou uma análise criteriosa dos demais tipos de trocadores. O trocador de calor selecionado e cuja geometria mais se adaptaria às condições do processo seria do tipo carcaça e tubos, que satisfazia alguns requisitos importantes, tais como:

- grande volume interno, apresentando boa capacidade de armazenamento do produto tanto na forma de um sólido como de um líquido;
- existência de normas e códigos de construção muito bem definidos, nos quais se incluíam perfeitamente os requisitos de projeto e de fabricação do equipamento, e que seriam compatíveis com os requisitos de construção para equipamentos onde se manipulariam substâncias perigosas e tóxicas; nestes casos as exigências de projeto estariam especificadas pelo ASME e TEMA;
- existência no mercado brasileiro de empresas de construção mecânica com grande experiência e elevada competência no projeto e construção de trocadores de calor de carcaça e tubos;
- facilidade de manutenção que é uma das características importantes desse tipo de trocador de calor, adquirindo este fator importância elevada, principalmente na fase de testes na unidade piloto;
- pequeno volume externo: os trocadores de carcaça e tubos ocupam pouco espaço, e no caso das etapas de projeto seguintes, escala semi-industrial e industrial, facilitaria o leiaute com elevado grau de certeza, tanto do próprio equipamento como das tubulações.

Entre as diversas vantagens que se obteria ao escolher um trocador de calor do tipo carcaça e tubos, para ser utilizado como dessublimador do hexafluoreto de urânio, o fator segurança foi também decisivo, frente a condições de prováveis operações não rotineiras, ou em casos de operações cuja probabilidade de risco seria elevada. Devido à existência de normas de construção muito bem estabelecidas, os equipamentos poderiam ser construídos de modo a que os riscos de vazamento seriam minimizados, dadas as especificações rígidas de construção mecânica.
4.6.2.1 - Objetivo da escala piloto

Levantados os dados na unidade de laboratório, passou-se à fase do desenvolvimento à escala piloto, tendo como principal finalidade se concretizar o projeto conceitual do dessublimador, assim como de toda a unidade de dessublimação, de uma forma planejada tal que não conduzisse a grandes erros tanto nessa etapa como na seguinte, quando o equipamento a ser projetado nas fases semi-industrial e industrial, atingiria uma proporção de armazenamento do produto por volta de centenas de quilos por batelada de armazenagem/descarga. Tinha-se como principal objetivo elaborar um projeto de modo a evitar ou minimizar erros que levassem a custos altos ou condições do processo que originassem acidentes ou riscos elevados durante as operações em que se iria manipular quantidades de hexafluoreto de urânio que andariam por volta de uma tonelada.

4.6.2.2 - Metodologia utilizada à escala piloto

O dessublimador projetado foi definido como sendo do tipo trocador de calor de carcaça e tubos, e pela análise da literatura verificou-se que esse trocador deveria possuir aletas para aumentar a eficiência da troca térmica. Justificava-se o uso de aletas, para compensar a perda de eficiência nas taxas de transferência de calor, devido a deposição do sólido sobre as paredes dos tubos. O hexafluoreto depositado atuaria como um isolante térmico fazendo com que o processo apresentasse um baixo rendimento, ao longo do tempo de operação. Ao se depositar como um sólido, fazia-o de modo a que a porosidade da camada depositada apresentasse um valor elevado e indesejável, dando-lhe características de baixa condutividade térmica e, deste modo, atuando como um eficaz isolante térmico. Além disso, essa camada de UF₆ aumentava de espessura à medida que o processo progredia. O equipamento deveria conter assim em seu interior conjuntos de chicanas e de aletas, dispostas de modo a compensar a diminuição na taxa de troca térmica, e essas aletas deveriam ser projetadas e dispostas no trocador segundo critérios

que levassem em conta a provável ocorrência de entupimentos, e originassem o maior preenchimento pelo produto do espaço disponível no equipamento. Só assim é que se conseguiria armazenar a quantidade de sólido prevista no projeto e compatível com a produção.

Tornava-se importante durante o estudo à escala piloto verificar o modo como o dessublimador se comportaria frente aos prováveis entupimentos, devido à solidificação do produto à entrada, ou em determinadas regiões no seu interior, impedindo a continuidade do fluxo dos gases de processo. Estas situações conduziriam a paragens da unidade de produção. A atenção voltava-se também para o caso de ocorrerem elevadas perdas de carga no interior do dessublimador causada pelo acúmulo excessivo de material num determinado ponto do equipamento, originando um desbalanceamento de pressões ao longo de toda unidade de produção, já que a planta operava com vácuo de pequena intensidade. O dessublimador na escala piloto tinha uma capacidade de armazenamento de cerca de 20 quilos de hexafluoreto de urânio e apresentava as seguintes dimensões principais:

- comprimento da carcaça: 1000 mm,
- diâmetro da carcaça: 200 mm.

4.6.2.3 - Dessublimador à escala piloto

Definido o dessublimador para a etapa da escala piloto como sendo um trocador de calor de geometria interna especial, e do tipo carcaça e tubos, iniciaram-se as definições para dimensionar seus componentes internos e desenhá-los segundo critérios de projeto que conduzissem à melhor operação possível da unidade de produção do hexafluoreto de urânio.

4.6.2.4 - Projeto do dessublimador na escala piloto

O projeto conceitual para o dessublimador a ser testado na etapa de escala piloto foi idealizado segundo a forma de um trocador de calor do tipo carcaça e tubos com tubos em U, requerendo assim apenas uma placa de tubos, o espelho do trocador. Sabe-se que trocadores de calor com feixe tubular em forma de U devem ser utilizados para os casos em que se manipulem fluidos isentos de sólidos, já que as operações de manutenção e limpeza do feixe tubular são de difícil realização. Tais considerações colocaram-se a considerar no âmbito das decisões preliminares e importantes. No caso da dessublimação do hexafluoreto de urânio, o produto se acumularia sobre as paredes do feixe tubular e como um sólido. Assim estava-se frente a definições que envolviam, por um lado, aspectos de limpeza do feixe tubular, e que teriam sua importância para as situações de manutenção do equipamento, em que o trocador de calor teria que ser aberto e desmontado, e, por outro lado, o desenvolvimento de um processo que daria acúmulo de sólido no interior do trocador de calor. Na construção do dessublimador piloto, os tubos foram dispostos sob a forma de feixe tubular em U e arranjados segundo o esquema apresentado na figura 4.6



Figura 4.6 - Disposição dos tubos à escala piloto.

O feixe tubular era mantido fixo por conjuntos de aletas e chicanas, e estas em número de 5 e distanciadas de cerca de 160 mm, entre as quais havia um número variável de aletas. Na figura 4.7 mostra-se um trecho do feixe tubular do dessublimador piloto.



Figura 4.7 - Feixe tubular do dessublimador piloto.

Os tubos do dessublimador foram especificados de forma a resistirem tanto a taxas de corrosão elevadas, já que os fluidos de processo são altamente agressivos, como frente às variações de temperatura durante a carga e descarga do produto. Sabia-se que à medida que o depósito de hexafluoreto de urânio crescesse sobre as paredes externas do feixe tubular, os espaços vazios para o fluxo dos gases de processo iriam diminuir. Com a deposição dos sólidos, os fluxo dos gases se alteraria no interior do trocador e os valores para a perda de carga devido a essa deposição certamente se alterariam. As características do fluxo de gases estariam dependentes das folgas definidas entre diferentes partes internas constituintes do equipamento, por exemplo, as folgas existentes entre a parede interna da carcaça e as aberturas das aletas e chicanas. Por outro lado, essas folgas iriam

adquirir valores diferentes à medida que o processo evoluiria, tendendo para situações de prováveis entupimentos. Frente a tais situações devia-se analisar alguns parâmetros:

- alteração da corrente de fuga entre a parede externa do tubo e o orifício construído na chicana;
- alteração do fluxo transversal verdadeiro;
- alteração da corrente esquiva entre a parede interna da carcaça e os tubos mais externos do feixe tubular;
- alteração da corrente de fuga entre a parede interna da carcaça e as chicanas, ou seja, o fluxo dependente da folga entre a chicana e a carcaça, definida no projeto.

Pela análise da literatura, chegou-se à conclusão que o mais indicado para esse tipo de equipamento seria o uso de aletas segmentadas, de modo a que se originasse um melhor fluxo transversal da mistura gasosa sobre o feixe tubular.

A existência de diferentes tipos de fluxos no interior do dessublimador alterariam tanto as taxas de troca térmica como a perda de carga ao longo do equipamento. Além disso, o dessublimador deveria prever casos de manutenção em suas partes internas, devendo o feixe tubular possuir folga razoável em relação às paredes internas da carcaça. A folga entre as paredes externas dos tubos e as chicanas deveria ser preenchida de modo rápido com o hexafluoreto de urânio, levando à alteração no valor da perda de carga e da taxa de troca térmica. Generalizando, poder-se-ia afirmar que devido ao preenchimento dessas folgas com o UF₆ solidificado, o dessublimador tenderia a apresentar um aumento no valor da perda de carga durante a operação de armazenamento e diminuir a taxa de troca térmica. Na figura 4.8 mostra-se o dessublimador piloto.



Figura 4.8 - Dessublimador piloto: vista externa.

Para haver compensação das diferentes taxas de transferência de energia e matéria o dessublimador possuía uma "densidade" diferente de aletas ao longo de seu comprimento, significando que no interior da carcaça, o trocador possuía entre as chicanas diferentes número de aletas. Projetou-se o trocador com um número crescente de aletas, para superar, na medida do possível, a dificuldade causada pelo efeito do crescimento do sólido, que atuava como isolante térmico e aumentava a dificuldade em reter o hexafluoreto de urânio ao longo do dessublimador. À medida que o fluxo gasoso fosse alimentado ao trocador, o sólido se depositaria e a concentração do hexafluoreto de urânio tornar-se-ia cada vez mais diluída no seio da corrente gasosa, ao mesmo tempo que o depósito sólido das paredes originaria cada vez mais um aumento de valor da resistência. Se por um lado a deposição do sólido iria dificultar a transferência de calor, o aumento da densidade de aletas, ao longo do dessublimador, faria com que essa transferência fosse facilitada, frente às resistências térmicas que iriam se criando com o decorrer do processo.

Na zona de entrada da mistura gasosa do processo, junto ao bocal de alimentação do dessublimador, definiu-se um conjunto com cinco aletas, nas restantes zonas esse número aumentava crescendo de seis, oito, dez, treze e dezessete. Essas zonas com diferentes número de aletas eram separadas por chicanas. As chicanas apresentavam a configuração como a da figura 4.9 seguinte:



Figura 4.9 - Desenho das chicanas

As aletas definidas para esse dessublimador foram fabricadas segundo o desenho apresentado na figura 4.10 seguinte.



Figura 4.10 - Desenho das aletas à escala piloto.

As aletas e as chicanas tinham as mesmas dimensões em suas zonas centrais, 115 mm, incluindo-se nessa dimensão a região por onde passava o feixe tubular; elas diferiam no fato das chicanas, que tinham como principal finalidade criar o fluxo transversal da mistura gasosa, possuírem mais uma seção de área que se estendia até junto da parede interna da carcaça do dessublimador, e que media 40 mm.

O feixe tubular era formado por um conjunto de oito tubos em U, com um arranjo entre eles de modo a ocuparem um menor espaço no interior do dessublimador deixando deste modo, disponível, um maior espaço no lado da carcaça, como mostrado na figura 4.6.

O acompanhamento das variações da temperatura ao longo do dessublimador foi considerado um parâmetro importante do processo. Para isto instalou-se ao longo do dessublimador piloto sete pontos de tomada de temperatura, em locais considerados estratégicos. Para tal, foram construídos poços na carcaça do equipamento, nos quais foram instalados termopares. As temperaturas nesses sete pontos foram medidas durante o processo de dessublimação do hexafluoreto de urânio. Os diferentes pontos para medição eram selecionados por uma chave seletora. Algumas das temperaturas coletadas durante alguns ensaios se mostram nos gráficos seguintes. Pela figura 4.11 vê-se a evolução da temperatura da mistura gasosa no interior do dessublimador piloto para diferentes tempos de operação do processo, e para uma temperatura do fluido refrigerante fixada em torno de - 40 °C. A mistura gasosa era alimentada no equipamento a uma temperatura de 90°C, evitando-se assim sua cristalização no interior das tubulações de processo.



Figura 4.11 - Temperaturas em 7 pontos do dessublimador piloto.

Nas figuras 4.12 a 4.16 seguintes, pode-se acompanhar a evolução da temperatura da mistura gasosa ao longo do dessublimador piloto para diferentes valores da temperatura do fluido de refrigeração, figurando nos gráficos os parâmetros resultantes de um ajuste exponencial decrescente.



Figura 4.12 Temperatura dos gases no dessublimador piloto: Tre= - 20 °C

As curvas foram traçadas nos gráficos verificando-se que um ajuste para os pontos experimentais obtidos obedeciam a um modelo de decaimento exponencial. Em cada um dos gráficos apresentam-se os resultados do ajuste exponencial obtido. As curvas foram ajustadas segundo uma lei exponencial decrescente segundo equação do tipo:

$$y = y_0 + A_1 e^{\left[-\left(\frac{x-x_0}{t_1}\right)\right]}$$
 (4.6.2.4-1)

As temperaturas da mistura gasosa ao longo do dessublimador apresentaram um comportamento segundo equação exponencial decrescente, que mais se adaptou aos dados experimentais obtidos na escala piloto.



Figura 4.13 - Temperatura dos gases no dessublimador piloto: Tre= - 25 °C.



Figura 4.14 - Temperatura dos gases no dessublimador piloto: Tre= - 35 °C



Figura 4.15 - Temperatura dos gases no dessublimador piloto: Tre= - 40 $^{\circ}$ C



Figura 4.16 - Temperatura dos gases no dessublimador piloto: Tre= -50 °C

A partir dos valores dos parâmetros A_1 , t_1 , e Y_0 , obtidos pelo ajuste das curvas, traçaram-se curvas com esses valores em função da temperatura do refrigerante à entrada do dessublimador e obtiveram-se comportamentos lineares, como se pode ver pelas figuras seguintes de 4.17 a 4.19.



Figura 4.17 - Parâmetro A_1 em função de T_{re}



Figura 4.18 - Parâmetro t_i em função de T_{re}



Figura 4.19 - Parâmetro Y₀ em função de T_{re}

Os parâmetros apresentaram um comportamento linear razoável dentro dos erros das medidas experimentais realizadas, onde as principais fontes de erros foram originadas pelas dificuldades de medição das temperaturas, já que se estava a trabalhar numa escala relativamente grande no tocante à dimensão dos equipamentos e com instrumentos de medição que por si originavam desvios nas leituras de mais ou menos 5%. Na tabela 4.1 mostram-se os valores dos parâmetros obtidos para cada uma das equações representativas das temperaturas do fluido refrigerante, enquanto que nas figuras seguintes traçam-se os valores calculados e os experimentais.

Tabela 4.1 - Valores dos diferentes parâmetros

$\Gamma re(^{0}C)$	\mathbf{Y}_{0}	A	t ₁
-20	-9,21	99,17	2,87
-25	-12,24	102,01	2,92
-35	-18,30	107,69	3,01
-40	-21,33	110,53	3,06
-50	-27,39	116,21	3,16



Figura 4.20 - Pontos calculados e experimentais para Tre=-20ºC



Figura 4.21 - Pontos calculados e experimentais para Tre=-25°C



Figura 4.22 - Pontos calculados e experimentais para Tre=-35ºC



Figura 4.23 - Pontos calculados e experimentais para Tre=-40ºC



Figura 4.24 - Pontos calculados e experimentais para Tre=-50°C

Comparando os dados experimentais com os dados obtidos a partir das equações exponenciais decrescentes, verificamos uma boa correspondência entre elas. Deste modo a equação 4.6.4.2-1 pode ser representada de um modo mais geral pela expressão:

$$T_g = (2,91+0,61T_r) + (87,81-0,57T_r)e^{[-x/(2,67-0,0097T_r)]} \quad (4.6.4.2-2)$$

Para se realizar as operações de descarga do hexafluoreto de urânio, na parte externa da carcaça, o dessublimador foi envolvido por um conjunto de seis resistências elétricas com as quais se aquecia o hexafluoreto de urânio, até levar toda sua massa ao estado líquido. Esse conjunto de resistências foi distribuído ao longo do equipamento, para que o aquecimento fosse o mais uniforme possível, e ficava ligado a um controlador de temperatura com o qual se mantinha o aquecimento da massa do hexafluoreto de urânio a uma temperatura por volta de 85 °C, e para um intervalo de tempo que se considerava suficiente para liquefação de todo o produto retido no trocador. O

aquecimento era realizado numa taxa que não originasse intensos gradientes térmicos, evitando-se assim pressões intensas e localizadas no interior da carcaça.

O dessublimador possuía um bocal de entrada da mistura gasosa localizado junto à zona de menor densidade de aletas e outro bocal de descarga dos gases residuais, junto à zona interna do cristalizador, com uma maior densidade das aletas. O trocador de calor foi instalado na posição horizontal e inclinado em cerca de 5 graus em relação ao plano horizontal e na direção do bocal de descarga do produto liqüefeito.

O dessublimador foi isolado externamente por uma camada de poliuretano expandido no local, de 2 polegadas de espessura, levando-se em conta que serviria tanto para as condições de aquecimento como de arrefecimento. Na sua parte mais externa o dessublimador foi revestido por uma chapa de aço carbono, que envolvia o isolamento térmico, evitando assim o contato da água, que viesse a se condensar sobre o trocador, o que poderia impregnar a camada do poliuretano. A formação de gelo e impregnação do isolamento térmico com água foi um dos problemas que surgiu quando da operação do dessublimador laboratorial. Como resultado disso especificou-se que a camada de isolante térmico fosse construída como a das tubulações de nitrogênio líquido, para evitar que a água penetrasse até junto do poliuretano.

4.6.2.5. - Sistema de refrigeração à escala piloto

No projeto conceitual do dessublimador piloto definiu-se que a circulação do fluido de refrigeração se daria pelo interior dos tubos. Como já se tinha encontrado dificuldade no modo de se refrigerar o dessublimador de bancada, o sistema de refrigeração da escala piloto foi montado e testado de diversas maneiras. Utilizaram-se diferentes fluidos de arrefecimento, e cada sistema montado apresentou suas vantagens e desvantagens as quais a seguir descrevem-se de maneira resumida.

Inicialmente o dessublimador piloto foi arrefecido com tricloroetileno cuja temperatura era diminuída "borbulhando" nesse composto nitrogênio líquido. Verificouse que o controle da temperatura do fluido que circulava pelo equipamento era muito difícil. O nitrogênio líquido ao "borbulhar" no tricloroetileno abaixava rapidamente sua temperatura, chegando mesmo a congelar as válvulas instaladas nas linhas, que deixavam de operar. Além disso, a bomba centrífuga que fazia a circulação do fluido apresentava vazamentos em seus elementos de vedação.

Numa outra etapa tentou-se o arrefecimento com o tricloroetileno, agora arrefecido com pequenos blocos de gelo seco. Ocorriam também casos de entupimento nas linhas de circulação do fluido refrigerante, causados pelos blocos de gelo.

Realizou-se também o arrefecimento do tricloroetileno circulando nitrogênio líquido por uma serpentina, não se dando o contato direto como nos casos anteriores, entre o fluido de arrefecimento e o agente com o qual se baixava a temperatura. Este sistema de arrefecimento apresentou melhor desempenho e podia-se com ele controlar de modo mais eficaz as temperaturas no vaso de Dewar que continha o tricloroetileno, e conseqüentemente obtinham-se temperaturas mais uniformes durante o processo de dessublimação.

Utilizou-se também como fluido de arrefecimento uma solução de etilenoglicol cuja temperatura era diminuída com blocos de gelo seco. A solução era preparada e colocada num vazo de Dewar, construído especialmente para essa finalidade. O gelo seco em pequenos blocos era posto numa pequena cesta e esta mergulhada na solução de etilenoglicol. Circulava-se a solução, quando atingia a temperatura desejada, pelo interior do feixe tubular do dessublimador piloto, com o auxílio de uma bomba centrífuga. A temperatura do líquido era medida pelo sistema de termoresistências.

Independente do modo como se arrefecia o trocador, o sistema de refrigeração originava entupimento junto à bomba, quando se atingiam baixas temperaturas,

normalmente por volta de -25 °C. Esses entupimentos causados por blocos de gelo, ocorriam à entrada da bomba centrífuga e nas linhas de processo que eram obstruídas por esses pequenos blocos de gelo.

Para se contornar o problema, instalou-se à entrada da bomba centrífuga um pequeno filtro, formado por uma tela metálica de malha fina. Para facilitar o manuseio do sistema, em casos de manutenção, frente a situações de entupimentos, a bomba centrífuga também foi envolvida por traço elétrico para seu aquecimento, que era ligado quando fosse necessário se fazerem reparos no sistema.

Durante a etapa de descarga do hexafluoreto de urânio contido no dessublimador piloto, quando se fazia o aquecimento do trocador, tornava-se importante o conhecimento da evolução das pressões no interior do equipamento. Utilizou-se um bocal, flangeado, no qual se instalou um manovacuômetro com escala de -1 a +6 atmosferas, para controle das pressões desenvolvidas no processo de descarga.

O acompanhamento da pressão também evitava que se praticasse operações de risco, que desenvolveriam pressões elevadas no interior do dessublimador, e que poderiam ocasionar ruptura do equipamento originando vazamento do produto. Além disso, o acompanhamento da pressão desenvolvida durante o aquecimento do UF_6 também era importante, para se levantar a evolução da pressão total no interior do trocador de calor. Como o hexafluoreto de urânio origina reações com elevação brusca da pressão quando posto em contato com compostos orgânicos, caso houvesse mistura com compostos orgânicos utilizados no sistema de refrigeração poderia originar situações de operações com elevação rápida de pressão. Ocorrendo um pequeno vazamento no dessublimador, que originasse mistura dos fluidos que circulavam pelos tubos do dessublimador ou pela carcaça, poder-se-ia identificá-lo de imediato acompanhando os valores da pressão.

Além disso toda a região da tubulação junto ao bocal em que se instalou o manovacuômetro foi aquecida, para que não houvesse entupimento por cristalização do produto nessa região, o que daria indicações falsas da pressão no interior do equipamento. Para esse aquecimento utilizaram-se lâmpadas de infravermelho.

O hexafluoreto de urânio produzido e armazenado no dessublimador era descarregado na forma líquida, para vasos especialmente construídos para armazenar o produto e nos quais o UF_6 era pesado e estocado, após ser registrado para controle no Livro de Salvaguardas.

4.6.3 - Escala semi-industrial

Após se adquirir conhecimento suficiente e se obterem os dados experimentais à escala piloto, analisou-se o comportamento desse trocador de calor de carcaça e tubos de modo criterioso, tanto no concernente às etapas de recolha do produto, como às etapas de sua descarga. Passou-se então para a fase de concepção do trocador que operaria numa escala semi-industrial e pudesse recolher o UF₆ de maneira eficaz, sem apresentar riscos de vazamento. O equipamento que foi projetado nesta escala tinha como objetivo consagrar os dados e as informações obtidas nas escalas anteriores, a partir das quais se faria o projeto conceitual do equipamento, levando em conta que nessa escala, semiindustrial, se operaria em três turnos de produção contínua e seria a esse nível de produção que se consagraria a tecnologia em estudo. Essas atividades tinham como principal objetivo considerar dominada a tecnologia, que seria representativa da escala industrial. A figura 4-25 apresenta o fluxograma conceitual das unidades de dessublimação primária, secundária e terciária, onde se representam as tubulações do sistema de refrigeração, da alimentação da mistura gasosa, as linhas dos gases efluentes, do sistema de alívio de pressão e dos sistemas de descarga do UF₆ líquido para os tanques de armazenagem, além do sistema de amostragem.

4.6.3.1 - Objetivo da escala semi-industrial

Pode-se dizer que o domínio de um conhecimento quer seja científico, quer seja tecnológico, só se dá a partir do instante em que os parâmetros em estudo se consagram em função de sua sistematicidade e de seu caracter significativo. Nesta linha de raciocínio devia-se fazer com que a instalação operasse por intervalos de tempo significativos que permitissem a emergência de quaisquer problemas operacionais a serem superados com as devidas correções, levantando-se desse modo, os dados tecnológicos necessários para o domínio do processo químico em estudo.

Era também na escala semi-industrial que se eliminariam os erros considerados grosseiros, durante a fase de elaboração do projeto do equipamento, e se detectariam os erros sistemáticos durante as operações contínuas da unidade semi-industrial.

A intenção era chegar à fase do projeto detalhado com todas, ou quase todas as dúvidas esclarecidas, para deste modo se definir o projeto detalhado do dessublimador industrial sem se cometerem erros que conduzissem a riscos ou ao indevido funcionamento do dessublimador.

O domínio da tecnologia de dessublimação/sublimação do hexafluoreto de urânio, era encarada como importante não só no que diz respeito a se conseguir projetar, construir e por a funcionar um equipamento capaz de realizar tais operações, mas no que concerne à segurança, já que as quantidades de produto que iriam ser manuseadas seriam grandes, centenas de quilos, tendo-se conhecimento de que não poderiam ocorrer vazamentos entre os diferentes compartimento do trocador de calor, ou vazamento do trocador para o meio ambiente. Considerava-se como operação de processo delicada a descarga dessa quantidade de hexafluoreto de urânio, sob a forma líquida, do dessublimador para o reservatório de estocagem final. Nessa etapa o trocador de calor funcionaria como um vaso submetido à pressão de vapor do composto e os riscos de vazamento aumentariam.



Figura 4.25 - Fluxograma das unidades de dessublimação semi-industrial

4.6.3.2 - Metodologia utilizada

Com os dados obtidos na escala anterior, escala piloto, e já tendo definido qual a concepção que seria dada ao trocador, tipo carcaça e tubos, elaborou-se o projeto conceitual de todo o sistema de dessublimação, ou seja, do dessublimador propriamente dito e da unidade de refrigeração/aquecimento que seria utilizada na escala semi-industrial.

A unidade de refrigeração utilizaria Freon® R-113, tanto como fluido refrigerante como fluido de aquecimento, e circularia pelo dessublimador, para arrefecê-lo e recolher o produto e também para descarregá-lo, por aquecimento desse mesmo fluido.

A partir de parâmetros operacionais do processo fez-se a simulação do processo de dessublimação analisando as condições operacionais que o equipamento desenvolvia quando de seu enchimento, ao longo de um certo tempo de operação, e ao longo de seu comprimento, buscando qual o comportamento das variáveis que consideramos importantes nesse processo.

4.6.3.3 - Seleção de materiais

Os materiais envolvidos na construção do dessublimador foram selecionados segundo critérios muito bem estudados e baseados, principalmente, em dados sobre a resistência à corrosão, que neste caso podia ser tanto do tipo químico ou eletroquímico e em parâmetros que diziam respeito aos aspectos de projeto mecânico, já que os equipamentos estariam submetidos a grandes variações de temperatura, desde temperaturas negativas, até temperaturas que podiam atingir cerca de 150 °C.

Quando da seleção dos materiais, considerou-se em primeiro lugar os aspectos de segurança, levando em conta todos os critérios do projeto químico, envolvidos na

produção do hexafluoreto de urânio. Deste modo, projetou-se o dessublimador considerando normas de construção mecânicas rígidas, que exigiam tanto das condições de construção mecânica, como da garantia dos materiais, critérios muito bem definidos e rigorosos, considerando que o equipamento iria trabalhar com fluidos classificados letais, seguindo-se o Código ASME Seção VIII.

Quanto à seleção de materiais, considerou-se que as condições de processo exigiam temperaturas que poderiam atingir 35 °C negativos para as condições de dessublimação do hexafluoreto de urânio, e 100 °C positivos para as condições de descarga. Assim, os materiais de construção do equipamento deveriam resistir a variações de temperatura extremas, tanto sob ponto de vista da corrosão, como das tensões mecânicas envolvidas, não originando vazamentos resultantes das dilatações e contrações sistemáticas que viessem a sofrer durante os ciclos de aquecimento e arrefecimentos, ou seja o equipamento deveria resistir a condições de fadiga.

Quanto ao feixe tubular, material da carcaça, e os materiais selecionados para a vedação das diferentes partes do equipamento, estabeleceram-se especificações rígidas assim como no controle desses materiais quando da fabricação do trocador. Para estes casos, exigiu-se que os materiais de construção fossem todos acompanhados dos respectivos certificados de qualidade emitidos pelos fabricantes. A qualidade das varetas de solda utilizadas também passaram por rigorosos critérios de qualidade.

Os tubos que constituíram o feixe tubular do dessublimador foram especialmente encomendados para essa construção, selecionados de modo a trabalharem com segurança para os intervalos de temperaturas definidos pelo processo.

A especificação elaborada, citava de modo explícito que os tubos deveriam ser sem costura, e exigiu-se os certificados de qualidade dos lotes de fabricação. Como os tubos, todos os materiais que foram utilizados na construção do equipamento tiveram os certificados de garantia de qualidade apresentados pelo fabricante, e certificados pelo inspetor designado para acompanhar a construção do dessublimador.

4.6.3.4.- Projeto do dessublimador semi-industrial

O projeto conceitual do dessublimador realizado nesta etapa da pesquisa deveria ser representativo do equipamento a ser projetado à escala industrial. Nesta fase o equipamento deveria apresentar uma capacidade de armazenamento do produto de várias centenas de quilos. Nos itens seguintes, descreveremos as partes constituintes da unidade de dessublimação do UF_6 e como foram concebidas, projetadas ao nível de detalhe, montadas e postas a funcionar.

3.6.3.5 - Sistema de refrigeração

O projeto conceitual do dessublimador semi-industrial deveria ser o mais detalhado possível e seria o adotado na escala industrial. Assim, o sistema de refrigeração que a seguir é descrito foi concebido, projetado e montado levando em conta definições da engenharia de processo, compatíveis com uma grande escala de produção.

O sistema de refrigeração era constituído por um circuito primário de refrigeração pelo qual circulava o Freon R-12®, que era comprimido e a seguir expandido numa válvula, originando temperaturas negativas de até -25 °C. Esse fluido do circuito primário trocava energia térmica com o fluido do circuito secundário de arrefecimento, que utilizava o Freon R-113 ®, e este deixava a unidade de processo denominada Casa de Máquinas, onde se localizam todos os serviços auxiliares, utilidades da planta semi-industrial e circulava pelos dessublimadores pelo interior dos tubos. Na figura 4-26 apresenta-se um fluxograma da unidade de refrigeração, que foi projetada, montada e posta em funcionamento para os serviços de aquecimento/arrefecimento dos dessublimadores. A unidade é formada por dois circuitos independentes de Freon, sendo uma projetada para atingir cerca de 25°C negativos e a outra para ser utilizada no sistema



de arrefecimento dos dessublimadores secundários e terciários, para circular o fluido refrigerante até 35º C negativos.

Figura 4.26 - Fluxograma conceitual da unidade de refrigeração semi-industrial

O hexafluoreto de urânio para ser descarregado sob a forma de um líquido, deveria ser aquecido, e deste modo fez-se necessário projetar uma unidade que foi denominada de Sistema de Freon Quente. Com esse sistema utilizou-se o mesmo fluido térmico, Freon R-113®, só que agora aquecido por sistema de resistências elétricas. Este aquecimento atingia temperatura de até 100 °C, circulando o fluido quente sob pressão pelo interior dos tubos do dessublimador a uma temperatura de cerca de 90 ºC. Na figura 4.27 mostra-se um esquema do arranjo das tubulações para a unidade semi-industrial de sublimação/dessublimação do hexafluoreto de urânio. Como se pode ver, os dessublimadores são interligados pelas tubulações de alimentação da mistura gasosa, que se localizam na parte superior dos trocadores de calor, para desse modo se conseguir uma flexibilidade operacional. Com tal arranjo, enquanto um dessublimador está recebendo o fluxo da mistura gasosa recolhendo o hexafluoreto de urânio, o outro dessublimador pode estar sendo aquecido para descarga do produto no estado líquido, e um terceiro dessublimador também está sendo arrefecido pelo sistema de Freon, e pode ser utilizado como equipamento de recolha do UF₆ em caso de surgir alguma anormalidade operacional da planta química. Este último dessublimador opera na realidade como um equipamento de segurança da unidade de dessublimação. Na parte superior dos dessublimadores encontram-se também as tubulações de alívio de pressão, onde foram instalados selos de ruptura e manômetros, e as tubulações dos gases residuais, que ainda contêm hexafluoreto de urânio, flúor e nitrogênio e que são encaminhados para a unidade do reator de pratos, que irá alimentar a unidade de dessublimação secundária e terciária. O sistema de aquecimento era totalmente independente do sistema de fluido frio, pelo menos até à saída da Casa de Máguinas. As tubulações que se dirigiam aos dessublimadores até os bocais de entrada e de saída dos fluidos quente e frio, eram as mesmas, apenas selecionando qual dos fluidos circularia pelo trocador frente às operações de descarga ou recolha do hexafluoreto de urânio. Como se projetou três dessublimadores que podiam operar em paralelo, o arranjo de tubulações também levava em conta a hipótese de dois trocadores estarem operando em simultâneo com arrefecimento e o terceiro sendo aquecido para descarga do produto.



Figura 4.27 - Desenho esquemático do arranjo de tubulações da unidade semi-industrial

Após o acúmulo do sólido no interior do dessublimador, na quantidade máxima prevista em projeto, o equipamento era transformado num vaso fechado, isolando-se todas as linhas de processo, por fechamento das válvulas de alimentação e de descarga do produto, ou quaisquer outros bocais nele existentes. A única válvula de processo mantida aberta era a válvula situada num bocal onde se instalou um manovacuômetro, e que nos daria a indicação da evolução da pressão durante o aquecimento da massa de hexafluoreto de urânio. Ao iniciarmos o aquecimento do dessublimador, o UF_6 inicialmente se sublimava passando do estado sólido para o gasoso, com sua pressão de vapor aumentado à medida que a sublimação progredia. Devido às características do seu ponto triplo, atingia-se uma pressão no interior do equipamento tal que, o composto começava a liqüefazer-se sob sua pressão de vapor. O aquecimento durava algumas horas, dependendo da quantidade de produto acumulada, até que todo o hexafluoreto de urânio se encontrasse no estado líquido, iniciando-se então sua descarga para os reservatórios de estocagem do produto. As diferentes passagens de sólido para vapor, e posteriormente para líquido podem ser acompanhadas pelo diagrama de fases do hexafluoreto de urânio.

Nas linhas que alimentavam Freon® aos dessublimadores instalaram-se rotâmetros, com os quais se podia conhecer a quantidade de fluido refrigerante alimentado aos trocadores. As temperaturas foram medidas por termoresistências colocadas em pontos adequados do processo.

4.6.3.6 - Projeto detalhado do dessublimador

O Projeto Detalhado do equipamento obedeceu às normas de construção relativas a trocadores de calor, e nos quais se podia manipular substâncias de alto risco. Recorreuse ao TEMA Classe R e ao ASME Seção VIII Divisão 1, levando-se em conta as condições do processo de sublimação do hexafluoreto de urânio para sua recolha, e suas condições de evaporação/liquefação para descarga.

Descrever-se-á de maneira resumida o desenvolvimento do projeto deste trocador de calor especial, e se detalhará os pontos considerados importantes para o processo químico em questão e os cuidados tomados para fabricação do equipamento submetido a condições severas do processo químico.

4.6.3.7 - Aspectos de segurança

A garantia da qualidade de fabricação do dessublimador seguiu os padrões existentes, e para se assegurar de que o exigido estava sendo cumprido pelo fabricante, este apresentou, quando da entrega do equipamento, um documento intitulado Memorial Descritivo da Construção do Cristalizador Primário de Hexafluoreto de Urânio. Esse documento continha todos os critérios de construção que o proponente à fabricação do equipamento seguiu, assim como os documentos resultantes das diversas inspeções realizadas pelo inspetor nomeado. Os testes exigidos para liberação do equipamento para uso no processo foram:

- teste de pressão,
- teste sob vácuo,
- radiografia total das soldas,
- testes de líquido penetrante em todos os cordões de solda,
- teste Sharpy para os materiais de construção,
- análise química de todos os materiais, metálicos ou poliméricos que foram utilizados na fabricação do equipamento.

Quando da entrega do equipamento exigiu-se requisitos que a seguir se listam:

- Análise química de traços de compostos que poderiam estar presentes no interior do equipamento, quando da sua entrega, garantido-se assim que o equipamento estava isento de resíduos oriundos dos processos de fabricação, tais como graxas, óleos e gorduras. Deste modo, o dessublimador devia estar isento de qualquer tipo de contaminação interna, não possuindo quaisquer vestígios de produtos de corrosão, óxidos metálicos, ou restos de solda, tanto no lado dos tubos como no da carcaça.
- Inspeção visual do equipamento, e inspeção dimensional de modo a se elaborar o documento "as built".

Apresentação do "Data Book", sua análise e aprovação, para aceitação do equipamento.

Exigiu-se também para o equipamento pintura anticorrosiva em suas partes externas, sobre o isolamento térmico. O isolamento térmico seria feito segundo o especificado, ou seja, poliuretano expandido no local.

4.6.3.8 - Instalação e início de operação

Após realização de todos testes, testemunhados e certificados pelo inspetor, com o equipamento ainda no fabricante, e antes mesmo da liberação para entrega do equipamento, foram analisados e aprovados os laudos dos testes, o trocador foi aceito e transportado até às dependências da área do processo, segundo as solicitações contidas na especificação técnica. O projeto para sua instalação no processo exigiu alguns detalhes que a seguir são descritos. No projeto de equipamentos em que o hexafluoreto de urânio é manipulado mudando de sólido para líquido ou de líquido para sólido, o cálculo da quantidade máxima de produto a ser armazenado deve levar em conta um fator compreendido entre 60 a 65% de material acumulado em peso, devido à grande variação de volume que apresenta o UF₆ ao passar de sólido para líquido. O equipamento apresentava uma capacidade máxima de armazenamento de sólido que não podia ser ultrapassada em hipótese alguma, devido ao risco de ruptura hidráulica do trocador, em caso de sobre-enchimento. Para isso instalou-se um sistema de pesagem constituído por um conjunto de 3 células de carga, colocadas nos pontos de suporte do trocador, pés do equipamento, com as quais se media e controlava o enchimento do equipamento durante toda etapa de produção do UF₆. Estas células de carga apresentavam como resultado, em painel, a soma do peso total do produto. Na figura 4.28 apresenta-se o esquema de montagem das células de carga no dessublimador à escala semi-industrial.



Figura 4.28 - Esquema de montagem das células de carga

Os fluidos de refrigeração e de aquecimento tinham suas vazões controladas por conjuntos de válvulas controladoras de fluxo e rotâmetros. Com esses sistemas se garantia a carga térmica que devia ser fornecida aos dessublimadores, tanto durante a fase de aquecimento da massa do UF_6 , como durante a fase de recolha pela circulação do fluido frio.

4.6.3.9 - Concepção final do dessublimador

Os dados apresentados a seguir foram os concebidos para que se elaborasse o projeto detalhado do dessublimador de hexafluoreto de urânio e que seriam os mesmos a considerar para o projeto de um equipamento à escala industrial. Para dados de projeto se considerou:

- pressão máxima nos tubos: 12 atm;
- pressão máxima na carcaça: 10 atm;
- pressão máxima no cabeçote: 12 atm;
- pressão mínima: vácuo absoluto;
- temperatura máxima na carcaça: 150 °C;
- temperatura mínima na carcaça: 40 °C;
- temperatura mínima nos tubos 40 °C;
- temperatura mínima no cabeçote: 40 °C.

Basicamente, o dessublimador foi definido como sendo um trocador de calor de carcaça e tubos, cuja concepção interna diferia de um trocador convencional por apresentar inovações que já foram citadas ao longo do trabalho e se descrevem com mais detalhe a seguir.

O projeto conceitual do dessublimador à escala semi-industrial envolveu etapas desde sua simulação quanto a operação, finalizando com o projeto definitivo como a seguir se descreve. O dessublimador foi concebido como sendo um trocador de calor de casco e tubos com seis passes pelos quais a mistura gasosa fluía perpendicularmente ao eixo dos tubos. Os passes eram constituídos por chicanas e aletas, sendo as chicanas consideradas no cálculo como aletas, para se levar em conta suas áreas de troca térmica. Deste modo definiu-se o trocador formado por tubos de diâmetro externo de 17,2 mm, e a área da aleta igual a 0,252 m², não se descontando os furos, e tendo uma espessura igual a 0,794 mm. A mistura gasosa era alimentada pelo bocal junto ao qual o primeiro passe apresentava uma distância entre chicanas e que não continha aletas. Essa mesma configuração ocorria nos passes de números dois, três e quatro, existindo aletas só nos passes cinco e seis.

O equipamento tinha numa de suas extremidades o cabeçote removível, podendose sacar de seu interior todo o feixe tubular, para casos de manutenção. A remoção seria facilitada pela colocação de "patins" soldados na base do feixe tubular. O feixe tubular era constituído por seis seções diferentes de conjuntos de tubos, possuindo comprimentos e números diferentes de tubos. Esses seis conjuntos de feixes de tubos foram projetados para se levar em conta a variação dos perfis de concentração e de temperatura que ocorriam ao longo de todo o equipamento, ou seja, ao longo de toda a trajetória dos gases do processo, facilitando-se assim as condições de troca de energia e matéria, já que surgiram resistências adicionais, à medida que o sólido se depositava sobre os tubos do trocador. Os seis feixes tubulares eram constituídos por diferente número de tubos, sendo suportados por chicanas com diferentes furações. Os feixes tubulares foram construídos com tubos em forma de U, com 2 passes pela carcaça, e sustentados por suportes perfurados de modo fixar os tubos, como se mostra na figura 4.29 seguinte.



Figura 4.29 - Disposição do feixe tubular

Os suportes que funcionavam como chicanas eram em número de dois e as chicanas eram em número de três e foram projetadas de maneira a que o fluxo de gases atravessasse transversalmente os feixes de tubos. Esses suportes assentavam na parte inferior da carcaça e possuíam em sua base os "patins" para deslizamento de todo o conjunto, em caso de remoção do feixe tubular quando fossem necessárias operações de manutenção. Devido a existirem densidades diferentes de tubos ao longo do trocador, as cinco placas de fixação do feixe tubular tiveram furações diferentes, para poderem sustentar diferentes números de tubos.

Os tubos apresentavam disposição especial e eram fixados na placa do trocador seguindo um projeto especial, de modo a deixarem livre o maior espaço possível para armazenamento do sólido. Ao longo dos feixes tubulares existiam dois conjuntos de aletas, dispostas transversalmente aos tubos, distanciadas igualmente para cada empacotamento e cujo espaçamento entre elas era diferenciado para os diferentes conjuntos. Na realidade, essa concepção veio do dessublimador projetado na etapa da escala piloto. O espaçamento e a densidade das aletas foram projetadas para que houvesse compensação nos gradientes de concentração e temperatura ao longo do equipamento. O

processo de dessublimação dá-se de modo a que o hexafluoreto de urânio se deposite sobre os tubos do dessublimador, e este composto deixa a corrente gasosa, com sua concentração na corrente global de gases diminuindo. Assim, as forças motrizes impulsionadoras da deposição do sólido, se apresentam cada vez mais fracas, à medida que o processo avança. Ao longo do trocador a taxa de dessublimação apresenta tendência a diminuir. Para que se originem gradientes de concentração e de temperatura mais eficazes, e como conseqüência se originem deposições contínuas e eficientes, numa taxa compatível com as vazões do processo, o binário densidade de tubos e densidade de aletas foi alterado ao longo do dessublimador. Na figura 4.30 mostra-se o desenho de uma chicana do dessublimador semi-industrial.



Figura 4.30 - Projeto de chicana do dessublimador semi-industrial.

Na parte inferior da carcaça do dessublimador, foi construído um feixe tubular independente dos demais. Tinha por finalidade garantir o processo de liquefação do produto que por ventura se localizasse na parte inferior do trocador quando do processo de descarga. Esse arranjo de tubos garantia que não ocorressem entupimentos originados por blocos sólidos de hexafluoreto de urânio que durante a descarga do composto, agora na forma líquida, levassem ao entupimento do bocal de descarga. Esses blocos poderiam ser liqüefeitos de modo mais fácil e mais rápido, com o uso desse feixe tubular adicional, colocado na base interna da carcaça. A fixação do tubos no espelho do trocador foi feita por soldagem e brasagem para se minimizarem os riscos de ocorrerem misturas dos fluidos de aquecimento ou de arrefecimento com o fluido do processo. A placa de fixação do feixe tubular, era uma peça importante na construção do equipamento. O fluido de processo sendo o hexafluoreto de urânio e o do sistema de refrigeração sendo o Freon 113® não poderiam ser misturados em hipótese alguma; essa mistura podia levar a elevações instantâneas da pressão no interior do trocador.

Os bocais do equipamento foram dispostos da seguinte maneira: as entradas e saídas de gases foram todo situados na parte superior do equipamento, enquanto que o bocal de descarga do hexafluoreto de urânio, líquido, se localizava na parte inferior da carcaça. Todos os bocais possuíam serpentinas de aquecimento construídas externamente, por onde circulava o fluido quente. Deste modo se evitaria entupimentos por solidificação do hexafluoreto de urânio em zonas frias do equipamento que se situariam junto aos flanges dos bocais de entrada ou de sadia do cristalizador. Na figura 4.31 mostra-se um detalhe de construção de um bocal do dessublimador, possuindo aquecimento por serpentina.



Figura 4.31 - Bocais do dessublimador com aquecimento por serpentina

Considerando que o dessublimador seria transformado num como um vaso de pressão, durante a operação de descarga do UF_{6} , por fechamento de suas válvulas, o trocador foi projetado tendo um bocal de descarga de gases, para uma linha de alívio, que seria acionada em caso de emergência. Os gases numa emergência, frente a condições de elevações repentinas da pressão, fluiriam por essa linha e seriam absorvidos num sistema de colunas de absorção, contendo bicos de pulverização por onde circulava uma solução para absorção do hexafluoreto de urânio.
Na linha de alívio, foi colocada uma válvula de abertura e fechamento a distância, juntamente com um selo de ruptura, devidamente projetado para valores compatíveis da pressão. Com essa montagem se pretendia minimizar as ondas de choque causadas por uma elevação brusca da pressão no interior do equipamento, no caso de haver mistura dos fluidos, que pudesse originar ruptura do trocador. A pressão interna do dessublimador era acompanhada por um manovacuômetro especial, cuja especificação resultou das condições do processo, levando em conta a pressão definida para o selo de ruptura. As linhas de entrada e saída do dessublimador, tanto para gases, como para a descarga do líquido, possuíam válvulas de atuação a distância, para que os fluxos fossem interrompidos em situações que chamaremos de não rotineiras.

CAPÍTULO V

ANÁLISE OPERACIONAL E SIMULAÇÃO

5.1 - Introdução

Este capítulo será dedicado à análise operacional do dessublimador levando em conta a simulação do equipamento e analisando-se seu comportamento frente a algumas variáveis de processo previamente selecionadas.

5.2 - Resultados experimentais

Analisar-se-ão os resultados obtidos quanto ao comportamento do dessublimador, projetado, construído e posto a funcionar no processo de dessublimação para as diferentes escalas, bancada, piloto e semi-industrial.

5.2.1 - Dados do processo à escala de bancada

A experiência mostrou que os dados obtidos nos ensaios realizados indicavam baixa eficiência no processo de dessublimação para a retenção do hexafluoreto de urânio para esse tipo de trocador de calor, de forma tubular, apresentando o processo apresentando por volta de 60 % de rendimento no tocante a retenção do produto. A quantidade final de UF₆ que passava pelo sistema formado pelos três dessublimadores colocados em série não era grande, mas quando analisados individualmente, principalmente o primeiro e segundo dessublimadores a retenção não era nada próximo da desejada para se poder pensar numa construção semelhante à escala piloto. Ficou claro que a concepção dos dessublimadores deveria ser bem diferente da utilizada nessa escala, ou seja, deveria ser mais complexa do que a simples forma tubular.

Outro parâmetro importante era a temperatura de arrefecimento do sistema, sendo inicialmente utilizada por volta de 80 °C negativos. Ao se trabalhar nesse nível de

temperatura, o sistema formado pelo conjunto dos três dessublimadores entupia com facilidade, principalmente na região dos bocais de entrada e/ou saída dos gases, ou na base do tubo pescador, onde ocorria um acúmulo excessivo de material cristalizado. Perante esses entupimentos tinha-se que parar a operação de produção do hexafluoreto de urânio, iniciando-se operações de aquecimento dos dessublimadores para desobstrução do sistema. Nessas operações a quantidade de hexafluoreto de urânio gasoso que passava pelo sistema sem sofrer dessublimação era difícil de ser quantificada, devido à freqüência com que os entupimentos ocorriam.

5.2.2 - Dados do processo à escala piloto

Levando em conta as dificuldades operacionais vividas quando da operação dos dessublimadores à escala de bancada, e após se analisarem as vantagens e desvantagens obtidas dos ensaios realizados frente aos diferentes métodos de arrefecimento do dessublimador piloto, concluiu-se que o mais conveniente seria utilizar apenas solução aquosa de etilenoglicol à uma temperatura inicial de -9 °C iniciando-se a adição de gelo seco ao sistema. Definiu-se que a circulação do etilenoglicol pelo interior do dessublimador deveria apresentar temperaturas compreendidas entre -15 °C e - 25 °C. Para melhor controle da temperatura, durante o processo de dessublimação, construiu-se uma linha de "by-pass" controlando e medindo por rotâmetro as vazões do fluido que devia circular pelo trocador, para se atingir as temperaturas previamente estabelecidas. Deste modo as temperaturas mantinham-se dentro de uma faixa cuja estabilidade foi considerada adequada ao processo de dessublimação do hexafluoreto de urânio. Numa etapa posterior da pesquisa, o sistema de arrefecimento constituído por etilenoglicol e gelo seco foi substituído por um sistema cujas baixas temperaturas do processo eram obtidas com auxílio de nitrogênio líquido.

O arrefecimento feito com auxílio de nitrogênio líquido fez com que o processo apresentasse temperaturas mais uniformes e estáveis, e deste modo, pode-se manter as operações de recolha do hexafluoreto de urânio em regimes de maior estabilidade por intervalos de tempo maiores, tornando as operações de produção e recolha do produto mais contínuas. Além disso o controle da temperatura tornou-se mais estável. Os entupimentos causados por pequenos blocos de gelo seco mesmo que adicionado lentamente ao processo, e que acompanhavam o etilenoglicol pelas tubulações até a entrada da bomba centrífuga deixaram de ocorrer.

5.2.3 - Dados do processo à escala semi-industrial

A Unidade de Produção de Hexafluoreto de Urânio operava com uma vazão real por volta de 12 kg/h, podendo a mistura gasosa ser alimentada no trocador de calor num intervalo de temperaturas compreendidas entre 80 °C 130 °C. Esse intervalo de temperaturas era conseguido, porque à saída do reator tubular de produção de UF_6 projetou-se um trocador de calor de tubos concêntricos, e com o qual se podia variar a temperatura da corrente gasosa contendo o UF_6 . Essa mistura gasosa era formada por hexafluoreto de urânio, flúor e nitrogênio na composição média que a seguir se apresenta: * hexafluoreto de urânio:75%

* flúor:10%

nitrogênio:15%

O flúor originado na unidade de geração de flúor, no interior das células eletroquímicas, acompanhava o nitrogênio em toda extensão do processo até o sistema de absorção. O nitrogênio era introduzido no sistema como gás inerte de arraste ou como gás inerte utilizado no sistema de vedação de partes mecânicas rotativas, tais como eixos de sistemas de agitação, fazendo assim, parte da composição da mistura gasosa à entrada do dessublimador. Juntamente com o flúor, à saída dos reatores eletroquímicos, gerava-se uma determinada quantidade de fluoreto de hidrogênio, que era separado do flúor em condensadores criogênicos que trabalhavam a temperaturas por volta de 80 °C negativos.

5.3 - Resultados obtidos pela simulação

Analisar-se-ão nesta parte do trabalho os resultados obtidos a partir da execução do programa desenvolvido conjuntamente por Greco, Baldo e Oliveira (1985) que simula o comportamento do trocador de calor frente a diversas condições de processo que foram definidas neste presente estudo. Assim, estabeleceram-se gamas de valores para variáveis de processo como se segue:

- temperatura do gás à entrada do equipamento: 90 °C, 100 °C, 120 °C e 130 °C
- temperatura do fluido refrigerante:-10 °C, -15 °C, -20 °C, -30 °C
- concentração do hexafluoreto na corrente gasosa: 50 %, 60 %, 75 % e 80%
- pressão de processo: 0,55 atm.; 0,76 atm.; 0,855 atm.; 0,95 atm.

Os intervalos para cada uma dessas variáveis forma definidos para serem compatíveis com as condições operacionais da unidade de produção. Obteve-se por simulação o comportamento desses parâmetros, no interior e ao longo do dessublimador, frente a variações do tempo de operação.

5.3.1 - Condições operacionais e quantidade de sólido obtido.

A partir do programa de simulação foi calculada a quantidade de hexafluoreto de urânio obtida para as diferentes condições de processo e que foram representadas em gráficos como função do tempo de operação, obtiveram-se um conjunto de gráficos que a seguir se apresenta e se comenta. Considera-se inicialmente diferentes condições de operação em que a mistura gasosa à entrada do dessublimador pode variar dentro de uma gama de 90 °C e 130 °C. Se por um lado a temperatura dos gases à entrada do dessublimador não pode apresentar valores menores que 90 °C, devido ao risco de se originar entupimento, com cristalização do hexafluoreto de urânio nos bocais de entrada do trocador de calor, que impediria a continuidade do processo de recolha do produto, por outro lado, temperaturas superiores a 130 °C deviam ser evitadas para não se originarem taxas de corrosão elevadas no dessublimador, ou tensões mecânicas que pudessem levar o

dessublimador a condições de fadiga. Com a finalidade de se manter a temperatura dos gases à entrada do trocador de calor num gama estreita de temperaturas, já que a reação de produção do UF_6 é extremamente exotérmica, e como o meio reagente podia atingir temperaturas por volta de 1000 °C, projetou-se e se instalou um trocador de calor tubular à saída do reator de produção do UF_6 e com o qual se podia manter a temperatura da mistura gasosa numa faixa ideal de operação. A figura 5.1 mostra o acúmulo de hexafluoreto de urânio na forma sólida com o tempo de operação da dessublimação, para diferentes temperaturas da mistura gasosa de alimentação.



Figura 5.1 - Acúmulo de UF₆ para diferentes temperaturas de alimentação

Analisando o comportamento da variação da temperatura dos gases à entrada do dessublimador, frente a quantidade de hexafluoreto de urânio acumulado, vê-se que ela não origina uma diferença significativa na quantidade de produto acumulado no trocador, na gama de temperaturas em estudo.

Na fase de projeto da unidade de refrigeração, se considerou que ela deveria ter uma capacidade tal que se pudesse variar a temperatura do fluido de refrigeração numa faixa que fosse permitido um levantamento de dados experimentais de modo flexível sobre o comportamento da unidade de dessublimação. Assim a temperatura do fluido refrigerante que circulava pelo trocador de calor podia adquirir valores entre 10 °C e 30 °C negativos. A figura 5.2 mostra os valores da quantidade de UF6 sólido acumulado no interior do dessublimador para diferentes temperaturas do fluido de refrigeração, frente a tempos de operação da unidade.



Figura 5.2 - Acúmulo de UF₆ para diferentes temperaturas de refrigeração.

Vê-se neste caso que a influência da temperatura do fluido de refrigeração é pequena não alterando a quantidade retida de produto.

Além de se estudar a quantidade de sólido acumulada com a temperatura do gás à entrada do dessublimador e com a temperatura do fluido refrigerante, traçaram-se curvas da quantidade do produto retida no dessublimador frente à diversos valores da pressão do processo e frente a concentração do hexafluoreto de urânio à entrada do equipamento. Essas curvas estão representadas respectivamente nas figuras 5.3 e 5.4.



Figura 5.3 - Quantidade de UF_6 retida para diferentes pressões de processo.



Figura 5.4 - Quantidade de UF₆ retida para diferentes concentrações à entrada

Dentre as variáveis de processo aqui definidas e estudadas, a que apresentou uma grande variação sobre a quantidade de hexafluoreto depositado por dessublimação sobre os tubos do trocador foi a concentração do produto na corrente gasosa à entrada do equipamento. Observa-se que à medida que a concentração do hexafluoreto de urânio aumenta, a quantidade recolhida no dessublimador aumenta significativamente.

Nos itens seguintes apresentam-se gráficos cujas curvas representam a variação dos seguintes parâmetros de projeto:

- perfil da temperatura da mistura gasosa no interior do dessublimador;
- variação do sólido acumulado,
- variação da concentração do UF₆ na mistura gasosa,
- variação do espaço vazio disponível para o fluxo gasoso,
- variação do coeficiente médio de transferência de calor da fase gasosa,
- percentagem da formação de névoas,
- variação da viscosidade da fase gasosa,
- variação do número de Prandtl,
- variação do número de Reynolds,
- variação da capacidade calorífica da fase gasosa.

As variáveis de processo são:

- composição da mistura gasosa de alimentação,
- pressão de operação,
- temperatura da mistura gasosa de alimentação,
- temperatura do fluido de refrigeração.

As diferentes curvas apresentadas em cada gráfico representam os diferentes períodos de operação da unidade de dessublimação que vão até sete horas, variando de hora em hora, obedecendo a seguinte simbologia nos gráficos que se seguem.

■ 1 hora ● 2 horas ▲ 3 horas ▼4 horas \Box 5 horas × 6 horas + 7 horas

5.3.2.- Perfis de temperatura

Neste item apresentam-se conjuntos de gráficos que representam a variação da temperatura da mistura gasosa no interior do dessublimador.

Os gráficos apresentados neste trabalho são de dois tipos:

- gráficos que levam em conta todo o comprimento do dessublimador, visualizando-se o comportamento dos parâmetros em estudo ao longo de todo o seu comprimento total de 3,0 metros;
- gráficos que levam em conta um trecho do comprimento inicial do dessublimador, correspondendo a 1,20 metros contados a partir do bocal de alimentação da mistura gasosa, e que no regime de arranque apresenta-se como o trecho significativo do trocador.

Inicialmente se considera como se dá a variação da temperatura da mistura gasosa contendo hexafluoreto de urânio ao longo do dessublimador, frente as mudanças das variáveis de processo. Para o caso de diferentes concentrações da mistura gasosa à entrada do equipamento traçaram-se as curvas que se apresentam a seguir, considerando-se todo o comprimento do trocador de calor.

Pela análise das figuras 5.5 e 5.6 verifica-se que elas diferem quanto à dispersão dos dados em relação ao tempo de operação. Nota-se que para maior valor da concentração do UF₆ à entrada do processo, originam-se perfis de temperatura com valores mais dispersos para tempos diferentes de operação e para x=0.8 apresenta um nítido ponto de inflexão. À medida que a concentração do produto sublimável aumenta na mistura gasosa na corrente de alimentação, o ponto de inflexão se desloca em direção ao interior do trocador de calor e torna-se mais acentuado, enquanto os perfis de temperatura para os maiores valores de concentração tornam-se menos acentuados ao longo da direção longitudinal do trocador.



Figura 5.5 - Variação da temperatura ao longo do dessublimador e para x=0,50.



Figura 5.6 - Variação da temperatura ao longo do dessublimador e para x=0,80.

Sendo a concentração do UF_6 mantida na alimentação em 50%, a inflexão dá-se à distância de por volta de 25 centímetros do bocal de entrada da mistura gasosa. No caso de se usar 80% de hexafluoreto de urânio na corrente de entrada, a inflexão passa a se situar a cerca de 60 centímetros da entrada.

Pela análise das figuras 5.7 e 5.8 vê-se que a estabilidade das curvas dá-se numa região mais próxima da entrada para o caso de baixa concentração do hexafluoreto de

urânio na alimentação, ou seja o patamar inferior das curvas forma-se de modo mais nítido e mais próximo do bocal de alimentação para menores valores de x_{ce} .



Figura 5.7 - Variação da temperatura do gás para x=0,50



Figura 5.8 - Variação da temperatura do gás para x=0,80.

Ao se comparar a temperatura da mistura gasosa no interior do dessublimador para um mesmo valor do tempo de operação e para uma mesma distância em seu interior, ou seja para as mesmas condições das figuras 5.7 e 5.8 essa temperatura é menor para o caso de mais baixa concentração do hexafluoreto de urânio à entrada do equipamento na corrente gasosa. Por exemplo, para uma distância de 20 centímetros no interior do trocador, a partir do bocal de entrada e para uma fração molar x=0,5, a temperatura da mistura gasosa é cerca de 36 $^{\circ}$ C, para um tempo de operação de 7 horas, enquanto que para x=0,8 a temperatura é 58 $^{\circ}$ C.

Como durante o processo de dessublimação o hexafluoreto de urânio origina sobre a área de troca térmica uma camada sólida que atua como isolante térmico, é natural que quanto maior for a espessura dessa camada, com maior dificuldade se dará a troca térmica. Deste modo, para um mesmo ponto do dessublimador, e mesmo tempo de operação, considerando todas as variáveis do processo iguais, com exceção da concentração do UF_6 à entrada, verifica-se que concentrações maiores darão origem a camadas de sólido mais espessas, que por sua vez, irão originar trocas térmicas menos eficazes e, conseqüentemente temperatura mais elevada para um determinado ponto no interior da mistura gasosa, já que a temperatura da alimentação é mantida constante. A inflexão nos gráficos representa o ponto de saturação. O programa desenvolvido por Greco e outros (1985) a partir de informações do processo, está elaborado de tal modo que a temperatura da mistura gasosa atingindo um valor menor que a temperatura de saturação, os cálculos passam a ser realizados segundo as condições de saturação, com a concentração do composto sublimável sendo calculada levando em conta a equação de pressão de vapor, como foi mostrado anteriormente.

Levando-se em conta a variação da pressão do processo, mantendo-se constantes as outras variáveis obtém-se as figuras 5.9 e 5.10, mostrando como evolui o comportamento da temperatura da mistura gasosa no interior do dessublimador.



Figura 5.9 - Variação da temperatura do gás para p=0,55 atm



Figura 5.10 - Variação da temperatura do gás para p=0,95 atm.

Nas figuras 5.9 e 5.10 onde são mantidas constantes a temperatura de refrigeração, a temperatura da mistura gasosa de alimentação e a concentração do hexafluoreto de urânio à entrada do equipamento, variando-se a pressão do processo, verifica-se que a influência da pressão neste caso é pequena, notando-se um ligeiro deslocamento do ponto de inflexão para o interior do trocador para valores menores da pressão. Nota-se que para

uma pressão mais elevada, a temperatura da mistura gasosa num determinado ponto no interior do dessublimador é ligeiramente maior, quando comparada com a temperatura obtida nesse ponto para o caso de um menor valor da pressão de processo.

Uma pressão maior do processo, dará origem a melhores condições para a dessublimação, resultando numa camada ligeiramente mais espessa de sólido depositado, que conduzirá a temperaturas ligeiramente mais elevadas quando comparadas com o caso de pressões do processo menores.

Além das alterações nos valores da concentração da mistura gasosa à entrada do processo e da pressão, a temperatura de entrada da mistura gasosa pode sofrer alterações. As figuras 5.11 e 5.12, representam esse comportamento, mostrando a influência da temperatura da mistura gasosa da alimentação sobre o perfil de temperatura da mistura, no interior do dessublimador, no sentido longitudinal.

À medida que a temperatura de alimentação aumenta, os perfis se tornam mais acentuados e o ponto de inflexão se desloca para locais mais distantes do bocal de entrada da mistura gasosa.



Figura 5.11 - Variação da temperatura do gás para Tge = 90° C



Figura 5.12- Variação da temperatura do gás para $T_{ge} = 130^{\circ}C$

Mantendo-se constantes as variáveis, com exceção da temperatura do fluido de refrigeração, obtêm-se as figuras 5.13 e 5.14, considerando valores de -10 °C e -30 C° para o fluido refrigerante.



Figura 5.13 - Variação da temperatura do gás para $T_{re} = -10^{\circ}C$



Figura 5.14 - Variação da temperatura do gás para $T_{re} = -30^{\circ}C$

As curvas obtidas e representadas nas figuras 5.13 e 5.14 mostram pequenas alterações apresentadas pelos perfis de temperatura. Ao se utilizar menor temperatura de refrigeração, o processo de dessublimação desenvolve-se com mais eficácia, já que a força motriz do sistema de transferência de matéria é causada tanto pelo gradiente de

concentrações como pelo gradiente de temperatura. Comparando as figuras 5.13 e 5.14 vê-se que para temperatura de refrigeração menor, para um mesmo valor do comprimento do trocador e, para mesmo tempo de operação, a temperatura da mistura gasosa é ligeiramente menor. Considerando todo o conjunto das figuras que representam os perfis da temperatura da mistura de gases ao longo do dessublimador, o parâmetro que mais altera os perfis é a concentração do hexafluoreto de urânio na corrente de alimentação, o que parece ser coerente com o conjunto das figuras e curvas apresentadas no item 5.3.1, figuras 5.1 a 5.4.

5.3.3 - Variação da espessura do sólido

Um dos parâmetros importantes deste processo é a espessura da camada de sólido que cresce sobre as paredes frias do trocador de calor. O hexafluoreto de urânio é alimentado no dessublimador e ao contatar com as paredes frias do seu feixe tubular, sofre dessublimação, passando diretamente do estado gasoso para o estado sólido. Esse processo origina uma camada sólida, porosa, que aumenta de espessura sobre as paredes das áreas de troca térmica à medida que o processo progride no tempo. As figuras seguintes mostradas ao longo deste item expõem como se dá a variação da espessura da camada sólida no interior do dessublimador.

Assim, pelas figuras 5.15 e 5.16 pode-se acompanhar a variação da espessura da camada de sólido ao longo de todo o dessublimador. Pelo comportamento das curvas constata-se que a concentração do hexafluoreto de urânio após a entrada no trocador se altera de modo significativo, com os perfis de acúmulo de sólido variando intensamente. Considere-se inicialmente o comportamento das curvas de uma das figuras, por exemplo a figura 5.16. Nota-se que para cada valor do tempo de operação as curvas atingem um valor máximo, e decrescem a seguir, no sentido longitudinal do trocador, com os valores máximo de acúmulo de sólido se deslocando para posições mais internas do trocador, indicando o preenchimento do espaço vazio deixado. As curvas representativas do acúmulo do hexafluoreto de urânio diferem de modo significativo quando se altera a

composição da mistura gasosa à entrada do dessublimador. A retenção do hexafluoreto de urânio dá-se de modo mais intenso para maiores concentrações do produto na corrente de alimentação.



Figura 5.15 - Variação da espessura do sólido para todo dessublimador e x=0,50



Figura 5.16 - Variação da espessura do sólido para todo dessublimador e x=0,80

Note-se que a tendência da camada atingir espessura nula situa-se no local mais próximo da entrada do trocador, quando a concentração da alimentação apresenta o valor menor, ou seja para x=0,50 uma espessura nula é atingida por volta de 90 cm da entrada do trocador, enquanto que para x=0,80 esse local esta a uma distância de cerca de 110 cm.

As figuras 5.17 e 5.18 representam os perfis de acúmulo de sólidos para um comprimento máximo de 120 centímetros do dessublimador. Estas figuras correspondem a um detalhamento das anteriores, figuras 5.15 e 5.16. Nelas vê-se mais claramente a diferença no comportamento dos perfis quando se altera a concentração do hexafluoreto de urânio gasoso na corrente de alimentação. Os perfis de sólido acumulado atingem um valor máximo para sua espessura, e a medida que o tempo de operação transcorre com esse máximo se deslocando no sentido longitudinal no interior do dessublimador, indicando que o equipamento vai se enchendo com o produto. Ao aumentar o valor da concentração do hexafluoreto de urânio à entrada, os valores máximos são maiores, indicando camadas sólidas de maiores espessuras, indicando uma maior quantidade de sólido acumulado no dessublimador.

Algumas observações devem ser feitas. Comparando as figuras 5.17 e 5.18 vê-se que para baixos valores da concentração à entrada, os perfis apresentam valores constantes e próximos de zero para um comprimento de cerca de 60 centímetros no interior do trocador. No caso da concentração aumentar para um valor de 80% em UF₆ a camada de sólido tende a valores constantes para um comprimento por volta de 110 centímetros. Analisando as figuras 5.17 e 5.18 conclui-se que à medida que a concentração do hexafluoreto de urânio aumenta na mistura gasosa da alimentação, e considerando para a análise uma determinada seção do trocador, a espessura do sólido é maior para valores maiores da concentração na alimentação. Além disso, à medida que a corrente gasosa percorre o trocador, a concentração do hexafluoreto de urânio vai diminuindo devido à deposição no estado sólido, e o fato do composto deixar a corrente gasosa a espessura da camada diminui após atingir um valor máximo. Constata-se ainda que com o aumento da concentração do composto sublimável na corrente de alimentação, a camada de sólido fica mais extensa ao longo do trocador. Assim, quando a concentração do produto à entrada é baixa, a zona de feixe tubular do trocador de calor que não

apresenta deposição de sólido está mais próxima da entrada quando comparada com o caso de maior concentração do hexafluoreto de urânio à entrada.



Figura 5.17 - Variação da espessura do sólido para x=0,50.



Figura 5.18 - Variação da espessura de sólido para x=0,80.

Nas figuras 5.19 e 5.20 seguintes acompanhar-se-á o comportamento da espessura da camada sólida com a variação da pressão de processo.

A figura 5.19 apresenta os perfis do sólido frente a uma pressão de 0,55 atmosferas. Estes perfis mostram pequenas diferenças quando comparados aos da figura 5.20.



Figura 5.19 - Variação da espessura do sólido para p=0,55 atm



Figura 5.20 - Variação da espessura do sólido para p=0,95 atm.

Comparando os gráficos que representam a espessura do sólido depositado frente às variações da pressão do processo, conclui-se que à medida que se opera o equipamento submetido a uma pressão mais elevada, a espessura da camada de sólido acumulado sobre o feixe tubular aumenta, considerando uma mesma seção transversal do dessublimador. Deste modo pressões menores de processo podem conduzir à formação de névoas com mais facilidade, e o processo de retenção do UF₆ não se dá com eficiência.

Os valores máximos da espessura da camada de UF_6 sólido são maiores para o caso em que a pressão do processo é maior, quando se considera a comparação dos gráficos para os mesmos valores do tempo de operação e mesma posição longitudinal no trocador de calor.

A temperatura da mistura gasosa de alimentação pode variar numa faixa de 90 °C a 130 °C e pelas figuras 5.21 e 5.22 vê-se qual a influência dessa variação sobre a espessura da camada sólida de hexafluoreto de urânio acumulado.

Sabendo que a temperatura da mistura gasosa que é alimentada ao dessublimador, vem do reator de produção do hexafluoreto de urânio, e pode oscilar entre 90 °C e 130 °C traçaram-se os gráficos representados pelas figuras 5.21 e 5.22.

Constata-se que a variação desse parâmetro do processo não origina grandes alterações na camada de sólido depositado. O aumento da temperatura da alimentação causa um deslocamento dos valores máximos das curvas, a tempo constante, para pontos mais internos do equipamento, ou seja a quantidade de sólido acumulado aumenta com a diminuição da temperatura dos gases à entrada, mantendo-se constante a composição dos gases à entrada, a temperatura do fluido de refrigeração e a pressão do processo.



Figura 5.21 - Variação da espessura do sólido para $T_{ge} = 90$ °C.



Figura 5.22 - Variação da espessura do sólido para $T_{ge} = 130$ °C.

Além da temperatura da alimentação pode-se variar também a temperatura do fluido de refrigeração, entre -10 °C, e -30 °C. As figuras 5.23 e 5.24 mostram o perfil do sólido acumulado frente às variações da temperatura de refrigeração. À medida que se estabelece um gradiente térmico maior entre a corrente gasosa contendo o hexafluoreto de urânio e a corrente do fluido de refrigeração, a retenção do UF₆ deve ocorrer com maior

eficácia, já que as forças motrizes dos processos de transferência aumentam de intensidade com o aumento do gradiente térmico.



Figura 5.23 - Variação da espessura do sólido para $T_{re} = -10$ °C.



Figura 5.24 - Variação da espessura do sólido para $T_{re} = -30$ ^oC.

Na medida em que se trabalha com temperaturas de arrefecimento mais baixas, por exemplo, passando de -10 °C para -30 °C, os processo de transferência de energia térmica e de matéria devem se tornar mais eficazes. A força motriz desses processos, ou seja, o gradiente de temperatura, é mais intenso, e a retenção do produto por dessublimação acaba também por o ser. Nota-se pelas figuras 5.23 e 5.24 que os valores máximos da espessura se encontram mais próximos da entrada de alimentação do dessublimador, para menores valores da temperatura do fluido de arrefecimento, o que indica num melhor aproveitamento do equipamento no que diz respeito a recolha do hexafluoreto de urânio, o que demonstra também que o hexafluoreto de urânio se depositou com mais eficiência para temperaturas menores. Além disso, os valores da espessura de sólido são maiores para menores temperaturas do fluido de refrigeração.

5.3.4 - Perfis de concentrações na mistura gasosa

A mistura gasosa que deixa o reator de produção do hexafluoreto de urânio, é alimentada à um filtro de mangas metálicas, para retenção do particulado sólido, o tetrafluoreto de urânio que não reagiu. A seguir a mistura gasosa é encaminhada ao dessublimador, onde entra em contato com as paredes frias desse trocador, ocorrendo diminuição da temperatura da corrente gasosa até que se atinge a temperatura de saturação e o composto sublimável começa a se depositar como um sólido.

Vê-se assim que ao longo do trocador de calor a composição da mistura gasosa varia em composição e temperatura. Os gráficos seguintes representam a variação da composição do hexafluoreto de urânio na fase gasosa, ao longo do comprimento do dessublimador frente as variáveis de processo selecionadas para estudo.

Na medida em que o hexafluoreto de urânio se deposita sobre o feixe tubular, a sua concentração na fase gasosa vai diminuindo, com os gases não condensáveis, o nitrogênio e o flúor aumentando suas concentrações relativas.

Atingida a condição de saturação o hexafluoreto de urânio passa para o estado sólido tanto pelo processo de troca térmica junto a parede como por dessublimação no seio da mistura gasosa dando origem à névoas, enquanto que os gases não condensáveis permanecem na fase gasosa e dirigem-se para o bocal de saída dos gases residuais, depois de percorrerem toda extensão do dessublimador. São então encaminhados para um sistema de absorção de gases residuais especialmente projetado para essa operação.

Ao se atingir na fase gasosa condições tais que originem a dessublimação do hexafluoreto de urânio, os sólidos formados no seio da mistura podem fluir ao longo do trocador de calor sendo encaminhados para sua saída acompanhando os inertes do processo, e diminuindo assim o rendimento do processo de retenção do produto sólido. Neste caso, perde-se parte do hexafluoreto de urânio formado no seio do gás.

As figuras 5.25 e 5.26 representam a variação da composição da mistura gasosa no interior do dessublimador, ao longo de todo o seu comprimento, para valores diferentes da concentração do hexafluoreto de urânio.

Na figura 5.26 nota-se que as curvas representativas de diferentes tempos de operação, se afastam entre si, numa proporção maior que na figura 5.25. Para uma fração molar de 0,5 à entrada as curvas se estabilizam para um comprimento do dessublimador por volta de 90 centímetros, enquanto que para x=0,80 isto ocorre a cerca de 120 centímetros, dando um a indicação clara de um empobrecimento da corrente gasosa em UF_6 mais rápida para baixas concentrações desse produto à entrada do trocador.



Figura 5.25 - Concentração do UF₆ para todo dessublimador para x=0,50



Figura 5.26 - Concentração do UF₆ para todo dessublimador para x=0,80

A figuras 5.27 e 5.28 mostram como se altera a composição do hexafluoreto de urânio na corrente gasosa no interior do dessublimador, frente a variações da composição

da alimentação, agora para o trecho inicial do dessublimador, para um comprimento máximo de 120 centímetros.



Figura 5.27 - Variação da concentração do UF₆ para x=0,50.



Figura 5.28 - Variação da concentração do UF₆ para x=0,80.

Nota-se que para baixas concentrações do hexafluoreto de urânio os perfis são mais achatados. A concentração do hexafluoreto de urânio na corrente gasosa no interior do dessublimador diminui mais rapidamente quando as concentrações desse composto na alimentação são baixas. Verifica-se também que para diferentes tempos de operação as alterações da concentração do hexafluoreto de urânio são mais intensas, para alimentações mais concentradas no produto. Note-se que a medida que o tempo de operação transcorre, as curvas se tornam mais próximas, isto é, em qualquer dos gráficos anteriores, as curvas representativas de 1 e 2 horas de operação estão mais distanciadas entre si do que as curvas representativas de 6 e 7 horas, indicando que a concentração do UF_6 na fase gasosa tende a ser constante com o passar do tempo, para o mesmo comprimento. Além disso, a forma das curvas também muda. No caso de x=0,5 e para a primeira hora de operação, a diminuição da fração molar do UF_6 na fase gasosa apresenta um comportamento muito próximo do linear, enquanto que frações molares maiores e para tempos de operação mais elevados as curvas inicialmente tendem a um patamar superior para os trechos iniciais do trocador de calor.

As figuras 5.29 e 5.30 mostram a variação da composição do UF_6 na corrente gasosa frente a alterações da pressão do processo. A pressão de processo varia numa faixa estreita, devido a imposições do próprio processo, que opera sob leve depressão para se equilibrar as pressões da unidade de geração de flúor e de produção do UF_6 . Por análise das curvas constante das figuras 5.29 e 5.30 nota-se que a pressão, dentre da gama estabelecida, não leva a mudanças significativas na concentração do UF_6 no interior do dessublimador.

Comparando as figuras 5.29 e 5.30 constata-se que para pressões de processo maiores, a quantidade do hexafluoreto de urânio presente na fase gasosa no interior do trocador é menor, indicando que uma maior quantidade de produto deixou a fase gasosa e foi formar a camada sólida, significando que a retenção do produto se deu ligeiramente melhor para maiores valores da pressão de operação. As comparações devem sempre levar em conta as mesmas condições operacionais e uma mesma seção do equipamento, analisando-se pontos das curvas a tempos constantes.



Figura 5.29 - Variação da concentração do UF₆ para p=0,55 atm.



Figura 5.30 - Variação da concentração do UF₆ para p=0,95 atm.

É natural que diferentes temperaturas da mistura de gases que alimenta o dessublimador devam alterar o comportamento do desempenho do equipamento, já que os valores das forças motrizes para as transferências de calor e massa se modificam. As figuras 5.31 e 5.32 mostram as alterações dos valores da composição da fase gasosa ao

longo do trocador de calor, para dois casos de diferentes temperaturas da alimentação gasosa.



Figura 5.31 - Variação da concentração do UF₆ para $T_{ge} = 90$ ^oC.



Figura 5.32 - Variação da concentração do UF₆ para $T_{ge} = 130$ °C.

Analisando o comportamento das curvas constantes das figuras 5.31 e 5.32 verifica-se que para valores menores da temperatura dos gases à entrada do processo de dessublimação, a concentração do hexafluoreto de urânio na corrente gasosa no interior do equipamento é menor. Apesar dos perfis serem semelhantes a eficiência de recolha do UF_6 é levemente maior para menores valores da temperatura de alimentação. À medida que o tempo de operação transcorre, vê-se que para um mesmo ponto no interior do trocador de calor a quantidade de hexafluoreto de urânio aumenta na corrente gasosa, o que vem comprovar que ao se depositar o sólido atua como um isolante térmico dificultando a sua deposição posterior nesse local, e como conseqüência, a concentração do UF_6 na fase gasosa tende a aumentar com o passar do tempo de operação do sistema de dessublimação. Como nos casos anteriores, as curvas se aproximam, entre si, à medida que o tempo de operação transcorre.

Nas figuras 5.33 e 5.34 seguintes analisar-se-á o comportamento da concentração do hexafluoreto na corrente gasosa, frente às variações das temperaturas do fluido de refrigeração.

Considerando que uma das forças motrizes presentes no processo de transferência de energia e matéria, no caso da dessublimação do hexafluoreto de urânio, é o gradiente de temperaturas, é natural se esperar que alterações que venham a ser feitas nas temperaturas dos fluidos de refrigeração originem modificações no comportamento do processo. Pelas figuras 5.33 e 5.34 vê-se que apesar do efeito da variação da temperatura do fluido refrigerante ser pequena sobre a alteração da composição dos gases no interior do dessublimador, nota-se que para menores temperaturas do fluido de refrigeração a concentração do UF₆ na corrente gasosa é menor, indicando uma dessublimação maior do produto. De modo semelhante, como nos casos anteriores, considerando uma mesma seção transversal do trocador, à medida que se opera o dessublimador no transcorrer do tempo, a presença do hexafluoreto de urânio na mistura gasosa tende a aumentar.



Figura 5.33 - Variação da concentração do UF₆ para T_{re} = - 10 °C.



Figura 5.34 - Variação da concentração do UF₆ para T_{re} =- 30 °C.

5.3.5 - Variação do espaço para fluxo

No processo de dessublimação, o hexafluoreto de urânio é alimentado numa certa concentração conhecida, juntamente com o nitrogênio e flúor, e percorrem os espaços

vazios existentes entre as diversas partes do feixe tubular e da carcaça, fluindo por entre as chicanas e aletas do trocador. O programa de simulação considera os canais para fluxo da mistura gasosa existentes entre as chicanas do trocador.

Ao sofrer a dessublimação, o hexafluoreto de urânio se solidifica preenchendo os espaços vazios existentes. À medida que a camada de sólido cresce esses espaços vão diminuindo, com o produto preenchendo-os, havendo mesmo a possibilidade de ocorrer entupimento por ocorrer cristalização de tal modo a não deixar caminho livre para os gases fluírem. As curvas mostradas nas figuras representam como se dá o preenchimento desses espaços livres por onde fluem os gases frente as variáveis definidas para o estudo.

Pelas figuras 5.35 e 5.36 vê-se que na região de entrada dos gases no equipamento, onde ocorre a deposição do UF_6 há uma variação nítida do espaço disponível para fluxo da mistura gasosa, enquanto na região além de 100 centímetros do bocal de alimentação o espaço é constante e característico para cada região com um número característico de tubos.

À medida que o número de tubos aumenta, ocupando maior área no interior da carcaça, o espaço disponível para o fluxo da mistura gasosa diminui. No início, com a deposição do hexafluoreto de urânio o espaço para o fluxo de gases diminui. À medida que o tempo de operação transcorre, vê-se por exemplo, pela figura 5.35 que o espaço, para uma hora de operação e para um local próximo ao bocal de alimentação, passa de cerca de 6,8 centímetros para 3,2 centímetros, transcorridas sete horas de operação.



Figura 5.35 - Espaço livre para fluxo para x=0,50 ao longo do dessublimador.



Figura 5.36 - Espaço livre para fluxo para x=0,80 ao longo do trocador.

Analisando o comportamento das curvas das figuras 5.37 e 5.38 vê-se que para concentrações menores do UF₆ à entrada, a abertura para o fluxo permanece maior, para mesmos tempos de operação, o que implica que a camada de sólido formada é menor.


Figura 5.37 - Espaço livre para fluxo para x=0,50



Figura 5.38 - Espaço livre para fluxo para x=0,80

À medida que a concentração do UF_6 aumenta na alimentação, as camadas de sólido sobre os tubos tornam-se de maior espessura, com o espaço disponível para fluxo atingindo valores menores, originando os mínimos das curvas. Nota-se também que esses mínimos também estão em pontos mais internos do dessublimador, indicando que a

"frente de dessublimação" caminha para o interior do equipamento. Analisando as curvas das figuras 5.17 e 5.18, que representam como se dá o crescimento da camada sólida, e as curvas das figuras 5.37 e 5.38, nota-se que os valores máximos da espessura do sólido correspondem aos valores mínimos da abertura para o fluxo da mistura gasosa.

Analisar-se-á em seguida a influência da pressão considerando as figuras 5.39 e 5.40.



Figura 5.39 - Espaço livre para fluxo para p=0,55 atm.



Figura 5.40 - Espaço livre para fluxo para p=0,95 atm.

Se por um lado a concentração do hexafluoreto de urânio à entrada do dessublimador faz com que a abertura disponível para o fluxo da mistura gasosa varie com alguma intensidade, o mesmo não acontece com as mudanças na pressão do processo, notando-se pequenas alterações no comportamento das curvas.

Vê-se que à medida que a pressão de operação aumenta, os valores mínimos das curvas adquirem menores valores para o espaço disponível ao fluxo, quando comparados com as curvas de menores pressões, mais uma vez tendo-se a indicação que pressões do processo maiores levam a uma melhor deposição do hexafluoreto de urânio, o que pode ser comprovado também pelas figuras 5.19 e 5.20.

Nota-se também ligeira alteração nas curvas da abertura para fluxo, quando se alteram as temperaturas da mistura gasosa de alimentação, o que se pode acompanhar pelas figuras 5.41 e 5.42.

Neste caso, da variação da abertura para fluxo frente as variações temperatura da alimentação da mistura gasosa, vê-se que temperaturas menores da alimentação gasosa, obtêm-se valores menores da abertura e mais próximos do bocal de entrada. Para o intervalo de temperatura da alimentação aqui estudado, 90 °C e 130 °C, nota-se que para as primeiras horas de operação, o comportamento das curvas da temperatura da mistura gasosa pouco se altera. A medida que o sólido cresce, acentua-se o efeito da temperatura da alimentação sobre os valores para as aberturas de fluxo dos gases.



Figura 5.41 - Espaço livre para fluxo para $T_{ge} = 90$ °C.



Figura 5.42 - Espaço livre para fluxo para $T_{ge} = 130$ °C.

As figuras 5.43 e 5.44 representam as variações do valor da abertura para o fluxo considerando diferentes temperaturas do fluido de refrigeração. As curvas mostram que a com a diminuição da temperatura do sistema de frio origina valores menores para o espaço disponível para o fluxo da fase gasosa. Ao utilizarmos temperaturas mais baixas do fluido de refrigeração, a dessublimação dá-se com maior eficácia, preenchendo os

espaços vazios no interior do trocador de modo mais eficiente. Pelas figuras 5.23 e 5.24 pode-se acompanhar o crescimento da espessura da camada sólida, no mesmo sentido que a diminuição da abertura para fluxo, ou seja no sentido da menor temperatura do fluido refrigerante.



Figura 5.43 - Espaço livre para fluxo para $T_{re} = -10$ °C.



Figura 5.44 - Espaço livre para fluxo para $T_{re} = -30$ °C.

Nas figuras 5.45 e 5.46 representam-se as variações do coeficiente médio de transferência de calor da fase gasosa, ao longo de todo o comprimento do dessublimador, para as condições explicitadas nas figuras, e para diferentes tempos de operação.



Figura 5.45 - Coeficiente de transferência de calor para dessublimador e x=0,50



Figura 5.46 - Coeficiente de transferência de calor para dessublimador e x=0,80.

Nota-se que a mudança do número de tubos constituintes do feixe tubular do trocador, acarreta alterações nos coeficientes de troca térmica. As variações são nítidas

quando sobre os tubos já se depositou a camada sólida. Pelas figuras constata-se que ao longo de todo o comprimento do dessublimador existe pequenas variações do coeficiente de transferência de calor, coincidentes com as regiões de mudança no número de tubos constituintes do feixe tubular. Nas regiões onde o sólido se depositou de modo significativo, o coeficiente de transferência de calor varia intensamente.

Pelas figuras 5.47 e 5.48 vê-se com mais detalhe as variações do coeficiente de transferência de calor para diferentes valores da concentração do hexafluoreto de urânio à entrada do dessublimador.

As variações apresentadas pelo coeficiente de transferência de calor frente às mudanças na concentração do UF_6 na alimentação são significativas. Em primeiro lugar nota-se que o valor do coeficiente aumenta com o aumento da concentração à entrada. Apesar do comportamento das curvas se alterar, a região de inflexão das curvas permanece no mesmo ponto do cristalizador, e coincide com a mudança no número de tubos de 28 para 43 tubos.

Considere-se a análise das curvas em duas etapas: uma para pequenos tempos de operação, de uma a cinco horas e numa outra etapa de seis a sete horas para transcurso da dessublimação. Considerando a concentração do hexafluoreto de urânio igual a 50% na alimentação, as curvas apresentam diminuição dos valores do coeficiente para qualquer tempo de operação, até sete horas. Quando se alimenta o dessublimador com 80% em hexafluoreto de urânio, os valores do coeficiente diminuem até 5 horas de dessublimação. Para seis e sete horas, os valores aumentam até o ponto em que os gases entram numa nova etapa de configuração interna do trocador, ou seja, o local onde há mudança no número de tubos.



Figura 5.47 - Variação do coeficiente de transferência de calor para x=0,50



Figura 5.48 - Variação do coeficiente de transferência de calor para x=0,80.

Verifica-se que as curvas se estabilizam para um comprimento do dessublimador por volta de 35 centímetros para o caso de x=0,50, enquanto que para x=0,80 a estabilização ocorre por volta de 90 centímetros a partir do bocal de entrada da mistura gasosa. Isto indica que ao se aumentar a concentração do UF₆ à entrada do dessublimador, a sua deposição se dará a uma distância maior, para mesmo o tempo de operação, quando comparada com o caso de menor concentração do hexafluoreto à entrada.

Comparando as curvas das figuras 5.49 e 5.50 nota-se que o coeficiente de transferência de calor apresenta pequenas mudanças com as variações da pressão do processo.



Figura 5.49 - Variação do coeficiente de transferência de calor para p=0,55 atm



Figura 5.50 - Variação do coeficiente de transferência de calor para p=0,95 atm.

Com o aumento da pressão de processo de 0,55 atm para 0,95 atm o coeficiente apresenta valores máximos maiores. Para pressões maiores, os patamares finais das curvas se estabilizam a valores ligeiramente menores do comprimento do dessublimador.

As figuras 5.51 e 5.52 mostram o comportamento do coeficiente de transferência de calor frente a variações de temperatura da mistura gasosa à entrada do dessublimador.



Figura 5.51 - Variação do coeficiente de transferência de calor para $T_{ge} = 90$ °C.



Figura 5.52 - Variação do coeficiente de transferência de calor para $T_{ge} = 130$ °C.

Nota-se que o coeficiente de transferência de calor se altera, apresentando valores máximos ligeiramente maiores para menores temperaturas da mistura gasosa.

Nas figuras 5.53 e 5.54, considera-se as variações da temperatura do fluido refrigerante, de 10 °C negativos para 30 °C negativos.



Figura 5.53 - Variação do coeficiente de transferência de calor para $T_{re} = -10$ °C.



Figura 5.54 - Variação do coeficiente de transferência de calor para $T_{re} = -30$ °C.

Vê-se que o coeficiente de transferência de calor sofre alterações significativas. Quanto menor for a temperatura, maior são as alterações apresentadas pelo coeficiente. Para temperaturas menores do fluido de refrigeração, à medida que o tempo de operação transcorre, o coeficiente médio de transferência de calor da fase gasosa aumenta para valores máximos maiores, do que no caso da temperatura de refrigeração mais elevada.

5.3.7 - Formação de névoas

Durante o processo de dessublimação atingem-se condições tais que ainda na corrente gasosa formam-se flocos de sólidos de hexafluoreto de urânio. Como foi salientado anteriormente, a camada sólida atingirá uma espessura máxima e a evolução do processo de dessublimação faz com que a temperatura da mistura gasosa tenda para a temperatura de saturação. A série de figuras que a seguir se apresenta mostra como evolui essa formação de névoas frente às diferentes condições do processo de dessublimação do UF_{6} .

Por análise das figuras 5.55 e 5.56 conclui-se que o ponto no interior do dessublimador a partir do qual se dá a formação de névoas do hexafluoreto de urânio depende das condições operacionais e, neste caso em análise, das condições da concentração do composto na corrente gasosa de alimentação do equipamento. Para o caso de utilizarmos uma concentração de 50% de hexafluoreto na alimentação, as névoas começam a se formar por volta de 25 centímetros do bocal de entrada. Ao se aumentar a concentração do UF₆ na alimentação, a formação delas começa a cerca de 60 centímetros. Com o aumento da concentração do composto sublimável na corrente de alimentação, as espessuras da camada de hexafluoreto de urânio sólido que se obtêm são maiores, considerando-se os mesmos tempos de operação e os mesmo local no interior do dessublimador. Isto conduz a uma condutividade térmica pontual no sólido menor, devido à presença de uma camada sólida de maior espessura, e que dificulta que o processo atinja as condições de saturação à medida que o tempo de operação transcorre. Isto faz com que se inicie a formação de névoas de hexafluoreto de urânio sólido, na corrente gasosa.



Figura 5.55 - Formação de névoas para todo dessublimador e x=0,50.



Figura 5.56 - Formação de névoas para todo dessublimador e x=0,80

As figuras 5.57 e 5.58 mostram a fração de névoas formadas para os dois valores da concentração do UF_6 na alimentação, e para um comprimento do dessublimador de 120 centímetros. Vê-se, pelas figuras, que as curvas se deslocaram num sentido mais interno do trocador quando do início do processo de formação das névoas, para o caso

onde o valor da concentração é maior. Além disso, com a concentração do hexafluoreto de urânio da alimentação aumentando, as névoas iniciam sua formação, com o transcorrer do tempo de operação em pontos mais distanciados do bocal de alimentação do dessublimador.



Figura 5.57 - Formação de névoas no dessublimador para x=0,50.



Figura 5.58 - Formação de névoas no dessublimador para x=0,80.

Para condições diferentes de pressão do processo, veja-se figuras 5.59 e 5.60, nota-se que à medida que a pressão aumenta, a formação de névoas se inicia em pontos mais próximos do bocal de alimentação, sendo sua quantidade formada menor com aumentos da pressão.



Figura 5.59 - Formação de névoas no dessublimador para p=0,55 atm.



Figura 5.60 - Formação de névoas no dessublimador para p=0,95.

Uma formação de névoas em locais mais internos do dessublimador significa que se formam com maior dificuldade, dando origem a uma menor perda de produto em direção ao sistema de absorção dos gases residuais do processo.

As figuras 5.61 e 5.62 representam as condições de formação de névoas de UF_6 para condições diferentes de temperatura da corrente gasosa de alimentação.



Figura 5.61 - Formação de névoas no dessublimador para $T_{ge} = 90$ °C.



Figura 5.62 - Formação de névoas no dessublimador para $T_{ge} = 130$ °C.

As curvas indicam que os valores máximos atingidos para a quantidade de névoa formada, praticamente é a mesma, em ambos os casos para um período de sete horas de operação.

Além disso, para uma temperatura de entrada da mistura gasosa igual a 90 °C o início de formação das névoas ocorre a cerca de 48 centímetros da entrada, enquanto que para uma temperatura dos gases igual a 130 °C o início se dá a cerca de 55 centímetros, para uma hora de operação. Isto indica que a formação de névoas dá-se num ponto mais distante da entrada da alimentação da mistura gasosa.

Se por um lado a temperatura dos gases à entrada do equipamento não altera de modo significativo a formação de névoas de hexafluoreto de urânio, o mesmo se não dá com a temperatura do fluido de refrigeração, figuras 5.63 e 5.64.

As figuras 5.63 e 5.64 mostram as curvas de formação das névoas, frente à variação das temperaturas de refrigeração, de -10 °C a -30 °C. As curvas mudam seus pontos iniciais de formação de névoas de posição no sentido longitudinal do trocador de calor e atingem condições apresentando pontos máximos significativamente diferentes.

Ao se operar o sistema de dessublimação com temperaturas mais baixas a formação de névoas se dá mais próxima do bocal de entrada da alimentação. Analisando as figuras 5.23 e 5.24, vê-se que a utilização de menores temperaturas do fluido de refrigeração conduz a maiores espessuras da camada sólida. Na saturação T_w é igual a T_{sat} e o sólido atuando como isolante térmico, e com a camada sólida crescendo chega-se a condição de saturação de modo rápido.

Assim, para temperaturas criogênicas mais baixas, a fração de névoas é maior. Ao se utilizar -10 °C atinge-se uma formação máxima de névoas por volta de 25%, enquanto



Figura 5.63 - Formação de névoas no dessublimador para $T_{re} = -10$ °C.



Figura 5.64 - Formação de névoas no dessublimador para $T_{re} = -30$ °C.

5.3.8 - Variação da viscosidade do gás

A dessublimação do hexafluoreto de urânio no interior do equipamento dá-se a partir da transferência desse composto da fase gasosa, passando a constituir uma fase sólida na superfície dos tubos do dessublimador. Deste modo a fase gasosa que é inicialmente formada por hexafluoreto de urânio, nitrogênio e flúor, à medida que percorre o interior do dessublimador vai empobrecendo em UF₆. A viscosidade da mistura gasosa se altera ao longo do trocador de calor, o que pode ser acompanhado pelas figuras.

As figuras 5.65 e 5.66 mostram a variação da viscosidade da mistura gasosa ao longo de todo o dessublimador. Inicialmente há uma grande variação da viscosidade, que corresponde à zona no trocador em que o hexafluoreto deixa a fase gasosa, depositandose sobre o feixe tubular. À medida que o fluxo de gases percorre o interior do trocador e torna-se "rico" em N₂ e F₂, a viscosidade tende para um valor constante, para uma mistura gasosa contendo N₂, F₂ e algum UF₆.

Considerando num mesmo gráfico as diferentes curvas que representam tempos de operação diferentes, de uma a sete horas, verifica-se que a viscosidade do gás diminui com o tempo de operação, até se atingir um ponto de inflexão. Neste ponto de inflexão a viscosidade apresenta um patamar, de valor constante, e logo a seguir inversão de posição das curvas com o tempo de operação. Neste ponto, parte do hexafluoreto de urânio já depositado como sólido se integra novamente ao gás.



Figura 5.65 - Variação da viscosidade do gás para todo dessublimador e x=0,50



Figura 5.66 - Variação da viscosidade ao longo do dessublimador para x=0,80.

Na parte final das figuras 5.67 e 5.68 nota-se que para menores concentrações do hexafluoreto à entrada do processo de dessublimação a viscosidade tende a um patamar final para locais mais próximos do bocal de alimentação da mistura gasosa. Isto indica que a transferência do composto sublimável da fase gasosa para a superfície dos tubos é realizada de modo mais eficaz, empobrecendo em UF₆ a corrente da mistura gasosa de

modo mais rápido, que ocorre para menor extensão do trocador. Uma menor concentração de hexafluoreto de urânio na alimentação, ao contatar com as regiões frias irá empobrecer mais rapidamente em UF_6 à fase gasosa, do que uma alimentação que fosse mais rica no produto.



Figura 5.67 - Variação da viscosidade do gás para x=0,50



Figura 5.68 - Variação da viscosidade do gás para x=0,80

Pode-se considerar que a pressão do processo não altera o comportamento da curva representativa da viscosidade ao longo do trocador de calor, figuras 5.69 e 5.70.



Figura 5.69 - Variação da viscosidade do gás para p=0,55 atm.



Figura 5.70 - Variação da viscosidade do gás para p=0,95 atm.

Quando a fase gasosa entra no dessublimador com temperatura mais elevada, a dessublimação do UF_6 não é tão eficaz quando comparada para o caso da temperatura do

gás à entrada mais baixa e deste modo obtêm-se condições de formação da camada sólida com maior dificuldade. Concentrações diferentes de UF_6 nos gases levará a valores diferentes da viscosidade.

As figuras 5.71 e 5.72 mostram a variação da viscosidade com a temperatura da alimentação.



Figura 5.71 - Variação da viscosidade do gás para $T_{ge} = 90$ °C.



Figura 5.72 - Variação da viscosidade do gás para $T_{ge} = 130$ °C.

Vê-se que à medida que a temperatura da alimentação aumenta, a viscosidade também aumenta para um mesmo tempo de operação e mesmo local no dessublimador.

As figuras 5.73 e 5.74 apresentam a variação da viscosidade com as diferentes temperaturas do fluido de refrigeração.



Figura 5.73 - Variação da viscosidade do gás para $T_{ge} = -10^{9}$ C.



Figura 5.74 - Variação da viscosidade do gás para $T_{re} = -30$ °C.

Ao se alterar as temperaturas do fluido de refrigeração de -10 $^{\circ}$ C para -30 $^{\circ}$ C origina-se uma menor concentração de UF₆ na fase gasosa com o valor da viscosidade da fase gasosa diminuindo, o que parece ser coerente com o explicitado nas figuras 5.33 e 5.34.

5.3.9 - Comportamento do número de Prandtl

Nas figuras 5.75 e 5.76 se apresenta a variação do número de Prandtl ao longo de todo comprimento do dessublimador.



Figura 5.75 - Variação do número de Prandtl para todo dessublimador e x=0,50.



Figura 5.76 - Variação do número de Prandtl para todo dessublimador e x=0,80.

Pelas figuras 5.77 e 5.78 nota-se que a variação da concentração do UF_6 na alimentação conduz a valores diferentes do número de Prandtl.



Figura 5.77 - Variação do número de Prandtl para x=0,50



Figura 5.78 - Variação do número de Prandtl para x=0,80.

A variação do número de Prandtl aparece como uma conseqüência da variação da concentração do UF₆ e das variações da composição dos gases no interior do trocador que alteram os valores da viscosidade, da capacidade calorífica média.

Pela análise das figuras 5.79 e 5.80 verifica-se que pouca variação sofre o número de Prandtl com as mudanças nos valores da pressão de processo.



Figura 5.79 - Variação do número de Prandtl para p=0,55 atm.



Figura 5.80 - Variação do número de Prandtl para p=0.95 atm.

As figuras 5.81 e 5.82 mostram a variação do Prandtl com a temperatura da alimentação da mistura gasosa. Verifica-se que para mudanças da temperatura de alimentação da mistura gasosa, o Prandtl não se altera.



Figura 5.81 - Variação do número de Prandtl para $T_{ge} = 90$ °C.



Figura 5.82 - Variação do número de Prandtl para $T_{ge} = 130$ °C.

Se por um lado as alterações nos valores das temperaturas da alimentação não alteram de modo significativo o número de Prandtl, figuras 5.81 e 5.82, mudanças na

temperatura do fluido de refrigeração o alteram de modo significativo, deslocando tanto o patamar inferior como o superior das curvas, figuras 5.83 e 5.84. Para maiores valores da temperatura de refrigeração o patamar inferior se desloca para pontos mais distantes do bocal de entrada do equipamento, com o patamar superior adquirindo menores valores



Figura 5.83 - Variação do número de Prandtl para $T_{re} = -10^{\circ}C$.



Figura 5.84- Variação do número de Prandtl para $T_{re} = -30$ °C.

Com a diminuição da temperatura de refrigeração o patamar inferior das curvas torna-se mais estreito e mais próximo do bocal de alimentação dos gases, no trocador. O patamar superior, à saída do dessublimador adquire valor maior para menores valores da temperatura de refrigeração, enquanto que o ponto de inflexão se aproxima da região de entrada do dessublimador.

5.3.10 - Variação do número de Reynolds

As figuras 5.85 e 5.86 apresentam a variação do número de Reynolds ao longo de todo dessublimador.



Figura 5.85 - Número de Reynolds para todo dessublimador e x=0,50.



Figura 5.86 - Número de Reynolds para todo dessublimador e x=0,80

O regime é laminar, com os valores do número de Reynolds tendendo para valores pequenos à medida que os gases deixam a zona de dessublimação. O hexafluoreto de urânio deixa a corrente gasosa e a vazão do gás diminui de intensidade, ficando apenas como constituintes do fluxo gasoso o nitrogênio e flúor. Estes não são retidos no processo de dessublimação, e fluem por todo comprimento do trocador em direção ao sistema de absorção de gases residuais.

Como o hexafluoreto de urânio é o componente presente na mistura gasosa em maior concentração, e à medida que a dessublimação ocorre, ele deixa essa fase dando origem a camada sólida na superfície dos tubos. Como a vazão do processo neste caso já é baixa, acaba ficando ainda menor, e o fluxo de gases que na entrada do equipamento era pequeno, torna-se agora insignificante.

As figuras 5.87 e 5.88 mostram com mais detalhe o comportamento do número de Reynolds frente às variações da concentração da alimentação. Vê-se uma dependência grande desse admensional com a concentração do hexafluoreto de urânio à entrada do equipamento.

Como se viu anteriormente, figuras 5.19, 5.20, 5.29 e 5.30, um aumento na pressão de operação leva a uma melhoria na retenção do hexafluoreto de urânio. Considerando a região do trocador junto à entrada, em que a camada de sólido cresce com facilidade e apresenta uma espessura razoável, quando comparada com as camadas mais internas, o número de Reynolds tende a adquirir valores maiores, na medida em que o fluxo da mistura gasosa tem que atravessar espaços disponíveis para esse fluxo cada vez menores. À medida que a camada sólida de UF₆ cresce, faz com que as aberturas para o fluxo dos gases tornem-se mais estreitas. Isto pode ser acompanhado pelas figuras 5.37 e 5.38. Para espessuras da camada sólida máximas, figuras 5.17 e 5.18, junto à região de saturação, o espaço disponível para o fluxo é mínimo, o que leva a um aumento significativo da velocidade do fluxo da mistura gasosa.



Figura 5.87 - Variação do número de Reynolds para x=0,50



Figura 5.88 - Variação do número de Reynolds para x=0,80

Para as figuras 5.89 e 5.90 o comportamento das curvas representam a variação do número de Reynolds frente às variações da pressão do processo. Verifica-se que para pressões mais elevadas do processo, e para a região do dessublimador junto à entrada, o

número de Reynolds é maior, atingindo valores máximos mais elevados quando comparados com os valores para pressões de processo menores. Como já se viu anteriormente, valores mais elevados da pressão levam a uma retenção do hexafluoreto de urânio mais eficaz, e conseqüentemente o fluxo de gases na entrada do equipamento tem sua velocidade aumentada, por ocorrer diminuição dos espaços disponíveis para o fluxo.



Figura 5.89 - Variação do número de Reynolds para p=0,55 atm.



Figura 5.90 - Variação do número de Reynolds para p=0,95 atm.

O comportamento das curva, para uma mesma figura, diferem quando se tomam como referência tempos diferentes de operação do processo. Para uma hora de operação, vê-se que o número de Reynolds diminui sempre ao longo do trocador. O hexafluoreto de urânio se depositando, faz com que o fluxo gasoso diminua, mas no início como a camada sólida ainda é pouco espessa, os espaços livres para o fluxo não interferem na velocidade dos gases. À medida que o tempo de operação transcorre, vê-se que o número de Reynolds começa a adquirir comportamento diferente. Como na zona do trocador em que já se formou a camada de sólido os espaços para o fluxo se tornaram pequenos, a velocidade dos gases tende então a aumentar. Como o fluxo gasoso percorrendo o trocador, e o hexafluoreto de urânio se depositando, o número de Reynolds tende a diminuir depois de ter atingido um valor máximo, já que o depósito atinge sua espessura máxima, que agora decresce.

Considerando as figuras 5.91 e 5.92 onde os valores para a temperatura da mistura gasosa de alimentação adquirem valores diferentes, constata-se para as primeiras três horas de operação, tanto para a temperatura de 90 °C como para 130 °C, que o número de Reynolds diminui, dando-nos uma indicação de que o hexafluoreto de urânio inicia o processo de dessublimação se depositando de maneira eficaz, deixando a corrente gasosa com tal intensidade que o faz levando a uma diminuição significativa da velocidade dos gases de processo, e para espaços disponíveis para o fluxo que não influenciam nessa velocidade.

A corrente gasosa fica empobrecida de modo rápido num dos seus componentes, o hexafluoreto de urânio, e como conseqüência a vazão mássica diminuindo, a velocidade diminui, e o número de Reynolds também. Mas à medida que o sólido se deposita sobre as zonas frias do equipamento, a passagem livre para o fluxo dos gases vai diminuindo, devido ao aumento da espessura da camada sólida. Na região junto à entrada do dessublimador, onde esse sólido cresceu rapidamente e com essa camada atuando como isolante térmico cada vez mais eficaz, o UF_6 passa pela região de entrada sem se

depositar, "engrossando" agora o fluxo mássico, contribuindo para um aumento local da velocidade dos gases, e levando a um aumento do número de Reynolds. Por outro lado, no trecho em que há mudança do número de tubos, o número de Reynolds diminui novamente, e começa a se processar nova deposição eficaz do composto sublimável, já que nova área de troca foi "adicionada" ao processo.



Figura 5.91- Variação do número de Reynolds para $T_{ge} = 90$ °C.



Figura 5.92 - Variação do número de Reynolds para $T_{ge} = 130$ ^oC.

Analisando agora as figuras 5.93. e 5.94, representa-se a variação do número de Reynolds em relação à temperatura do fluido refrigerante. Verifica-se que para menores temperaturas de refrigeração, o número de Reynolds adquire valores máximos maiores, quando se faz a comparação com os resultados para temperatura de refrigeração mais elevada.



Figura 5.93 - Variação do número de Reynolds para $T_{re} = -10$ °C



Figura 5.94 - Variação do número de Reynolds para $T_{re} = -30$ °C.
Mais uma vez se comprova a eficiência da deposição para temperaturas mais negativas do fluido de refrigeração. Para as primeiras horas de operação o número de Reynolds não sofre grandes alterações, para diferentes temperaturas de arrefecimento do sistema, mas à medida que o tempo transcorre, por exemplo, o número de Reynolds se altera de modo significativo.

Se por um lado a deposição do UF_6 para um local junto à entrada do trocador já não ocorre, os canais por onde fluem os gases diminuíram de tamanho, a tal ponto que levam a um aumento significativo da velocidade da mistura gasosa.

5.3.11 - Variação da capacidade calorifica média da mistura gasosa

Os comentários versarão agora sobre o comportamento da capacidade calorífica média da mistura gasosa, ao longo do dessublimador, como se fez com a viscosidade.

Nas figuras 5.95 e 5.96 representa-se a variação da capacidade calorífica média da mistura gasosa para todo o comprimento do dessublimador.

Existe uma pequena variação de seu valor à entrada do dessublimador, na região onde ocorre pouca deposição do hexafluoreto de urânio. À medida que o hexafluoreto de urânio gasoso deixa a fase gasosa e se deposita como um sólido, a capacidade calorífica média da mistura gasosa aumenta, até se tornar constante, já que a composição dos gases agora formada, principalmente por nitrogênio e flúor e uma parte hexafluoreto de urânio permanece constante ao longo do trocador.



Figura 5.95 - Capacidade calorífica média do gás para dessublimador e x=0,50



Figura 5.96 - Capacidade calorífica média do gás para dessublimador e x=0,80

Como se tem verificado ao longo deste trabalho, a variável que mais origina alterações no comportamento das curvas é a concentração do UF_6 à entrada do equipamento, o que também ocorre neste caso. Analisando as figuras 5.97 e 5.98 vê-se que ocorre uma grande diferença no comportamento das curvas.



Figura 5.97 - Variação da capacidade calorífica média do gás para x=0,50.



Figura 5.98 - Variação da capacidade calorífica média do gás para x=0,80.

À medida que a concentração do hexafluoreto de urânio na corrente de alimentação diminui, ver figuras 5.27 e 5.28, a capacidade calorífica da mistura gasosa aumenta e tem um comportamento que tende para a formação de um patamar. O hexafluoreto de urânio se depositando numa região mais interna do dessublimador

formando a camada sólida, a capacidade calorífica média da mistura gasosa se altera de modo intenso, já que a formação dessa camada de sólido deu-se a custa da transferência do hexafluoreto de urânio da mistura gasosa para o sólido.

Pelos gráficos apresentados nas figuras 5.99 e 5.100 verifica-se que diferentes valores da pressão de processo não alteram de modo significativo o valor da capacidade calorífica média dos gases.



Figura 5.99 - Variação da capacidade calorífica média do gás para p= 0,55 atm



Figura 5.100 - Variação da capacidade calorífica média do gás para p= 0,95 atm.

As figuras 5.101 e 5.102 mostram que a temperatura dos gases à entrada do equipamento pouco altera o comportamento da capacidade calorífica média dos gases.



Figura 5.101 - Variação da capacidade calorífica média do gás para Tge=90 °C



Figura 5.102 - Variação da capacidade calorífica média do gás para $T_{ge} = 130$ °C.

As figuras 5.103 e 5.104 mostram como a capacidade calorífica média dos gases se altera com a temperatura de refrigeração do sistema. A medida que a temperatura da

mistura gasosa à entrada baixa, melhor se dá a deposição do hexafluoreto de urânio, figuras 5.23 e 5.24, intensificando-se sua deposição com o composto deixando o fluxo de gases mais pobre em UF_6 levando a um aumento do valor da capacidade calorífica média dos gases.



Figura 5.103 - Variação da capacidade calorífica média do gás para T_{re} = - 10 °C.



Figura 5.104 - Variação da capacidade calorífica média do gás para T_{re} = - 30 0 C.

Assim, nota-se pelas figuras 5.103e 5.104 que para temperaturas mais baixas do fluido de refrigeração a capacidade calorífica tende de modo mais rápido para seu valor constante.

CAPÍTULO VI

CONCLUSÕES E SUGESTÕES PARA NOVOS TRABALHOS

6.1 - Conclusões

Analisando os resultados do presente trabalho pode-se concluir:

1 - O grande objetivo que seria o domínio da tecnologia de dessublimação/sublimação do hexafluoreto de urânio foi atingido, já que durante as diversas campanhas de produção desse composto, de elevada importância no ciclo do combustível nuclear, produziram-se algumas dezenas de toneladas, e operou-se o dessublimador projetado e montado à escala semi-industrial, de modo satisfatório e sem riscos, realizando-se operações de recolha sob a forma de hexafluoreto de urânio sólido, e descarregando-o como um líquido.

2 - Apesar de se passar por diferentes escalas de projeto, bancada, piloto e semiindustrial, que conduziu a um trabalhoso caminho de pesquisa, os diferentes dessublimadores foram concebidos, projetados, montadas e postos a funcionar levando sempre aos objetivos predeterminados, adquirindo-se vivência da tecnologia nessas escalas.

3 - A partir das informações recolhidas à escala piloto, pôde-se obter uma equação generalizada capaz de correlacionar a temperatura do gás no interior do dessublimador com a temperatura do fluido refrigerante, e a distância no interior do equipamento. Verificou-se que os dados experimentais obedeciam a um tipo de curva exponencial decrescente, o que veio a se confirmar um comportamento semelhante nas curvas obtidas por simulação quando do estudo à escala semi-industrial. 4 - As curvas obtidas pelo programa desenvolvido, mostraram que um fator de grande importância no processo de recolha do hexafluoreto de urânio é a sua concentração na corrente de alimentação, parâmetro este que mais altera os perfis estudados.

5 - Sem se cometer erro por generalização, pode-se afirmar que os parâmetros operacionais tais como pressão do processo, temperatura da alimentação da mistura gasosa e a temperatura do fluido refrigerante alteram em menor grau o comportamento do processo de dessublimação.

6 - As curvas que representam a espessura do sólido acumulado, e as curvas que representam o espaço livre para o fluxo da mistura gasosa, confirmam que a variável que mais influencia o processo de acúmulo de material é a concentração da mistura gasosa na corrente de alimentação.

7 - Além do mais, mostra-se a evolução de algumas propriedades da mistura gasosa ao longo do trocador, tais como viscosidade, calor específico, assim como a variação dos números admensionais de Reynolds e Pradtl, e que dependem da concentração do hexafluoreto de urânio na corrente gasosa.

8 - O dessublimador atingiu na prática a capacidade de armazenamento prevista em projeto, e que seria por volta de 800 kg de hexafluoreto de urânio, que foram retidos no processo através da dessublimação e descarregados na forma líquida do equipamento por sublimação, por diversas vezes sem qualquer tipo de risco às instalações ou aos operadores que conduziam as operações de produção nessa planta química.

9 - Detectou-se a existência de valores máximos da espessura da camada sólida, e a formação de névoas de hexafluoreto de urânio, quando atingida a saturação da mistura gasosa, para os pontos em que a fração de névoas adquiria valores diferentes de zero.

10 - A configuração interna do dessublimador, formada por seis zonas diferentes entre chicanas, sendo que as quatro primeiras não continham aletas e as duas últimas à saída do dessublimador, mostrou um funcionamento capaz de satisfazer as condições do processo.

11 - O projeto do dessublimador como foi definido, não apresentou riscos de vazamento nem de mistura do fluido de processo com o fluido refrigerante, já que essa mistura poderia originar riscos de brusca elevação de pressão, que poderia chegar em caso extremo a originar uma explosão no processo.

6.2 - Sugestões para trabalhos futuros

Com o desenvolvimento do dessublimador para o hexafluoreto de urânio, pôde-se detectar em paralelo a este estudo, a existência de tecnologias semelhantes, recorrendo a processos de dessublimação ou condensação de compostos de grande importância tais como o hexafluoreto de enxofre e o hexafluoreto de tungstênio. De um modo geral a produção destes compostos encontra-se atrelada a produção à escala industrial do flúor, e pode-se afirmar que o domínio da tecnologia do flúor leva a produção quase que imediata, desses outros compostos. Esses compostos químicos desempenham um papel importante com uma forte componente técnico-econômica, principalmente no tocante ao aproveitamento do flúor produzido, e é nessas tecnologias que se tem que desenvolver trocadores de calor de projeto especial semelhantes ao aqui estudado. Parece ser, deste modo interessante que se dediquem estudos que levem a um melhor conhecimento de como se pode realizar a recolha e descarga dos hexafluoretos de enxofre e tungstênio.

Considerando ainda o hexafluoreto de urânio, seria interessante analisar sua dessublimação e sublimação considerando que a corrente gasosa à entrada do equipamento contém uma certa quantidade de fluoreto de hidrogênio. Para as temperaturas de trabalho do sistema de arrefecimento, o fluoreto de hidrogênio em parte pode se incorporar ao sólido depositado e parte fluir ao longo do processo deixando o trocador de calor. Se assim ocorrer, na etapa de descarga do UF₆ esse composto alterará

as pressões desenvolvidas no interior do dessublimador, e como se integra no processo como uma impureza, pode-se estudar a purificação do hexafluoreto de urânio a partir de rápidas purgas quando da sua descarga do dessublimador para o reservatório principal. Convém salientar que o fluoreto de hidrogênio em presença de temperaturas negativas por volta de -40 °C e -10 °C passa para o estado líquido. Deste modo o processo de dessublimação aqui estudado poderia também levar em conta a presença de um composto na mistura gasosa que mudaria de fase, sofrendo condensação e se incorporando ao sólido, ocorrendo essa liquefação em simultâneo com o processo de dessublimação.

Quanto a estudos a nível de bancada, considera-se interessante conhecer o comportamento da dessublimação em presença de tubos com acabamentos na superfície especiais, por exemplo com ranhuras helicoidais, ou mesmo comparar os dados obtidos com o caso de se utilizarem tubos lisos.

APÊNDICE A-1 GRÁFICOS DAS PROPRIEDADES DOS COMPOSTOS



Apêndice A-1.1 - Coeficiente de difusão do hexafluoreto de urânio; Spackman (1978)



A-1.2 - Densidade do UF₆ sólido; Dewitt (1960)



Apêndice A-1.3 - Densidade do hexafluoreto de urânio gasoso; Spackman (1978)



Apêndice A-1.4 - Densidade do UF_6 gasoso calculada a pressão atmosférica; Dewitt (1960)



Apêndice A-1.5 - Densidade calculada do UF_6 gasoso e comparada com valores experimentais a 49,2 °C; Dewitt (1960)



Apêndice A-1.6 Viscosidade do UF_6 segundo equação de Myerson e Eicher (1952)



A-1.7 - Viscosidade do UF₆ gasoso;,Dewitt (1960)



Apêndice A-1.8 - Condutividade térmica do UF_6 e equação representativa da curva; Spackman(1978)



Apêndice A-1.9 - Condutividade térmica do UF_6 gasoso segundo diferentes autores; Dewitt (1960)



Apêndice A-1.10 - Capacidade calorífica do UF_6 gasoso e equação representativa da curva; (Spackman 1978)



Apêndice A-1.11 - Capacidade calorifica calculada do UF₆ gasoso; (Dewitt (1960)



Apêndice A-1.12 - Capacidade calorífica do UF₆ sólido; Dewitt (1960)



Apêndice A-1.13 - Pressão de vapor do UF_6 para temperatura entre 0 e 150 °C; Dewitt (1960)



Apêndice A-1.14 - Pressão de vapor para temperatura entre 0e 67ºC; Spackman (1978)



Apêndice A-1-15 - Pressão de vapor para temperaturas negativas; (Spackman (1978)



Apêndice A-1.16 - Calor de sublimação para o UF_6 segundo diferentes autores; Dewitt (1960)



Apêndice A-1.17 - Calor de sublimação; Katz e Rabinowitch (1951)



Apêndice A-1.18 Viscosidade do flúor; Aoyama e Kanda (1937)



Apêndice A-1.19 - Viscosidade do flúor; Yaws (1977)



Apêndice A-1.20 - Condutividade térmica do flúor; Yaws (1977)



Apêndice A-.1-21 - Capacidade calorífica do flúor



Apêndice A-1.22 - Capacidade calorífica do flúor; Murphy e Vance (1950)



Apêndice A-1. 23 - Capacidade calorífica do flúor ; Yaws (1977)



Apêndice A-1.24 - Massa específica do nitrogênio gasoso; Silva (1972)



Apêndice A-1.25 - Viscosidade do nitrogênio gasoso; Silva (1972)



Apêndice A-1.26 - Viscosidade do nitrogênio gasoso; Yaws (1977)



Apêndice A-1.27 Condutividade térmica do nitrogênio gasoso; Yaws (1977)



Apêndice A-1.28 - Condutividade térmica do nitrogênio gasoso; (1972)



Apêndice A-1.29 - Capacidade calorífica do nitrogênio gasoso; Yaws (1977)



Apêndice A-1.30 - Capacidade calorífica do nitrogênio; Silva (1972)

BIBLIOGRAFIA

ACKERMAN, G. V.D.I. Forschungsheft, 382, (1), 1937.

AGRON, P. A.; TAYLOR, A. H. The thermal conductivity of uranium hexafluoride. SAM Laboratory. February, 17, 1945.

AKERS, W. W.; TURNER, M. M. Condensation of vapour of immiscible liquids. American Institute of Chemical Engineers Journal, 8, p.587 - 589, 1962.

ALEXANDER, L. G.; HOFFMAN, H. W. Performance characteristics of corrugated tubes for vertical tube evaporators. **ASME Paper**, 71 HT 30, 1971.

ALTMANE, M.; STRAUB, F. W.; NORRIS, R. H. Local heat transfer and pressure drop for refrigerant 72 condensing in horizontal tubes. **Chemical Engineering Progress Symposium Series**, v.56, n.30, p.151 - 159, 1960.

AMPHLETT, C. B.; MULLINGER, L. W.; THOMAS, L. F. Some physical properties of uranium hexafluoride. **Tansactions Faraday Society**, v.44,p. 927-936, 1948.

AOYAMA, S.; KANDA, E. Bulletin of Chemical Society of Japan, v.12, p.416, 1937. In:

ARAI, N. Heat transfer tubes enhancing boiling and condensation in heat exchanger of a refrigerating machine. **ASHRAE Transactions**, 83, pt 2, 58 - 70, 1977.

ASME American Society of Mechanical Engineers

AWSBERY, J., H. Vapor pressure of liquid UF_6 . Department of Scientific and Industrial Research, Great Britain, September, 1943.

AWSBERY, J. H. Vapor pressure of solid UF₆. **Department of Scientific and Industrial Research**, Great Britain, October, 4, 1943.

AZER, N. Z.; FAN, L. T.; LIN, S. T. Augmentation of condensation heat transfer with in line static mixers. **Proceedings of 1976 Heat Transfer Fluid Mechanics Insitute**, p.512 - 526, 1977.

BARNES, ROHSENOW, W.M. Vertical fluted tube condenser performance prediction. **Proceedings of 7th Heat Transfer Conference**, 5,p.39 - 43, 1981.

BANWART, A.C.; BONTEMPS, A.Condensation of vapour with uncondensables: in a improved gas phase film model accounting fot the effect of mass transfer on film thickness. **Intenational Journal of Heat and Mass Transfer**, v.33, n.7, p.1465-1474, July, 1990.

BEAL, S. K. Transactions of American Nuclear Society, v.17, p.163-172, 1973.

BEATTY, K. O.; KATZ, D. L. Condensation of vapors on outside of finned tubes. **Chemical Engineering Progress**, v.44, n.1, p.55 - 70, 1948.

BELL, K. J.; GHALY, M. A. design a approximate generalized design method for multicomponent partial condensers. American Institute of Chemical Engineers Symposium Series, v.69, n.131, p.72-79, 1972.

BERGLES A.; WEBB, R. L.; JUNKHAN, G. H. Energy conservation via heat transfer enhancement; **Energy**, v. 4, p. 193 - 200, 1979.

BERMAN, L. D. On the Effect of Molecular Kinetic Resistence Upon Heat Transfer With Condensation. International Journal of Heat and Mass Transfer, vol 10, 1463, 1967. BERNHARDT, S. H., SHERIDAN, J. J., WETWATER, S. W. Condensation of immiscibles mixtures in heat exchangers. American Institute of Chemical Engineers Symposium Series, v.68, n.118, p.21 - 37, 1972.

BILIK, J.; KRUPICZKA, R. Heat transfer in the sublimation of phtalic anhydride. The Chemical Engineering Journal, v.26, n.3, p. 169-180, 1983.

BIRD, R.B.; STWART. W. E..; LIGHTFOOT, E.N. Transport Phenomena. New York, John Wiley, 1960

BIRCHALL, G. A. The control of fouling within cooling water systems. **Proceedings Conference Fouling-Art or Science**, 92, University Surrey, United Kingdon, 1979.

BOYOKO, L. D.; KRUZHILIN, G. N. Heat transfer and hydraulic resistance during condensation of steam in a horizontal tubes and a budle of tubes. International Journal of Heat and Mass Transfer, v.10, 361 - 373, 1967.

BOTT, T. R.; WALKER, R Fouling in heat exchanger tubes-some observations. DSIR-SAIChE-SAIMech. E. Symposium Heat Transfer Design and Operation of Heat Exchangers, Johannesburg, South Africa, 1974.

BOTT, T. R.; GUDMUNDSON, J. Deposition of paraffin wax from kerosene in cooled heat exchanger tubes. **Canadian Journal of Chemical Engineering**, v.55, p.381, 1977.

BOTT, T. R. Fouling in shell and tube heat exchangers. Paper n.5, in Advances in Thermal and Mechanical Design of Shell and Tube Heat Exchangers. Birnichill Institute, Glasgow, 1973.

BOTT, T. R.; WALKER, R. A. Fouling in heat transfer equipment. The Chemical Engineering, v.391, 1972.

BOTT, T. R.; PINHEIRO, M. M. V. P. S. Biological fouling-velocity and temperature effects. Paper 76, CSME/SCChE, in 16th National Heat Transfer Conference., St. Louis, U.S.A. 1976.

BRAUN, R. The nature of petroleum process fouling. Mater Perf. N.35, November, 1977.

BREBER, G.; PALEN, J. W. TABOREK, J. Prediction of horizontal tubeside condensation of pure components using flow regime criteria, in Condensation Heat Transfer, **18 th National Heat Transfer Conference**, 1-8, 1979, ASME, San Diego.

BRICKWEDDE, F. G.; HOGE, H. J.; SCOTT, H. B. The low temperature heat capacities, entalpies and entropies of UF_4 and UF_6 ¹² Journal of Chemical. Physics., v.16, p.429-436, 1948.

BRIDGWATER, J. Crystallization Fouling-A Review of Fundamentals. **Proceedings Conference Fouling-Art or Science**, 82, University of Surrey, United Kigdon, 1979.

BRITISH STANDARDS BS1500; BS3274; BS5500; BS3606;

BRODOV, Y. M.; SALE'YEV, R. Z.; PERMAYAKOV, V.A.; KUPTSOV, V. K.; GAL'PERIN, A. G. The effect of vibration on heat transfer and flow of condensing steam on a single tube. **Heat Transfer Soviet Research**, v.9, n.1, p.153 - 155, 1977.

BROUWERS, H. J. H. N. A improved tangency condition for fog formation in cooler condensers. **International Journal of Heat and Mass Transfer**, v.34, n.9. p.2387-2394, September, 1991.

BROUWERS, H. J. H. Film models for transport phenomena with fog formation: the fog film model. **International Journal of Heat and Mass Transfer**, v.35, n.1, p.13-28, January 1992.

BROUWERS, H. J. H.; CHESTERS, A K. Film models for transport phenomena with fog formation: the chemical film model. International Journal of Heat and Mass Transfer, v.35, n.1, p.1-11, January 1992.

BROUWERS, H. J. H.; GELD, C. W. N. VAN DER. Heat transfer condensation of fog formation in crossflow plastic heat exchangers. International Journal of Heat and Mass Transfer, v.39, n.2, p.391-405, 1996.

BROWN, M.; MURPHY, E. G. Measurements of the self-difusion coefficient of uranium hexafluorine. **Transactions Faraday Society**, v. 515, n. 61, 1965.

BUTKOV, K.V.; ROZENBOUM, B. AhFKh, 24, 706, 1950. In: Ryss, I.G. Chemistry of Fluorine and its Inorganic Compouds.

BUTTERWORTH, D. Developments in the design of shell and tube condensers. ASME, November, 1977.

CARNAVOS, T. C. An experimental study: condensing R-11 on augmented tubes. ASME Paper, 80 - HT - 54, 1980. CARPENTER, E. F.; COLBOURN, A. P. The effect of vapor velocity on condensation inside tubes. **Proceedings of General Discussion of Heat Transfer**, I. Mech. ASME, 1951.

CHAMBERLAIN, L.N. Gleichungen zu den physikalischen Efgenschaften des UF_6 (1975)

CHANDRAN, R.; WATSON, F. A. Condensation on static and rotating pinned tubes. **Transactions Institute of Chemical Engineers**, v.54, p.65-72, 1976.

CHILTON, T. M.; COLBOURN, A. P. Design of cooler condensers for mixtures of vapours with non-condensing gases. **Industrial Engineering Chemistry**, v. 26, p.1178 - 1182, 1934.

CHOI, H. Y. Electrohydrodynamic condensation heat transfer. ASME Paper, 67 HT 39,1967.

CHOI, H. Y.; REYNOLDS, J. M. Study of electrostatic effects on condensing heat transfer. Air Force Flight Dynamics Laboratory,. TR-65-51', 1966.

CHYU, M.; NATARAJAN, V. Heat transfer on the base surface of three dimensional protruding elements. International Journal of Heat and Mass Transfer, v.39, n.14, p.2925-2935, 1996.

CLAXTON, K. T.; COLLIER, J. G. Effects of corrosion product transport in fast reactors. **Proceedings on Liquid Alkali Metals**. Nottingham University, 4-6th April, p.290-300, 1973.

CLEAVER, J., W.; YATES, B. The effect of re-entrainment on particle deposition. **Chemical Engineering Sciency**, v.31, p.147-151, 1976.

CLEAVER, J. W.; YATES, B. Mechanism of detachment of colloidal particles from a plant substrate in turbulent flow. Journal of Colloidal and Interfacial Science, v. 44, p.464, September, 1973.

CLEAVER, J., W.; YATES, B. A sub-layer model for deposition of particles from a turbulent flow. Chemical Engineering Sciency, v.30, p.983, 1975.

COBO, M. J. L.; HERRANZ, L.; SANCHO, J.; TKACHENCKO, I. VERDU, G. Turbulent vapour condensation with noncondensable gases in vertical tubes. **International Heat and Mass Transfer**, v.39, n.15, p.3249-3260, 1996.

COHEN, P. Water Coolant Technology of Power Reactors. Gordon & Breach. 1969.

COHEN, P.; TAYLOR, G. R. Discussion of boiling heat transfer at low heat flux. **Transactions of American Society of Mechanical Engineers** (C), Journal of Heat Transfer, 89, 242, 1967.

COHEN, K. Theoretical considerations on liquid thermal diffusion experiments. SAM Laboratory. February, 5, 1953. A-531.

COLBURN, A. P.; EDISON, A. G. Prevention of fog in cooler condenser, Industrial Engineergin Chemistry, v. 33, p. 457, 1941.

COLBOURN, A., P. Industrial Engineering Chemistry, 26, 432, 1934.

COLBOURN, A., P.; DREW, T., B. The condensation of mixed vapors. **Transactions of American Institute of Chemical Engineers**, v.42, 197, 1937.

COLE, L.G. J. Chem. Phys., v.20, n.4, p.1148, 1952

COOPER, G.T.; RESNICK, I. Kellex Corporation, Report K2-245, October, 11, 1945

40

COX, R. B.; MATTA, G. A.; PASCAKE, E. A. S.; STROMBERG, K. G. Second report on horizontal tubes mutiples effect process pilot plants tests and design. Off. Saline Water Research and Development Report, n. 592, May, 1970.

CRESSWELL, O Cooling characteristics of a 12 t. feed container. British Nuclear Fuel Limited, BNFL 903, (CA), August, 1976.

CRITTENDEN, B.; KOLACSKOWSKI, S. Mass transfer and chemical kinetics in hydrocarbon fouling. **Proceedings of Conference Fouling-Art or Science**, 169, University Surrey, United Kingdon, 1979.

CUPTOR, I. Design of condensers for a mixture of vapours in the presence of gases which are uncondensable in a vacuum. **International Chemical Engineering**, v.31, n.3, p.553-563, July 1991.

DE MARCUS, P.; STARNES, M. P. The intermolecular interaction of UF_6 molecules. Carbide and Carbon Chemicals Company. K-1114, June, 23, 1954.

DENT, J. C. Effect of vibration on condensation heat transfer to a horizontal tube. **Proceedings of Institute of Mechanical Engineers**, v.184, p.99 - 105, 1969 - 1970.

DEO, P. V. Ph D THESIS, University of Manchester, 1979.

DEWITT, R. Uranium Hexafluoride: A survewy of the phsysico-chemical properties. Goodyear Atomic Corporation, Ohio, 1960.
DHIR, V. K.; CASTLE, J. N.; CATTON, I. Role of Taylor instability on sublimation of a horizontal slab of dry ice. **Transactions of ASME SER C**, v.99, n.3, p.411-418, 1977.

DUCLER, A., E. Chemical Engineering Process, 62, October, 62, 1959.

DUNTHORN, D.I. The design of batch dessublimers in a process system development gaseous diffusion division. Union Carbide Corporation Nuclear Division, 1968.

EISSENBER, D.; BOGUE, D. Tests of an enhanced horizontal tube condenser under conditions of horizontal steam cross flow, Heat Transfer, I, HE 2.1, **Proceedings of 4th** Internatinal Heat Transfer Conference, 1970.

ENGLISH, K. G.; JONES, W. T.; SPILLERS, R. C.; ORR, V. Criteria of flooding and flooding correlations studies with a vertical updraft partial condenser; American Institute of Chemical Engineers 6 th National Heat Transfer Conference, 1963.

EPSTEIN, N. Fouling in heat exchangers, in **Proceedings Sixth. International Heat Transfer Conference**, Toronto, Canada, v.6, p.235-253, 1978.

FAN, L. T.; LIN, S. T.; AZER, N. Z. Surface renewal model of condensation heat transfer in tubes with in line static mixers. **International Journal of Heat Mass Transfer**, v.21, p.849 - 854, 1978.

FENNER, G. W.; RAGI, E. Enhanced tube inner surface device and method. U. S. Patent, 4,154,293, May, 1979.

FOWLER, R. D.; ANDERSON, H. C.; WEBER. C. E. The determination of the viscosity of gaseous UF₆. National Defense Research Committee, OSRD. November, 15, 1942. A-1398.

FRANK, O. Simplified design procedure for tubular exchangers in practical aspects for heat transfer ; **Chemical Engineering Progress** Theonical Manual , ASME ,1978.

FRANCK, E.V.; WICKE, E.Z. Elektrochem., v.55, p.636, 1951. In: YAWS, C. L. **Physical Properties**: a guide to the physycal, thermodynamic and transport property data of industrially important chemical compounds. New York, N.Y.: McGraw Hill, 1977, p.66.

FU, W. S.; TSENG, C. C.; HUNAGI, C. S. Experimental study of the heat transfer enhancement of an outer tube with a inner tube insertation. International Journal of Heat and Mass Transfer, v.38, n.18, p.3443-3454, 1995

FUJII, T.; UEHARA, H.; KURATA, G. Laminar filmwise condensation of flowing vapour on a horizontal cylinder. International Journal of Heat and Mass Transfer, v. 15, p.235-246, 1972.

FUJII, T.; HONDA, H.; ODA, K. Condensation of steam on a horizontal tube-the influence of uncoming and thermal conduction at the wall. **10th. National Heat Transfer Conference**, San Diego, California, ASME AICHE, August 1979.

GAUNT, J. The infrared spectra and molecular structure of some group 6 hexafluorides. **Transactions of Faraday Society**, v.49, p.1122 - 1131, 1953.

GARDNER, K. A. Anticipation of operating problems in the design of heat transfer equipment, in **Heat Exchangers: Design and Theory Sourcebook**, edited by Afgan, N. e Schunder, E. U., McGraw Hill Book Company, 1974.

GARDNER, K.; TABOREK, J. Mean temperature difference: a reappraisal. American Institute of Chemical Engineers Journal, v.23, p.777-786, 1977.

GILLIES, W. Fouling and its control by chemical additivies in hydrocarbon streams. **Proceedings of Conference Fouling-Art or Science**, 188, University Surrey, United Kigdon, 1979.

GLASSNER, A The thermodynamic properties of the fluorides, chlorides, and oxides ot the elements to 2500^oK; Argone National Laboratory, (1958). In DeWitt R.; Uranium hexfluoride: a survey of the physico-chemical properties, Goodyear Atomic Corporation, Ohio, 1960.

GLICKSMAN, L. R.; MIKIC, B. B.; SNOW, D. F. Augmentation of film condensation on the outside of horizontal tubes. **American Insitute of Chemical Engineers Journal**, v.19, p.636 - 637, 1973.

GORELIKE, A G.; AMITIN, A V. Dessublimation in Chemical Industry. Khimiya, Moskwa, 1986

GRANT, I. D. R.; CHISHOLM, D. Two phase flow on the shell-side of a segmentally baflled shell and tube heat exchanger. American Society of Mechanical Engineers Paper 77 WA/HT 22, 1977.

GRANT, I. D.; COTCHIN, C. D. Submergence in baffled shell and tube heat exchangers. **Institute of Chemical Engineering Symposium Series**, v.86 n.1, p.673-683, 1984.

GRANT. I. D. R. Condenser performance-the effect of different arrangements for venting non-condensing gases. **British Chemical Engineers**, v.14, n.2, p.1709 - 1711, 1969.

GRECO, C.; BALDO, L.C.; OLIVEIRA, W.S.; ANDREATA, J. A .Relatórios técnicos sobre dessublimador: 1983 - 1986.

GREGORIG, R. Hautkondensation an Feingewellten Obserflachen Bei Berucksichting Der Oberflachenspannungen, Z. Angew. Math. Phys. 5, 36 - 49, 1954, in **Handbook of Heat Transfer Applications**, p. 3-28, McGraw Hill Book Company, N.Y. 1985.

GRIFFITH, P. Two-phase flow; Handbook of Heat Transfer Fundamentals, ed. W. M. Rohsenow, J. P. Hartnett e E. N. Ganic. chapter 13, McGraw Hill Book Company, 1985.

GUDMUNDSON, J.; BOTT, T. R. Deposition the geothermal constraint. Industrial Chemical Engineering Symposium Series. V.48, n.27, 1977.

GUDMUNDSON, J. Heat Transfer Fouling. Ph. D. Thesis. University of Birmingham. United Kingdon, 1975.

HAMPSON, H.; THAION, W. The effect of venting arrangements during the condensation on a horizontal tube from static vapor gas mixture. **Proceedings of 3d International Heat Transfer Conference**, v.2, p.118-129, 1966.

HARDIN; L. L.; DYER, D. F. Heat and mass transfer in beds of particulates under-going a sublimation dehydration. Journal of Heat Transfer, v.95, p.516-520, November, 1973.

HASSON, D.; ZAHAVI, J. Mechanism of calcium sulfate scale deposition on heat transfer surfaces. Industrial Engineering Chemistry Fundamentals, v.9, p.1-10, 1970.

HASSON, D.; AVRIEL R.; RESNICK W.; ROZENMAN T.; WINDREICH S. Mechanism of calcium carbonate scale deposition on heat transfer surfaces. Industrial Engineering Chemistry Fundamentals, v.7, n.1, p.59 65, 1968.

HAUSTER, R. H.; THALMAYER, C. E. Fouling and corrosion in feed efluent exchangers. in **40th Mid-Year Meeting of The American Petroleum Institute**, Chicago, May, 1975

HEI - Heat Exchange Institute

HESSELGREAVES, J. E.; MERCIER, P.; MOROS, T.; MANSUR, S. S.; McCOURT, M. New concepts in longitudinal flow shell and tube heat exchangers. Energy Efficiency in Process Technology. **Proceedings of the International Conference on Energy Efficiency in Process Technology**, p.641-652, 1993.

HO, C.Y.; POWELL, R.W.; LILEY, P.E. Journal of Physical Chemistry Ref. Data, v.8, n.21, p.279, 1972. In: YAWS, C. L. **Physical Properties**: a guide to the physical, thermodynamics and transport propertu data of industrially important chemical compounds. New York, N.Y., McGraw Hill, 1977, p.8.

HOARD, J. L.; STROUPE, J. D. The struture of crystalline uranium hexafluoride. Cornell University. March, 1944. A-1242.

HOLDEN, K.M.; WANNIARACHCHI, A S. The use of organic coatings to promote dropwise condensation of stream. Transactions of the American Society of Mechanical Engineers Series C, Journal of Heat Transfer, v.109, n.3, p.768-774, 1987.

HOLMES, R.C. in Chemical Engineer's Handbook. R.H. Perry, 3d edition, p. 686. McGraw Hill Book Company, New York, 1950.

HONG, S. W.; BERGLES, A. E. Augmentation of laminar flow heat transfer in tubes by means of twisted-tape inserts In Journal of Heat Transfer, v.98, p.251 - 256, 1976.

INTERNATIONAL CRITICAL TABLES, McGraw Hill Book Company, 1928

ISO International Standards Organization: Pressure Vessels Standards

JACOB, M. Heat Transfer. New York, John Wiley and Sons, 1957.

JASTER, H. E.; KOSKY, P. G. Condensation heat transfer in a mixed regime. International Journal of Heat Transfer, v.19, p.95 - 99, 1976.

JENSEN, L. D. Biofouling Control Procedures. Marcel Dekker Publishers, New York, 1977.

KANDA, E. Bulletin of Chemical Socitey of Japan, v.12, p.469-473, 1937. In: YAWS, C. L. **Physical Properties**: a guide to the physical, thermodynamics and transport property data of industially important chemical compounds. New York, N.Y., McGraw Hill, 1977, p.6.

KARAPANTSIOS, T. D.; KARABELAS, A J. Direct contact condensation in the presence of noncondensables over free falling films with intermittent liquid feed. **International Journal of Heat and Mass Transfer**, v.38, n.5, p.795-805, 1995.

KARAPANTSIOS, T. D.; KOSTOGLOV, M.; KARABELAS, A J. Local condensation rates of steam air mixtures in direct contact with a falling liquid film. International Journal of Heat and Mass Transfer, v.38, n.5, p.779-794, 1995.

KATZ, J. J.; RABINOWITCH, E. The Chemistry of Uranium. National Nuclear Energy Series. Divison VIII, Vol. 5. New York, McGraw Hill, 1951.

KATZ, D. L.; YOUNG, E. H. Condensing vapors of finned tubes in heat exchangers. **Petroleum Refiner**, v.33, n.11, p.175, 1954.

KAY, J. M. An Introduction to Fluid Mechanics and Heat Transfer: with applications in chemical and mechanical process engineering. 2 ^a ediction, John Wiley, 1963.

269

KEENE, J. W.; DAVIES, T. W.; GIBBONS, D. B. Flow distribution on the shellsides of a shell-and-tube heat exchangers. **Chemical Engineering Research and Design**, v.17, n.3, p.310-311, May 1993.

KERN, D. Process Heat Transfer. New York, McGraw Hill Book Company, 1950.

KERN, D. Q.; SEATTON, R. E. A theoretical analysis of thermal surface fouling. **British Chemical Engineering**, v.4, p.258-262, 1959.

KHAN, R.. A . Effect of vent rate, noncondensable loading and vent location on heat transfer in a large vertical tube buddle of a sea water evaporator. **Symposium Special Problems in Process Heat Transfer**, paper 14G, AIChE National Meeting, Dallas, 1972.

KIRCHENBAUM, L. Physical Properties of Uranium Hexafluoride. SAM Laboratories, October, 26, 1943.

KO, N. W.; WONG, P. F. Heat transfer from coaxial cylinders with stepwise changes in diameter. Transactions of the American Society of Mechanical Engineers Serie C, **Journal of Heat Transfer**, v.108, n.4, p.981-983, 1986.

KOSKY, P. G.; STAUB, F. W. Local condensation heat transfer coefficients in the annular flow regime. American Institute of Chemical Engineers Journal, v.17, n.5, p.1037-1043, 1971.

KREITH, F. **Principles of Heat Transfer**. Scranton, Pennsylvania, International Textbook Company, 3^a ediction 1976.

KIRSHENBAUM, I. Physical Properties of Uranium Hexafluoride. SAM Laboratory, a-753, 1943. KRISHNA, R. e STANDART, G. L. A Multicomponent Film Model Incorporing a General Matrix Method of Solution to the Maxwell - Stefan Equation, American Institute of Chemical Engineers Journal, 2, 22, 383, 1976.

KRISHNA, R.; STANDART, G. L. Mass and energy transfer in multicomponent system. **Chemical Engineering Communication**, v.3, p.201 - 275, 1979.

KRISHNA, R.; PANCHAL, C. B.; WEBB, D. R.; COWARD, I. As Ackermann - Colbourn and drew type analysis for condensation of multicomponent mixtures. Letters on Heat and Mass Transfer, v.3, n.2, p.163 - 172, 1976.

KRUPICSKA, R.; PHSCHNY, J. Mathematical modelling of the sublimation of phtalic anhydride. Chemical Engineering and Processing, v.28, n.1, p.29-34, August 1990.

KUMAR, P.; JUDD, R. L. Heat transfer with coiled wire turbulence promoters. **Canadian Journal of Chemical Engineers**, v.8, p.358 - 383, 1970.

LAWLER, D. Fouling by crude oil in refinery heat transfer exchangers. **Proceedings Conference Fouling-Art or Science**, 155, University Surrey, United Kigdon, 1979.

LEWIS, L. G.; SATHER, N. F. OTEC Performance tests of the Carnigie Mellon University vertical fluted tube condenser. **ANL OTEC PS 4**, Argone National Laboratory, May, 1979.

LLEWELLYN, D. R. Some physical properties of uranium hexafluoride. Journal Chemical Society, p.28-36, 1953.

LOPINA, R. F.; BERGLES, A. E. Heat transfer in tape generated sewirl flow of single - phase water. Journal of Heat Transfer, v.91, p.434 - 442, 1969.

LO PINTO, L. Fog formation in low temperature condensers. **Chemical Engineering** (International Edition), v.89, n.10, p.111-113, May, 1992.

LORD R. C.; MILTON, P. E; SLUSSER, R. P. Guide to trouble free heat exchangers. Chemical Engineering, Albany, v.77, 1970.

LORENZ, J. J.; YOUNG, D. T.;HILLIS, D. L.; SATHER, N. F. OTEC Performance test of the Cornegie-Mellon University vertical fluted-tube evaporator, **ANL/OTEC-PS-5** Argonne National Laboratory, July 1979.

LUDWIG, E. E. Applied Process Design for Chemical and Petroleum Plants, v.3. Gulf Publishing Company, 1965.

LUU, M. Augmentation of in-tube condensation of R - 113. PhD Thesis, Department of Mechanical Engineering, Iowa State University, 1979.

LUU, M.; BERGLES, A. E. A experimental study of the agmentation of the in-tube condensation of R-113. **ASHRAE Transactions**, v.85, n.2, p.132-146, 1979.

LUU, M.; BERGLES, A. E. Augmentation of in-tube condensation of R - 113 by means of surface roughness. **ASHRAE Transactions**, v. 87, pt 2, 1981.

MACBETH, R. V. Fouling in boiling water system. Tow-Phase Flow and Heat Transfer. Butterworth & Hewitt, 1977.

MAGNUSON, D. W. Microwave dielectric constant measurements. Journal Chemistry Physics, v.24, p.344-347, 1955.

MANN, G. M. W. Distribution of sodium choride and sodium hydroxide between steam and water dryout in a experimental once-through boiler. **Chemical Engineering Science**, v.30, n.2, p.249-260, 1975.

MANSFIELD, G. Some aspects of cooling water treatment. **Proceedings Conference Fouling-Art or Science**, 10. University Surrey, United Kigdon. 1979.

MARRIOTT, J. Condensation of mixed vapours: integral vs differencial. Heat Transfer Engineering, v.10, n.4, p.50-53, 1989.

MARTO, P. J.; REYLLY, R. J.; FENNER, J. H. An experimental comparison of enhanced heat transfer condenser tubing. Advances in Enhanced Heat Transfer, ASME PP 1 - 9, New York, 1979.

MASI, J. F. The heats of vaporization of uranium hexafluoride. Journal of Chemical Physics. V.17, p.755-758, 1949.

MASTERSON, H. G.; CASTLE, J. E.; MANN, G. M. W. Waterside corrosion of power station boiler tubes. **Chemistry and Industry**, p.1261-1266, September, 1969.

MATHESON GAS PRODUCTS, Fluorine. Technical Bulletin, Division of Will Toss, Inc., 1981.

MATHESON, W. F.; SMITH, J. C. Effect of sonic pulsation of forced convective heat transfer to air on film condensation isopropanol. Chemical Engineering Progress Symposium Series, v.41, n.59, p.173 - 179, 1979.

MAZZAROTTA, B.; SEBASTIANI, E. Process design of condensers for vapour mixtures in the presence of noncondensable gases. Canadian Journal of Chemical Engineering, v.73, n.4, p.456-461, August 1995.

MCADAMS, W.H. Chemical Engineering Progress, 46, p.125, 1950.

MCADAMS, W. H. Heat Transmission. New York, McGraw Hill Book Company, 1954, 3^a edition.

MCALLISTER, R. A.; EASTHAM, D. H.; DOUGHARTY, N. A.; HOLLIER, M. Corrosion, v.17, p.579-588, 1961.

MCMILLAN, J. A. Treatment of gaseous uranium hexafluorine by means of an inverse molecular force model. **Comission Nacional de Energia Atomica**; Physical Series, vol 1, No.3 1954.

MEDWELL, J. O.; NICOL, A. A. Surface roughness effects on condensate films. **ASME Paper**, 65 - HT- 43, 1965.

MEHTA, M. H.; RAO, M. R. Heat tansfer and frictional characteristics of spirally enhanced tubes for horizontal condenser. Advances in Enhanced Heat Transfer, p.11-21, ASME, 1979.

METZNER, A.; FRIEND, W. Theoretical analogies between heat, mass and momentum transfer. **Canadian Journal of Chemical Engineering**, 235, December 1958.

MILLER, G.M.; UNDERWOOD, M.E. Phtalic anhydride sublimation apparatus and method. **Patent U.S.** 3.705.6, 12 December, 1972.

MORETTI, P. M. A critical review of the literature on flow-induced vibration in heat exchangers. American Institute of Chemical Engineers, March, 1973.

MORI, Y.; HIJITAKA, K.; HIRASAWA, S.; NAKAYAMA, W., Optimized performance of condensers with outside condensing surfaces. Journal of Heat Transfer, v.103, p.96-102, 1981.

MORSE, R. W.; KNUDSEN, J. G. Canadian Journal of Chemical Engineering, 55, p.272-279, 1977.

MUELLER, A. C. Heat Exchangers, in, **Handbook of Heat Transfer**, edited by W. M. Rohsenow and Hartnett, chapter 18, 1 - 113, McGraw Hill Book Company,1973.

MUKHERJEE, R. Use double-segmental baffles in shell-and-tube heat exchangers. **Chemical Engineering Progress**, v.88, n.11, p.47-51, November 1992.

MURPHY, and VANCE, Journal of Chemical Physics 7, 806, 1939.

MURTY, K.N. Vertical vs. horizontal condensers. **Chemical Engineering** International Edition, v.89, n.11, p.152, May, 1982.

MYERSON, A. L.; EICHER, J. H. The viscosity of gaseous uranium hexafluoride. Journal of American Society. v.74, p.2758-2761, 1952.

NAKAYAMA, W.; DAIKOKU, T.; KUWAHARA, H.; KAKIZAKI, K. High flux heat transfer surface "Thermoexcel", **Hitachi Review**, v.24, p.329 - 333, 1975.

NEY, E. P.; ARMISTEAD, J. H. The self-diffusion coeficient of uranium hexafluoride. **Physical Review**, v.71, p.14-19, 1947.

NEWSON, I. Studies of particulate deposition from flowing suspensions. Proceeding Conference Fouling-Art or Science, 35, United Kingdon, 1979.

NICOL, A. A.; MEDWELL, J. O. The effect of surface roughness on condensers steam. **Canadian Journal of Chemical Engineers**, v. 44, n.6, p.170 - 173, 1966.

NICOL, A. A.; BRYCE, A.; AHMED, A. S. A. Condensation of a horizontal flowing vapour on a horizontal cylinder normal to the vapour stream. **Proceedings 6th.** International Heat Mass Transfer Conference at Toronto, v.2, p.401-406, 1978.

NICOL, A A; AIDOUN, Z. L.; GRIBBEN, R. J.; WILKS, G. Heat transfer in the presence condensate drainage. International Journal Mutiphase Flow, v.14, n.3, p.349-359, May/June 1988.

NIER, A. O. The determination of the coefficient of thermal diffusion of uranium hexafluoride. University of Minnesota, May, 1941.

NOTARO, F. Enhanced Condensation Heat Transfer Device and Method. U. S. Patent, 4,154,294, May, 1979.

NUSSELT, W. Surface Condensation of Water Vapor. Z. Ver. DT. INg. V.60, n 27, p.541-546, 1916.

OLIVER, G. D.; MILTON, H. T.; GRISARD, J. W. The vapor pressure and critical constants of uranium hexafluoride. Journal American Chemical Society. v.75, p.2827-2829. 1953. K-722, AECD-3470.

PALEN J. W.; BREBER, G.; TABOREK, J. Predictions of flow regimes in horizontal tubeside condensation. American Institute of Chemical Engineers, 17th National Heat Transfer Conference, p.38, Salt Lake City, 1977.

PALEN, J.; CHAM, B.; TABOREK, J. Comparation of condensation of steam on plain and turbotec spirally grooved tubes in a baffled .**Heat Transfer Research**, Inc. Report 2439 - 300 - 6, January, 1977.

PALEN, J. W.; BREBER, G.; TABOREK, J. Prediction of flow regimes in horizontal tube side condensation. Heat Tansfer Research, Inc. Rep. 2439 - 3006, January, 1971.

PEREZ. J.A ; SPARROW, E.M. Determination of shell-side heat transfer coefficients by the naphtalne sublimation technique. **Heat Transfer Engineering**, v.6, p.19-30, 1985.

PERRY E CHILTON Chemical Engineers Handbook, 5 edition, McGraw Hill Book Company, N.Y, 1973.

POLLEY, G. T.; CALUS, W. F. The effect of condensate pattern on heat transfer during the condensation of binary mixtures of.. **6th International Heat Transfer Conference**, 2, Paper CS 16, Toronto, 1978.

PRICE, B. C.;BELL, K. J. Design of binary vapour condensers using the Colbourn Drew equations. American Institute of Chemical Engineers Symposium Series, v.7, n.138, p.267-272, 1974.

PRITCHARD, A. M. Heat exchanger fouling in British Industry. Fouling Prevention Research Digest, v.1, n.1-4, IV-VI, 1979.

REISBIG, R. L. Condensing Heat Transfer Agumentation Inside Splined Tubes. ASME Paper, 74 HT 7, July, 1974.

RELATÓRIOS DO PROCON; Relatórios do Arquivo Técnico do Projeto Conversão 1980 - 1990.

RIED, R. C.; SHERWOOD, T. K. The Properties of Gases and Liquids. McGraw Hill, New York, 1966.

RIFERT, V. G.; ZADIRAKA, V. Y. Steam condensation inside plain and profiled horizontal tubes. **Therm. Eng.** v.25, n.8, p.54 - 57, 1978.

ROBERTS, L. E. J. Viscosity of UF₆ Vapour at Room Temperature. Oxford University, Great Britain, July, 1944. Br-468.

ROETZEL, W.; LEE, D.W. Experimental investigation of leakage in shell-and-tube heat exchagners with segmental baffles. **International Journal of Heat and Mass Transfer**, v.36, p.3765-3771, 1993.

ROETZEL, W.; LEE, D.W. Effect of baffle/shell leakage flow on heat transfer in shelland-tube heat exchangers. **Experimental Thermal and Fluid Science**, v.8, p.10-20, 1994.

ROHSENOW, W. M.; HARTNETT, H. P. Handbook of Heat Transfer. New York. McGraw Hill Book Company, 1973.

ROHSENOW, W. M.; CHOI, H. Y. Heat, Mass, and Momentum Transfer. Prentice-Hall, New York 1961.

ROHSENOW, W. M.; HARTNETT, J. P.; GANIC, E. N. Handbook of Heat Transfer Applications. McGraw Hill Book Company, 2^a edition, 1985.

ROHSENOW, W. M.; HARTNETT, J. P. Handbook of Heat Transfer, McGraw Hill Book Company, 1973.

ROYAL, J. H.; BERGLES, A. E. Augmentation of horizontal in tube condensation by means of twisted tape inserts and internally. **Journal of Heat Transfer**, v.100, p.17-24, 1978.

ROYAL, J. H.; BERGLES, A. E. Pressure drop and performance evaluation of augmentation of augmentation in tube condensation. **6th International Conference of Heat Transfer**, v.2, p.459 - 464, 1978.

RUDY, T. M.; WEBB, R. L.. An analytical model to predict condensate retention on horizontal integral fin tubes. Journal of Heat Transfer, v.107, n.2, p.361-368, 1985.

RUDY, T. M.; WEBB, R. L. Condensate retention of horizontal integral-fin tubing. Advance in Enhance Heat Transfer, ASME HTD v.18, 1981.

SABOYA; F. E. M.; SPARROW, E. M. Local and average transfer coefficients for one row plate fin and tube heat exchanger. Journal of Heat Transfer, v.96, p.265-267, August, 1974.

SAFFAR-AVVAL, M.; DAMANGIR, E. A general correlation for determining optimum baffle spacing for all types of hsell and tube exchangers. **International Journal of Heat and Mass Transfer**, v.38, p.2501-2506, 1995.

SARDESAI, R. G. Ph D Thesis, University of Manchester, 1979.

SARMA, D.K.; MAYINGER, F. Condensation on vertical porous metal fins. Canadian Journal of Chemical Engineering, v.70, n.3, p.463-469, June 1992.

SCHARGE, R.W. Interphase Mass Transfer. Columbia University Press, 1953.

SHEKRILADZE, I. G.; GOMELAURI, V. I. Theoretical study of laminar film condensation of a flowing vapour. International Journal of Heat and Mass Transfer, v.9, p.581-591, 1966.

SHIRES, G. L. The influence of surface roughness on two-phase pressure drop. Winfrith **RDD Note** n.196, 1972.

SHLOVER, G. C.; GERASIMOV, A. V. Heat transfer of moving stream in coil-type heat exchangers, **Teploenergetika**, v.10, n.5, p.62 - 65, 1963.

SILVA, R. B.; GRECO, C.; YAMANE, E.; PICCIOTTI, G.; MILITZER, J; EGEA, M.; SZAJNBOK, M.; ESTON, N.E. Manual de Termodinâmica e Transmissão de Calor. Escola Politécnica da USP, São Paulo, 1972.

SILVER, L. Gas cooling with aquous condensation. **Transactions Institute of Chemical** Engineers, v.25, p.30-42, 1947.

SIMON, F. Physical Properties of Uranium Hexafluoride. Oxford University. Great Britain. July, 23, 1943.

SMALL, W. M.; YOUNG, R. K. Exchanger design cuts tube vibration failures; **Oil Gas** Journal, v.75, n.37, p.77 - 80, 1977.

SMILEY, S.H.; BRATER, D.C.; LITTLEFIELD, C.C.; PASHLEY, J.H. Quantitative recovery of uranium hexafluoride from a process gas steam. **Industrial Engineering Chemistry**, 51, p.191-196, 1959.

SPACKMAN, M. J.; ALDERTON, G. W.; OWEN, B. G. Physical Properties of Gaseous Uranium Hexafluoride. B.F.N.L. Report 787, 1978.

SPARROW, E. F.; REIPSCHNEIDER, L. G. Effect of interbaffle spacing on heat transfer and pressure drop in a shell and tube heat exchanger. Journal of Heat and Mass **Transfer**, v.29, n.11, p.1617-1628, November, 1986.

SPARROW. E.M. Experiments on natural convection heat transfer on the fin a finned horizontal tube. **International Journal of Heat and Mass Transfer**, v.23, n.11, p.1555-1560, November, 1980.

STEINMEYER, D.E. Fog formation in partial condersers. American Institute of Chemical Engineers Paper, 71st National Meeting 20-23 February 1972.

STEWART, R. E.; PROBE, R. Matrix calculation of multicomponent mass transfer in isothermal systems. Industrial Engineering Chemistry Fundamentals, v.3, p.224, 1964.

SUITOR, J.; MARNER, W.; RITTER, R. The history and status of research in fouling of heat exchangers in water service. **Canadian Journal of Chemical Engineering**, 35, 347, 1977.

SVEHLA, R. A Estimated viscosities and thermal condutivities of gases at high temperature. NASA TR-R 132, Lewis Research Center, Cleveland, 1962.

TABOREK, J. Design methods for heat transfer equipments:a critical surview of the state of art, in heat exchangers. In: **Design and Theory Sourcebook**, edited by McGraw Hill Book Company, p. 45- 74, 1974.

TABOREK, J., AOKI, T., RITTER, R. B., PALEN, J. W. KNUDSEN, J. G. Fouling: the major unresolved problem in heat transfer, **Chemical Engineering Progress**, v.68, n.2, p.59-67, 1972.

TANAWASA, I. Dropwise condensation: the way to practical applications. **Proceedings** of 6th Heat Transfer Conference, 6, 393 - 405, Washington D.C., 1978.

TAITEL, Y.; DUKLER, A. E. A model predicting transmition in horizontal and nearhorizontal gas-liquid flow. American Institute of Chemical Engineers Journal, v.22, n.1, p.47-55, 1976.

TAYLOR, W.; WALLACE, T. Kinetics of deposit formation from hydrocarbons. I. P. E. C. Products Development. V.7, n.3, p.199, 1968.

TAYLOR, R.; KRISHNAMURTHY, R.; FURNO, J.S.; KRISHINA, R. Condensation of vapour mixtures: 1- Nonequilibrium models and design procedures. **Industrial Engineering Chemical Process Design and Development**, v.25, n.1, p.83-97, January, 1986.

TEMA: Standards of Tubular Exchanger Manufactures Association. Tubular Exchanger Manufactures Association Inc., New York, Sixth Edition, 1978.

THODOS, G.; CHAEFER, C. A AIChE Journal, v.5, p.367, 1959. In: YAWS, C. L. **Physical Properties: A guide to the physical, thermodynamics and transport property data of industrially important chemical compounds**. McGraw Hill, New York, 1977.

THOMAS, A.; LORENZ, J. J.; HILLIS, D. A.; YOUNG, D. T.; SATHER, N. F. Performance tests of 1 MWT shell and tube exchangers of OTEC. Proceedings of 6th OTEC Conference, 2, 11.1 Washington D.C., 1979.

THOMAS, D. G. Enhancement of film condensation rate on vertical tubes by longitudinal fins. American Institute of Chemical Engineers Journal, v.14, p.644 - 649, 1968.

THOMAS, D. G. Enhancement of film condensation rate on vertical tubes by vertical wires. Industrial Engineering Chemistry Fundamentals, v.6, p.97 - 103, 1967.

THORNGREN, J. T. Predict exchanger tube damage, **Hydrocarbon Processing**, v. X, p. 129-131, April, 1970.

TOOR, H. L. Solution of the linearised equations of multicomponent mass transfer. American Institute of Chemical Enginnes Journal, v.10, n.4, p.448-460, 1964.

TOULOUKIAN, Y.S.; LILEY, P.E.; SAXENA, S.C. Thermophysical Properties of Matter, 2nd edition, IFI/Plenum, New York, 1970.

TRAVISS, D. P.; ROHSENOW, W. M. The influence of return bends on the downstream pressure drop and condensation heat transfer in tubes. **ASHRAE Transactions**, v.79, p.129-137, 1973.

UEDA, H.; TAKASHIMA, Y. Dessublimation of two-component vapors on the surface of na annular-tube cold trap. Journal of Chemical Engineering Japan, v.10, p.6, February, 1977.

VELKOFF, H. R.; MILLER, J. H. Condensation of vapor on a vertical plate with a transverse electrostatic field. Journal of Heat Transfer, v.87, p.197-201, 1965.

VRABLE, D. L.; YANG, W. J.; CLARK, J. A. Condensation of refrigerant 12 inside horizontal tubes with internalaxial fins. Japan Society of Mechanical Engineers, Heat Transfer, v.3, p.250 - 254, 1974.

WARD, D. J. How to design a multiple component partial condenser. **Petrochemical Engineering**, v.32, C - 42, 1960.

WATKINSON, A. P.; MARTINEZ, O. Scaling of heat exchanger tubes by calcium carbonate. Journal of Heat Transfer, Transaction of American Society of Mechanical Engineers, 76-HT-8, 1976.

WATKINSON, A.; EPSTEIN, N. Particulate fouling of sensible heat exchangers. 4th International Heat Transfer Conference. Versailles, France, 1970.

WATKINSON, A.; MARTINEZ, O. Transactions of American Society of Mechanical Engineers, Series C, Journal of Heat Transfer, (97), 504, 1975.

WATKINSON, A. & EPSTEIN, N. Gas oil in a sensible heat exchanger. Chemical Engineering Progress Symposium Series. v.65, n.95, p.84, 1969.

WEBB, R. L. Special furface geometries for heat transfer augmentation. In: **Developments in Heat Exchangers Technology** - D. Chisholm, Applied Science Publihsers Ltd. London, 1980.

WEBB, R. L.; GEE, D. L. Analytical predictions for a new concept spine-fin surface geometry. **AHSRAE Transactions**, v.85, pt 2, p.274-283, 1979.

WEBB,D.R.; DELL, A J.; ALCOCK, J.L.; STEVESON, R.W. Condensate sub-cooling in vertical and horizontal cooling condensers. International Engineering Research Event, 1, 226-22, 1996.

WEBB, D.R.; PANCHARL, C. D. The significances of multicomponent diffusional interactions in the process of condensation in the presence of a noncondensable gas. **HTFS Research Symposium**, Paper RS295. 1979.

WEBB, R.L.; RUDY, T.M. Prediction of the condensation coefficient on horizontal integral fin tubes. Journal of Heat Transfer, v.107, n.2, p.3 59-376, 1985.

WEBB, R.L.; FAHMER, M.; SCHWAAB, R. A comparion of the film and equilibrium methods of condenser design. International of Chemical Engineering Research and Event, v.1, p.211-213, 1996.

WECHSLER, M. T.; HOGE, H. J. Density of uranium hexa Iluoride. Journal Chemistry Physics. 17, 617-619. 1949 AECD-2301.

WECHSLER, M. T.; HOGE, H. J. Density of solid UF_6 mean the triple point and the expansivity of the liquid from the triple point at 92 °C. National Bureau of Standards. February, 25, 1943. A-465.

WEINSTOCK, B.; CRIST, R. H. The vapour pressure of unanium hexafluoride. Journal of Chem. Phys. v. 16, p.436-441, 1948.

WEINSTOCK, B.; WEAVER, E., E.; MALM, J., G. Vapour pressures of NpF₆ PuF₆; thermodynamics calculations with UF₆, NpF₆ and PuF₆. Joournal of Inorganic Nuclear Chemistry, v.11, p.104-114, 1959.

WEN, X.L.; BRIGGS, A; ROSE, J.W. Enhanced of condensation heat transfer on integral-fin tubes using radiused fin-root pillets. Journal of Enhanced Heat Transfer, v.1, n.2, p.211-217, 1994.

WILSON, J. L. The design of condensers by digital computers. Institution of Chemical Engineers, England 1972.

BROUWERS, H. J. H. N. A improved tangency condition for fog formation in cooler condensers. **International Journal of Heat and Mass Transfer**, v.34, n.9. p.2387-2394, September, 1991.

BROUWERS, H. J. H. Film models for transport phenomena with fog formation: the fog film model. International Journal of Heat and Mass Transfer, v.35, n.1, p.13-28, January 1992.

BROUWERS, H. J. H.; CHESTERS, A K. Film models for transport phenomena with fog formation: the chemical film model. International Journal of Heat and Mass Transfer, v.35, n.1, p.1-11, January 1992.

BROUWERS, H. J. H.; GELD, C. W. N. VAN DER. Heat transfer condensation of fog formation in crossflow plastic heat exchangers. International Journal of Heat and Mass Transfer, v.39, n.2, p.391-405, 1996.

BROWN, M.; MURPHY, E. G. Measurements of the self-difusion coefficient of uranium hexafluorine. **Transactions Faraday Society**, v. 515, n. 61, 1965.

BUTKOV, K.V.; ROZENBOUM, B. AhFKh, 24, 706, 1950. In: Ryss, I.G. Chemistry of Fluorine and its Inorganic Compouds.

BUTTERWORTH, D. Developments in the design of shell and tube condensers. ASME, November, 1977.

CARNAVOS, T. C. An experimental study: condensing R-11 on augmented tubes. ASME Paper, 80 - HT - 54, 1980. CARPENTER, E. F.; COLBOURN, A. P. The effect of vapor velocity on condensation inside tubes. **Proceedings of General Discussion of Heat Transfer**, I. Mech. ASME, 1951.

CHAMBERLAIN, L.N. Gleichungen zu den physikalischen Efgenschaften des UF_6 (1975)

CHANDRAN, R.; WATSON, F. A. Condensation on static and rotating pinned tubes. **Transactions Institute of Chemical Engineers**, v.54, p.65-72, 1976.

CHILTON, T. M.; COLBOURN, A. P. Design of cooler condensers for mixtures of vapours with non-condensing gases. Industrial Engineering Chemistry, v. 26, p.1178 - 1182, 1934.

CHOI, H. Y. Electrohydrodynamic condensation heat transfer. ASME Paper, 67 HT 39,1967.

CHOI, H. Y.; REYNOLDS, J. M. Study of electrostatic effects on condensing heat transfer. Air Force Flight Dynamics Laboratory,. TR-65-51`, 1966.

CHYU, M.; NATARAJAN, V. Heat transfer on the base surface of three dimensional protruding elements. International Journal of Heat and Mass Transfer, v.39, n.14, p.2925-2935, 1996.

CLAXTON, K. T.; COLLIER, J. G. Effects of corrosion product transport in fast reactors. **Proceedings on Liquid Alkali Metals**. Nottingham University, 4-6th April, p.290-300, 1973.

CLEAVER, J., W.; YATES, B. The effect of re-entrainment on particle deposition. Chemical Engineering Sciency, v.31, p.147-151, 1976.

CLEAVER, J. W.; YATES, B. Mechanism of detachment of colloidal particles from a plant substrate in turbulent flow. Journal of Colloidal and Interfacial Science, v. 44, p.464, September, 1973.

CLEAVER, J., W.; YATES, B. A sub-layer model for deposition of particles from a turbulent flow. Chemical Engineering Sciency, v.30, p.983, 1975.

COBO, M. J. L.; HERRANZ, L.; SANCHO, J.; TKACHENCKO, I. VERDU, G. Turbulent vapour condensation with noncondensable gases in vertical tubes. International Heat and Mass Transfer, v.39, n.15, p.3249-3260, 1996.

COHEN, P. Water Coolant Technology of Power Reactors. Gordon & Breach. 1969.

COHEN, P.; TAYLOR, G. R. Discussion of boiling heat transfer at low heat flux. **Transactions of American Society of Mechanical Engineers** (C), Journal of Heat Transfer, 89, 242, 1967.

COHEN, K. Theoretical considerations on liquid thermal diffusion experiments. SAM Laboratory. February, 5, 1953. A-531.

COLBURN, A. P.; EDISON, A. G. Prevention of fog in cooler condenser, Industrial Engineergin Chemistry, v. 33, p. 457, 1941.

COLBOURN, A., P. Industrial Engineering Chemistry, 26, 432, 1934.

COLBOURN, A., P.; DREW, T., B. The condensation of mixed vapors. **Transactions of American Institute of Chemical Engineers**, v.42, 197, 1937.

COLE, L.G. J. Chem. Phys., v.20, n.4, p.1148, 1952

COOPER, G.T.; RESNICK, I. Kellex Corporation, Report K2-245, October, 11, 1945

COX, R. B.; MATTA, G. A.; PASCAKE, E. A. S.; STROMBERG, K. G. Second report on horizontal tubes mutiples effect process pilot plants tests and design. Off. Saline Water Research and Development Report, n. 592, May, 1970.

CRESSWELL, O Cooling characteristics of a 12 t. feed container. British Nuclear Fuel Limited, BNFL 903, (CA), August, 1976.

CRITTENDEN, B.; KOLACSKOWSKI, S. Mass transfer and chemical kinetics in hydrocarbon fouling. **Proceedings of Conference Fouling-Art or Science**, 169, University Surrey, United Kingdon, 1979.

CUPTOR, I. Design of condensers for a mixture of vapours in the presence of gases which are uncondensable in a vacuum. **International Chemical Engineering**, v.31, n.3, p.553-563, July 1991.

DE MARCUS, P.; STARNES, M. P. The intermolecular interaction of UF₆ molecules. **Carbide and Carbon Chemicals Company**. K-1114, June, 23, 1954.

DENT, J. C. Effect of vibration on condensation heat transfer to a horizontal tube. **Proceedings of Institute of Mechanical Engineers**, v.184, p.99 - 105, 1969 - 1970.

DEO, P. V. Ph D THESIS, University of Manchester, 1979.

DEWITT, R. Uranium Hexafluoride: A survewy of the phsysico-chemical properties. Goodyear Atomic Corporation, Ohio, 1960. DHIR, V. K.; CASTLE, J. N.; CATTON, I. Role of Taylor instability on sublimation of a horizontal slab of dry ice. **Transactions of ASME SER C**, v.99, n.3, p.411-418, 1977.

DUCLER, A., E. Chemical Engineering Process, 62, October, 62, 1959.

DUNTHORN, D.I. The design of batch dessublimers in a process system development gaseous diffusion division. Union Carbide Corporation Nuclear Division, 1968.

EISSENBER, D.; BOGUE, D. Tests of an enhanced horizontal tube condenser under conditions of horizontal steam cross flow, Heat Transfer, I, HE 2.1, **Proceedings of 4th Internatinal Heat Transfer Conference**, 1970.

ENGLISH, K. G.; JONES, W. T.; SPILLERS, R. C.; ORR, V. Criteria of flooding and flooding correlations studies with a vertical updraft partial condenser; American Institute of Chemical Engineers 6 th National Heat Transfer Conference, 1963.

EPSTEIN, N. Fouling in heat exchangers, in **Proceedings Sixth. International Heat Transfer Conference**, Toronto, Canada, v.6, p.235-253, 1978.

FAN, L. T.; LIN, S. T.; AZER, N. Z. Surface renewal model of condensation heat transfer in tubes with in line static mixers. International Journal of Heat Mass Transfer, v.21, p.849 - 854, 1978.

FENNER, G. W.; RAGI, E. Enhanced tube inner surface device and method. U. S. Patent, 4,154,293, May, 1979.

FOWLER, R. D.; ANDERSON, H. C.; WEBER. C. E. The determination of the viscosity of gaseous UF₆. National Defense Research Committee, OSRD. November, 15, 1942. A-1398.

FRANK, O. Simplified design procedure for tubular exchangers in practical aspects for heat transfer; **Chemical Engineering Progress** Theonical Manual, ASME, 1978.

FRANCK, E.V.; WICKE, E.Z. Elektrochem., v.55, p.636, 1951. In: YAWS, C. L. **Physical Properties**: a guide to the physycal, thermodynamic and transport property data of industrially important chemical compounds. New York, N.Y.: McGraw Hill, 1977, p.66.

FU, W. S.; TSENG, C. C.; HUNAGI, C. S. Experimental study of the heat transfer enhancement of an outer tube with a inner tube insertation. **International Journal of Heat and Mass Transfer**, v.38, n.18, p.3443-3454, 1995

FUJII, T.; UEHARA, H.; KURATA, G. Laminar filmwise condensation of flowing vapour on a horizontal cylinder. International Journal of Heat and Mass Transfer, v. 15, p.235-246, 1972.

FUJII, T.; HONDA, H.; ODA, K. Condensation of steam on a horizontal tube-the influence of uncoming and thermal conduction at the wall. **10th. National Heat Transfer Conference**, San Diego, California, ASME AICHE, August 1979.

GAUNT, J. The infrared spectra and molecular structure of some group 6 hexafluorides. **Transactions of Faraday Society**, v.49, p.1122 - 1131, 1953.

GARDNER, K. A. Anticipation of operating problems in the design of heat transfer equipment, in **Heat Exchangers: Design and Theory Sourcebook**, edited by Afgan, N. e Schunder, E. U., McGraw Hill Book Company, 1974.

GARDNER, K.; TABOREK, J. Mean temperature difference: a reappraisal. American Institute of Chemical Engineers Journal, v.23, p.777-786, 1977.

GILLIES, W. Fouling and its control by chemical additivies in hydrocarbon streams. **Proceedings of Conference Fouling-Art or Science**, 188, University Surrey, United Kigdon, 1979.

GLASSNER, A The thermodynamic properties of the fluorides, chlorides, and oxides ot the elements to 2500^oK; Argone National Laboratory, (1958). In DeWitt R.; Uranium hexfluoride: a survey of the physico-chemical properties, Goodyear Atomic Corporation, Ohio, 1960.

GLICKSMAN, L. R.; MIKIC, B. B.; SNOW, D. F. Augmentation of film condensation on the outside of horizontal tubes. American Insitute of Chemical Engineers Journal, v.19, p.636 - 637, 1973.

GORELIKE, A G.; AMITIN, A V. Dessublimation in Chemical Industry. Khimiya, Moskwa, 1986

GRANT, I. D. R.; CHISHOLM, D. Two phase flow on the shell-side of a segmentally baflled shell and tube heat exchanger. American Society of Mechanical Engineers Paper 77 WA/HT 22, 1977.

GRANT, I. D.; COTCHIN, C. D. Submergence in baffled shell and tube heat exchangers. **Institute of Chemical Engineering Symposium Series**, v.86 n.1, p.673-683, 1984.

GRANT. I. D. R. Condenser performance-the effect of different arrangements for venting non-condensing gases. **British Chemical Engineers**, v.14, n.2, p.1709 - 1711, 1969.

GRECO, C.; BALDO, L.C.; OLIVEIRA, W.S.; ANDREATA, J. A .Relatórios técnicos sobre dessublimador: 1983 - 1986.

GREGORIG, R. Hautkondensation an Feingewellten Obserflachen Bei Berucksichting Der Oberflachenspannungen, Z. Angew. Math. Phys. 5, 36 - 49, 1954, in **Handbook of Heat Transfer Applications**, p. 3-28, McGraw Hill Book Company, N.Y. 1985.

GRIFFITH, P. Two-phase flow; **Handbook of Heat Transfer Fundamentals**, ed. W. M. Rohsenow, J. P. Hartnett e E. N. Ganic. chapter 13, McGraw Hill Book Company, 1985.

GUDMUNDSON, J.; BOTT, T. R. Deposition the geothermal constraint. Industrial Chemical Engineering Symposium Series. V.48, n.27, 1977.

GUDMUNDSON, J. Heat Transfer Fouling. Ph. D. Thesis. University of Birmingham. United Kingdon, 1975.

HAMPSON, H.; THAION, W. The effect of venting arrangements during the condensation on a horizontal tube from static vapor gas mixture. **Proceedings of 3d** International Heat Transfer Conference, v.2, p.118-129, 1966.

HARDIN; L. L.; DYER, D. F. Heat and mass transfer in beds of particulates under-going a sublimation dehydration. Journal of Heat Transfer, v.95, p.516-520, November, 1973.

HASSON, D.; ZAHAVI, J. Mechanism of calcium sulfate scale deposition on heat transfer surfaces. Industrial Engineering Chemistry Fundamentals, v.9, p.1-10, 1970.

HASSON, D.; AVRIEL R.; RESNICK W.; ROZENMAN T.; WINDREICH S. Mechanism of calcium carbonate scale deposition on heat transfer surfaces. Industrial Engineering Chemistry Fundamentals, v.7, n.1, p.59 65, 1968.

HAUSTER, R. H.; THALMAYER, C. E. Fouling and corrosion in feed efluent exchangers. in **40th Mid-Year Meeting of The American Petroleum Institute**, Chicago, May, 1975

HEI - Heat Exchange Institute

HESSELGREAVES, J. E.; MERCIER, P.; MOROS, T.; MANSUR, S. S.; McCOURT, M. New concepts in longitudinal flow shell and tube heat exchangers. Energy Efficiency in Process Technology. **Proceedings of the International Conference on Energy Efficiency in Process Technology**, p.641-652, 1993.

HO, C.Y.; POWELL, R.W.; LILEY, P.E. Journal of Physical Chemistry Ref. Data, v.8, n.21, p.279, 1972. In: YAWS, C. L. **Physical Properties**: a guide to the physical, thermodynamics and transport propertu data of industrially important chemical compounds. New York, N.Y., McGraw Hill, 1977, p.8.

HOARD, J. L.; STROUPE, J. D. The struture of crystalline uranium hexafluoride. Cornell University. March, 1944. A-1242.

HOLDEN, K.M.; WANNIARACHCHI, A S. The use of organic coatings to promote dropwise condensation of stream. Transactions of the American Society of Mechanical Engineers Series C, Journal of Heat Transfer, v.109, n.3, p.768-774, 1987.

HOLMES, R.C. in Chemical Engineer's Handbook. R.H. Perry, 3d edition, p. 686. McGraw Hill Book Company, New York, 1950.

HONG, S. W.; BERGLES, A. E. Augmentation of laminar flow heat transfer in tubes by means of twisted-tape inserts In Journal of Heat Transfer, v.98, p.251 - 256, 1976.

INTERNATIONAL CRITICAL TABLES, McGraw Hill Book Company, 1928

ISO International Standards Organization: Pressure Vessels Standards

JACOB, M. Heat Transfer. New York, John Wiley and Sons, 1957.

JASTER, H. E.; KOSKY, P. G. Condensation heat transfer in a mixed regime. International Journal of Heat Transfer, v.19, p.95 - 99, 1976.

JENSEN, L. D. Biofouling Control Procedures. Marcel Dekker Publishers, New York, 1977.

KANDA, E. Bulletin of Chemical Socitey of Japan, v.12, p.469-473, 1937. In: YAWS, C. L. **Physical Properties**: a guide to the physical, thermodynamics and transport property data of industially important chemical compounds. New York, N.Y., McGraw Hill, 1977, p.6.

KARAPANTSIOS, T. D.; KARABELAS, A J. Direct contact condensation in the presence of noncondensables over free falling films with intermittent liquid feed. **International Journal of Heat and Mass Transfer**, v.38, n.5, p.795-805, 1995.

KARAPANTSIOS, T. D.; KOSTOGLOV, M.; KARABELAS, A J. Local condensation rates of steam air mixtures in direct contact with a falling liquid film. International Journal of Heat and Mass Transfer, v.38, n.5, p.779-794, 1995.

KATZ, J. J.; RABINOWITCH, E. The Chemistry of Uranium. National Nuclear Energy Series. Divison VIII, Vol. 5. New York, McGraw Hill, 1951.

KATZ, D. L.; YOUNG, E. H. Condensing vapors of finned tubes in heat exchangers. **Petroleum Refiner**, v.33, n.11, p.175, 1954.

KAY, J. M. An Introduction to Fluid Mechanics and Heat Transfer: with applications in chemical and mechanical process engineering. 2 ^a ediction, John Wiley, 1963.

269

KEENE, J. W.; DAVIES, T. W.; GIBBONS, D. B. Flow distribution on the shellsides of a shell-and-tube heat exchangers. **Chemical Engineering Research and Design**, v.17, n.3, p.310-311, May 1993.

KERN, D. Process Heat Transfer. New York, McGraw Hill Book Company, 1950.

KERN, D. Q.; SEATTON, R. E. A theoretical analysis of thermal surface fouling. British Chemical Engineering, v.4, p.258-262, 1959.

KHAN, R.. A . Effect of vent rate, noncondensable loading and vent location on heat transfer in a large vertical tube buddle of a sea water evaporator. Symposium Special **Problems in Process Heat Transfer**, paper 14G, AIChE National Meeting, Dallas, 1972.

KIRCHENBAUM, L. Physical Properties of Uranium Hexafluoride. SAM Laboratories, October, 26, 1943.

KO, N. W.; WONG, P. F. Heat transfer from coaxial cylinders with stepwise changes in diameter. Transactions of the American Society of Mechanical Engineers Serie C, **Journal of Heat Transfer**, v.108, n.4, p.981-983, 1986.

KOSKY, P. G.; STAUB, F. W. Local condensation heat transfer coefficients in the annular flow regime. American Institute of Chemical Engineers Journal, v.17, n.5, p.1037-1043, 1971.

KREITH, F. **Principles of Heat Transfer**. Scranton, Pennsylvania, International Textbook Company, 3^a ediction 1976.

KIRSHENBAUM, I. Physical Properties of Uranium Hexafluoride. SAM Laboratory, a-753, 1943. KRISHNA, R. e STANDART, G. L. A Multicomponent Film Model Incorporing a General Matrix Method of Solution to the Maxwell - Stefan Equation, American Institute of Chemical Engineers Journal, 2, 22, 383, 1976.

KRISHNA, R.; STANDART, G. L. Mass and energy transfer in multicomponent system. **Chemical Engineering Communication**, v.3, p.201 - 275, 1979.

KRISHNA, R.; PANCHAL, C. B.; WEBB, D. R.; COWARD, I. As Ackermann - Colbourn and drew type analysis for condensation of multicomponent mixtures. Letters on Heat and Mass Transfer, v.3, n.2, p.163 - 172, 1976.

KRUPICSKA, R.; PHSCHNY, J. Mathematical modelling of the sublimation of phtalic anhydride. **Chemical Engineering and Processing**, v.28, n.1, p.29-34, August 1990.

KUMAR, P.; JUDD, R. L. Heat transfer with coiled wire turbulence promoters. Canadian Journal of Chemical Engineers, v.8, p.358 - 383, 1970.

LAWLER, D. Fouling by crude oil in refinery heat transfer exchangers. **Proceedings Conference Fouling-Art or Science**, 155, University Surrey, United Kigdon, 1979.

LEWIS, L. G.; SATHER, N. F. OTEC Performance tests of the Carnigie Mellon University vertical fluted tube condenser. **ANL OTEC PS 4**, Argone National Laboratory, May, 1979.

LLEWELLYN, D. R. Some physical properties of uranium hexafluoride. Journal Chemical Society, p.28-36, 1953.

LOPINA, R. F.; BERGLES, A. E. Heat transfer in tape generated sewirl flow of single - phase water. Journal of Heat Transfer, v.91, p.434 - 442, 1969.

LO PINTO, L. Fog formation in low temperature condensers. Chemical Engineering (International Edition), v.89, n.10, p.111-113, May, 1992.

LORD R. C.; MILTON, P. E; SLUSSER, R. P. Guide to trouble free heat exchangers. Chemical Engineering, Albany, v.77, 1970.

LORENZ, J. J.; YOUNG, D. T.;HILLIS, D. L.; SATHER, N. F. OTEC Performance test of the Cornegie-Mellon University vertical fluted-tube evaporator, **ANL/OTEC-PS-5** Argonne National Laboratory, July 1979.

LUDWIG, E. E. Applied Process Design for Chemical and Petroleum Plants, v.3. Gulf Publishing Company, 1965.

LUU, M. Augmentation of in-tube condensation of R - 113. PhD Thesis, Department of Mechanical Engineering, Iowa State University, 1979.

LUU, M.; BERGLES, A. E. A experimental study of the agmentation of the in-tube condensation of R-113. **ASHRAE Transactions**, v.85, n.2, p.132-146, 1979.

LUU, M.; BERGLES, A. E. Augmentation of in-tube condensation of R - 113 by means of surface roughness. **ASHRAE Transactions**, v. 87, pt 2, 1981.

MACBETH, R. V. Fouling in boiling water system. Tow-Phase Flow and Heat Transfer. Butterworth & Hewitt, 1977.

MAGNUSON, D. W. Microwave dielectric constant measurements. Journal Chemistry Physics, v.24, p.344-347, 1955.

MANN, G. M. W. Distribution of sodium choride and sodium hydroxide between steam and water dryout in a experimental once-through boiler. **Chemical Engineering Science**, v.30, n.2, p.249-260, 1975.

MANSFIELD, G. Some aspects of cooling water treatment. **Proceedings Conference Fouling-Art or Science**, 10. University Surrey, United Kigdon. 1979.

MARRIOTT, J. Condensation of mixed vapours: integral vs differencial. Heat Transfer Engineering, v.10, n.4, p.50-53, 1989.

MARTO, P. J.; REYLLY, R. J.; FENNER, J. H. An experimental comparison of enhanced heat transfer condenser tubing. Advances in Enhanced Heat Transfer, ASME PP 1 - 9, New York, 1979.

MASI, J. F. The heats of vaporization of uranium hexafluoride. Journal of Chemical Physics. V.17, p.755-758, 1949.

MASTERSON, H. G.; CASTLE, J. E.; MANN, G. M. W. Waterside corrosion of power station boiler tubes. Chemistry and Industry, p.1261-1266, September, 1969.

MATHESON GAS PRODUCTS, Fluorine. Technical Bulletin, Division of Will Toss, Inc., 1981.

MATHESON, W. F.; SMITH, J. C. Effect of sonic pulsation of forced convective heat transfer to air on film condensation isopropanol. **Chemical Engineering Progress Symposium Series**, v.41, n.59, p.173 - 179, 1979.

MAZZAROTTA, B.; SEBASTIANI, E. Process design of condensers for vapour mixtures in the presence of noncondensable gases. Canadian Journal of Chemical Engineering, v.73, n.4, p.456-461, August 1995.
MCADAMS, W.H. Chemical Engineering Progress, 46, p.125, 1950.

MCADAMS, W. H. Heat Transmission. New York, McGraw Hill Book Company, 1954, 3^a edition.

MCALLISTER, R. A.; EASTHAM, D. H.; DOUGHARTY, N. A.; HOLLIER, M. Corrosion, v.17, p.579-588, 1961.

MCMILLAN, J. A. Treatment of gaseous uranium hexafluorine by means of an inverse molecular force model. **Comission Nacional de Energia Atomica**; Physical Series, vol 1, No.3 1954.

MEDWELL, J. O.; NICOL, A. A. Surface roughness effects on condensate films. **ASME Paper**, 65 - HT- 43, 1965.

MEHTA, M. H.; RAO, M. R. Heat tansfer and frictional characteristics of spirally enhanced tubes for horizontal condenser. Advances in Enhanced Heat Transfer, p.11-21, ASME, 1979.

METZNER, A.; FRIEND, W. Theoretical analogies between heat, mass and momentum transfer. **Canadian Journal of Chemical Engineering**, 235, December 1958.

MILLER, G.M.; UNDERWOOD, M.E. Phtalic anhydride sublimation apparatus and method. **Patent U.S**. 3.705.6, 12 December, 1972.

MORETTI, P. M. A critical review of the literature on flow-induced vibration in heat exchangers. American Institute of Chemical Engineers, March, 1973.

MORI, Y.; HIJITAKA, K.; HIRASAWA, S.; NAKAYAMA, W., Optimized performance of condensers with outside condensing surfaces. Journal of Heat Transfer, v.103, p.96-102, 1981.

MORSE, R. W.; KNUDSEN, J. G. Canadian Journal of Chemical Engineering, 55, p.272-279, 1977.

MUELLER, A. C. Heat Exchangers, in, **Handbook of Heat Transfer**, edited by W. M. Rohsenow and Hartnett, chapter 18, 1 - 113, McGraw Hill Book Company, 1973.

MUKHERJEE, R. Use double-segmental baffles in shell-and-tube heat exchangers. **Chemical Engineering Progress**, v.88, n.11, p.47-51, November 1992.

MURPHY, and VANCE, Journal of Chemical Physics 7, 806, 1939.

MURTY, K.N. Vertical vs. horizontal condensers. **Chemical Engineering** International Edition, v.89, n.11, p.152, May, 1982.

MYERSON, A. L.; EICHER, J. H. The viscosity of gaseous uranium hexafluoride. Journal of American Society. v.74, p.2758-2761, 1952.

NAKAYAMA, W.; DAIKOKU, T.; KUWAHARA, H.; KAKIZAKI, K. High flux heat transfer surface "Thermoexcel", **Hitachi Review**, v.24, p.329 - 333, 1975.

NEY, E. P.; ARMISTEAD, J. H. The self-diffusion coeficient of uranium hexafluoride. **Physical Review**, v.71, p.14-19, 1947.

NEWSON, I. Studies of particulate deposition from flowing suspensions. Proceeding Conference Fouling-Art or Science, 35, United Kingdon, 1979.

NICOL, A. A.; MEDWELL, J. O. The effect of surface roughness on condensers steam. **Canadian Journal of Chemical Engineers**, v. 44, n.6, p.170 - 173, 1966.

NICOL, A. A.; BRYCE, A.; AHMED, A. S. A. Condensation of a horizontal flowing vapour on a horizontal cylinder normal to the vapour stream. **Proceedings 6th.** International Heat Mass Transfer Conference at Toronto, v.2, p.401-406, 1978.

NICOL, A A; AIDOUN, Z. L.; GRIBBEN, R. J.; WILKS, G. Heat transfer in the presence condensate drainage. International Journal Mutiphase Flow, v.14, n.3, p.349-359, May/June 1988.

NIER, A. O. The determination of the coefficient of thermal diffusion of uranium hexafluoride. University of Minnesota, May, 1941.

NOTARO, F. Enhanced Condensation Heat Transfer Device and Method. U. S. Patent, 4,154,294, May, 1979.

NUSSELT, W. Surface Condensation of Water Vapor. Z. Ver. DT. INg. V.60, n 27, p.541-546, 1916.

OLIVER, G. D.; MILTON, H. T.; GRISARD, J. W. The vapor pressure and critical constants of uranium hexafluoride. Journal American Chemical Society. v.75, p.2827-2829. 1953. K-722, AECD-3470.

PALEN J. W.; BREBER, G.; TABOREK, J. Predictions of flow regimes in horizontal tubeside condensation. American Institute of Chemical Engineers, 17th National Heat Transfer Conference, p.38, Salt Lake City, 1977.

PALEN, J.; CHAM, B.; TABOREK, J. Comparation of condensation of steam on plain and turbotec spirally grooved tubes in a baffled .**Heat Transfer Research**, Inc. Report 2439 - 300 - 6, January, 1977.

PALEN, J. W.; BREBER, G.; TABOREK, J. Prediction of flow regimes in horizontal tube side condensation. **Heat Tansfer Research**, Inc. Rep. 2439 - 3006, January, 1971.

PEREZ. J.A ; SPARROW, E.M. Determination of shell-side heat transfer coefficients by the naphtalne sublimation technique. **Heat Transfer Engineering**, v.6, p.19-30, 1985.

PERRY E CHILTON Chemical Engineers Handbook, 5 edition, McGraw Hill Book Company, N.Y, 1973.

POLLEY, G. T.; CALUS, W. F. The effect of condensate pattern on heat transfer during the condensation of binary mixtures of.. **6th International Heat Transfer Conference**, 2, Paper CS 16, Toronto, 1978.

PRICE, B. C.;BELL, K. J. Design of binary vapour condensers using the Colbourn Drew equations. American Institute of Chemical Engineers Symposium Series, v.7, n.138, p.267-272, 1974.

PRITCHARD, A. M. Heat exchanger fouling in British Industry. Fouling Prevention Research Digest, v.1, n.1-4, IV-VI, 1979.

REISBIG, R. L. Condensing Heat Transfer Agumentation Inside Splined Tubes. ASME Paper, 74 HT 7, July, 1974.

RELATÓRIOS DO PROCON; Relatórios do Arquivo Técnico do Projeto Conversão 1980 - 1990.

RIED, R. C.; SHERWOOD, T. K. The Properties of Gases and Liquids. McGraw Hill, New York, 1966.

RIFERT, V. G.; ZADIRAKA, V. Y. Steam condensation inside plain and profiled horizontal tubes. **Therm. Eng.** v.25, n.8, p.54 - 57, 1978.

ROBERTS, L. E. J. Viscosity of UF₆ Vapour at Room Temperature. Oxford University, Great Britain, July, 1944. Br-468.

ROETZEL, W.; LEE, D.W. Experimental investigation of leakage in shell-and-tube heat exchagners with segmental baffles. International Journal of Heat and Mass Transfer, v.36, p.3765-3771, 1993.

ROETZEL, W.; LEE, D.W. Effect of baffle/shell leakage flow on heat transfer in shelland-tube heat exchangers. **Experimental Thermal and Fluid Science**, v.8, p.10-20, 1994.

ROHSENOW, W. M.; HARTNETT, H. P. Handbook of Heat Transfer. New York. McGraw Hill Book Company, 1973.

ROHSENOW, W. M.; CHOI, H. Y. Heat, Mass, and Momentum Transfer. Prentice-Hall, New York 1961.

ROHSENOW, W. M.; HARTNETT, J. P.; GANIC, E. N. Handbook of Heat Transfer Applications. McGraw Hill Book Company, 2^a edition, 1985.

ROHSENOW, W. M.; HARTNETT, J. P. Handbook of Heat Transfer, McGraw Hill Book Company, 1973.

ROYAL, J. H.; BERGLES, A. E. Augmentation of horizontal in tube condensation by means of twisted tape inserts and internally. **Journal of Heat Transfer**, v.100, p.17-24, 1978.

ROYAL, J. H.; BERGLES, A. E. Pressure drop and performance evaluation of augmentation of augmentation in tube condensation. **6th International Conference of Heat Transfer**, v.2, p.459 - 464, 1978.

RUDY, T. M.; WEBB, R. L.. An analytical model to predict condensate retention on horizontal integral fin tubes. Journal of Heat Transfer, v.107, n.2, p.361-368, 1985.

RUDY, T. M.; WEBB, R. L. Condensate retention of horizontal integral-fin tubing. Advance in Enhance Heat Transfer, ASME HTD v.18, 1981.

SABOYA; F. E. M.; SPARROW, E. M. Local and average transfer coefficients for one row plate fin and tube heat exchanger. Journal of Heat Transfer, v.96, p.265-267, August, 1974.

SAFFAR-AVVAL, M.; DAMANGIR, E. A general correlation for determining optimum baffle spacing for all types of hsell and tube exchangers. **International Journal of Heat and Mass Transfer**, v.38, p.2501-2506, 1995.

SARDESAI, R. G. Ph D Thesis, University of Manchester, 1979.

SARMA, D.K.; MAYINGER, F. Condensation on vertical porous metal fins. Canadian Journal of Chemical Engineering, v.70, n.3, p.463-469, June 1992.

SCHARGE, R.W. Interphase Mass Transfer. Columbia University Press, 1953.

SHEKRILADZE, I. G.; GOMELAURI, V. I. Theoretical study of laminar film condensation of a flowing vapour. International Journal of Heat and Mass Transfer, v.9, p.581-591, 1966.

SHIRES, G. L. The influence of surface roughness on two-phase pressure drop. Winfrith RDD Note n.196, 1972.

SHLOVER, G. C.; GERASIMOV, A. V. Heat transfer of moving stream in coil-type heat exchangers, **Teploenergetika**, v.10, n.5, p.62 - 65, 1963.

SILVA, R. B.; GRECO, C.; YAMANE, E.; PICCIOTTI, G.; MILITZER, J; EGEA, M.; SZAJNBOK, M.; ESTON, N.E. Manual de Termodinâmica e Transmissão de Calor. Escola Politécnica da USP, São Paulo, 1972.

SILVER, L. Gas cooling with aquous condensation. **Transactions Institute of Chemical Engineers**, v.25, p.30-42, 1947.

SIMON, F. Physical Properties of Uranium Hexafluoride. Oxford University. Great Britain. July, 23, 1943.

SMALL, W. M.; YOUNG, R. K. Exchanger design cuts tube vibration failures; **Oil Gas Journal**, v.75, n.37, p.77 - 80, 1977.

SMILEY, S.H.; BRATER, D.C.; LITTLEFIELD, C.C.; PASHLEY, J.H. Quantitative recovery of uranium hexafluoride from a process gas steam. **Industrial Engineering Chemistry**, 51, p.191-196, 1959.

SPACKMAN, M. J.; ALDERTON, G. W.; OWEN, B. G. Physical Properties of Gaseous Uranium Hexafluoride. B.F.N.L. Report 787, 1978.

SPARROW, E. F.; REIPSCHNEIDER, L. G. Effect of interbaffle spacing on heat transfer and pressure drop in a shell and tube heat exchanger. Journal of Heat and Mass Transfer, v.29, n.11, p.1617-1628, November, 1986.

SPARROW. E.M. Experiments on natural convection heat transfer on the fin a finned horizontal tube. **International Journal of Heat and Mass Transfer**, v.23, n.11, p.1555-1560, November, 1980.

STEINMEYER, D.E. Fog formation in partial condersers. American Institute of Chemical Engineers Paper, 71st National Meeting 20-23 February 1972.

STEWART, R. E.; PROBE, R. Matrix calculation of multicomponent mass transfer in isothermal systems. Industrial Engineering Chemistry Fundamentals, v.3, p.224, 1964.

SUITOR, J.; MARNER, W.; RITTER, R. The history and status of research in fouling of heat exchangers in water service. **Canadian Journal of Chemical Engineering**, 35, 347, 1977.

SVEHLA, R. A Estimated viscosities and thermal condutivities of gases at high temperature. NASA TR-R 132, Lewis Research Center, Cleveland, 1962.

TABOREK, J. Design methods for heat transfer equipments:a critical surview of the state of art, in heat exchangers. In: **Design and Theory Sourcebook**, edited by McGraw Hill Book Company, p. 45-74, 1974.

TABOREK, J., AOKI, T., RITTER, R. B., PALEN, J. W. KNUDSEN, J. G. Fouling: the major unresolved problem in heat transfer, **Chemical Engineering Progress**, v.68, n.2, p.59-67, 1972.

TANAWASA, I. Dropwise condensation: the way to practical applications. **Proceedings** of 6th Heat Transfer Conference, 6, 393 - 405, Washington D.C., 1978.

TAITEL, Y.; DUKLER, A. E. A model predicting transmition in horizontal and nearhorizontal gas-liquid flow. American Institute of Chemical Engineers Journal, v.22, n.1, p.47-55, 1976.

TAYLOR, W.; WALLACE, T. Kinetics of deposit formation from hydrocarbons. **I. P. E. C. Products Development**. V.7, n.3, p.199, 1968.

TAYLOR, R.; KRISHNAMURTHY, R.; FURNO, J.S.; KRISHINA, R. Condensation of vapour mixtures: 1- Nonequilibrium models and design procedures. **Industrial Engineering Chemical Process Design and Development**, v.25, n.1, p.83-97, January, 1986.

TEMA: Standards of Tubular Exchanger Manufactures Association. Tubular Exchanger Manufactures Association Inc., New York, Sixth Edition, 1978.

THODOS, G.; CHAEFER, C. A AIChE Journal, v.5, p.367, 1959. In: YAWS, C. L. **Physical Properties: A guide to the physical, thermodynamics and transport property data of industrially important chemical compounds**. McGraw Hill, New York, 1977.

THOMAS, A.; LORENZ, J. J.; HILLIS, D. A.; YOUNG, D. T.; SATHER, N. F. Performance tests of 1 MWT shell and tube exchangers of OTEC. Proceedings of 6th OTEC Conference, 2, 11.1 Washington D.C., 1979.

THOMAS, D. G. Enhancement of film condensation rate on vertical tubes by longitudinal fins. American Institute of Chemical Engineers Journal, v.14, p.644 - 649, 1968.

THOMAS, D. G. Enhancement of film condensation rate on vertical tubes by vertical wires. Industrial Engineering Chemistry Fundamentals, v.6, p.97 - 103, 1967.

THORNGREN, J. T. Predict exchanger tube damage, **Hydrocarbon Processing**, v. X, p. 129-131, April, 1970.

TOOR, H. L. Solution of the linearised equations of multicomponent mass transfer. American Institute of Chemical Enginnes Journal, v.10, n.4, p.448-460, 1964.

TOULOUKIAN, Y.S.; LILEY, P.E.; SAXENA, S.C. Thermophysical Properties of Matter, 2nd edition, IFI/Plenum, New York, 1970.

TRAVISS, D. P.; ROHSENOW, W. M. The influence of return bends on the downstream pressure drop and condensation heat transfer in tubes. **ASHRAE Transactions**, v.79, p.129-137, 1973.

UEDA, H.; TAKASHIMA, Y. Dessublimation of two-component vapors on the surface of na annular-tube cold trap. Journal of Chemical Engineering Japan, v.10, p.6, February, 1977.

VELKOFF, H. R.; MILLER, J. H. Condensation of vapor on a vertical plate with a transverse electrostatic field. Journal of Heat Transfer, v.87, p.197-201, 1965.

VRABLE, D. L.; YANG, W. J.; CLARK, J. A. Condensation of refrigerant 12 inside horizontal tubes with internalaxial fins. Japan Society of Mechanical Engineers, Heat Transfer, v.3, p.250 - 254, 1974.

WARD, D. J. How to design a multiple component partial condenser. **Petrochemical Engineering**, v.32, C - 42, 1960.

WATKINSON, A. P.; MARTINEZ, O. Scaling of heat exchanger tubes by calcium carbonate. Journal of Heat Transfer, Transaction of American Society of Mechanical Engineers, 76-HT-8, 1976.

WATKINSON, A.; EPSTEIN, N. Particulate fouling of sensible heat exchangers. 4th International Heat Transfer Conference. Versailles, France, 1970.

WATKINSON, A.; MARTINEZ, O. Transactions of American Society of Mechanical Engineers, Series C, Journal of Heat Transfer, (97), 504, 1975.

WATKINSON, A. & EPSTEIN, N. Gas oil in a sensible heat exchanger. Chemical Engineering Progress Symposium Series. v.65, n.95, p.84, 1969.

WEBB, R. L. Special furface geometries for heat transfer augmentation. In:
Developments in Heat Exchangers Technology - D. Chisholm, Applied Science
Publihsers Ltd. London, 1980.

WEBB, R. L.; GEE, D. L. Analytical predictions for a new concept spine-fin surface geometry. AHSRAE Transactions, v.85, pt 2, p.274-283, 1979.

WEBB,D.R.; DELL, A J.; ALCOCK, J.L.; STEVESON, R.W. Condensate sub-cooling in vertical and horizontal cooling condensers. **International Engineering Research Event**, 1, 226-22, 1996.

WEBB, D.R.; PANCHARL, C. D. The significances of multicomponent diffusional interactions in the process of condensation in the presence of a noncondensable gas. **HTFS Research Symposium**, Paper RS295. 1979.

WEBB, R.L.; RUDY, T.M. Prediction of the condensation coefficient on horizontal integral fin tubes. Journal of Heat Transfer, v.107, n.2, p.369-376, 1985.

WEBB, R.L.; FAHMER, M.; SCHWAAB, R. A comparion of the film and equilibrium methods of condenser design. International of Chemical Engineering Research and Event, v.1, p.211-213, 1996.

WECHSLER, M. T.; HOGE, H. J. Density of uranium hexafluoride. Journal Chemistry Physics. 17, 617-619. 1949 AECD-2301.

WECHSLER, M. T.; HOGE, H. J. Density of solid UF_6 near the triple point and the expansivity of the liquid from the triple point at 92 °C. National Bureau of Standards. February, 25, 1943. A-465.

WEINSTOCK, B.; CRIST, R. H. The vapour pressure of uranium hexafluoride. Journal of Chem. Phys. v.16, p.436-441, 1948.

WEINSTOCK, B.; WEAVER, E., E.; MALM, J., G. Vapour pressures of NpF₆ PuF₆; thermodynamics calculations with UF₆, NpF₆ and PuF₆. Journal of Inorganic Nuclear Chemistry, v.11, p.104-114, 1959.

WEN, X.L.; BRIGGS, A; ROSE, J.W. Enhanced of condensation heat transfer on integral-fin tubes using radiused fin-root pillets. Journal of Enhanced Heat Transfer, v.1, n.2, p.211-217, 1994.

WILSON, J. L. The design of condensers by digital computers. Institution of Chemical Engineers, England 1972.

WITHERS, J. G.; YOUNG, E. H. Steam condensing on vertical rows of horizontal corrugated and plaintubes. Industrial Engineering Chemical Process Resourch and Development, v.10, p.19-30, 1971.

YAU, K.K.; COOPER, J.R. Horizontal plain and low-finned condenser tubes effect of fin spacing and drainage strips on heat transfer and condensate retention. **Transactions of the American Society of Mechanical Engineers Serires** C, Journal of Heat Transfer, v.15, n.4, p.946-950, 1986.

YAU, K.K.; COOPER, J.R. Effect of fin spacing on the performance of horizontal integral fin condenser tubes. Journal of Heat Transfer, v.107, n.2, p.377-383, 1985.

YAWS, C. L. **Physical Properties**: a guide to the physical, thermodynamic and transport propeties data of industrially important chemical compounds. New York, N.Y. McGraw-Hill, 1977.

YOUNG, E., H.; WARD, D., J., How to design finned tube shell and tube heat exchangers, Part 2. In: Heat Exchangers Theory and Practice, Hemisphere Publishing Company, 1983.

ZIVI, S. M. Estimation of steady state steam void fraction by means of the principle of minimum entropy product. Journal of Heat and Mass Transfer. Transaction ASME, Series C, v. 86, p.247-252, 1964.