



**INSTITUTO DE ENGENHARIA NUCLEAR**

**RT-IEN- 04/2010**

**Unidade de Produção de Traçador Radioativo Gasoso**

por

***Ricardo Elias de Miranda Candeiro\**, *Luis Eduardo Barreira  
Brandão\* e Virginia Reis Crispim\*\****

***\*Instituto de Engenharia Nuclear – IEN/CNEN***

***\*\*Universidade Federal do Rio de Janeiro – PEN/COPPE/UFRJ***

**Junho/2010**

NOTA  
ESTE RELATÓRIO É PARA USO EXCLUSIVO DO INSTITUTO DE  
ENGENHARIA NUCLEAR

O direito a utilização de informações relacionadas ao trabalho de pesquisa realizado no IEN é limitado aos servidores da CNEN e pessoal de organizações associadas, nos limites dos termos contratuais que regem os respectivos convênios. O conteúdo dos relatórios não pode ser separado ou copiado sem autorização escrita do IEN.



Título: Unidade Produtora de Traçadores Radioativos Gasosos				
Autor(es): Ricardo Elias de Miranda Candeiro, Luis Eduardo Barreira Brandão e Verginia Reis Crispim				e-mail: <a href="mailto:ricardocandeiro@ien.gov.br">ricardocandeiro@ien.gov.br</a> <a href="mailto:brandao@ien.gov.br">brandao@ien.gov.br</a>
Identificação:	Nº de páginas: 13	Tipo de Divulgação: Irrestrita (X) Restrita ( )	Divulgar para:	Localização:
Publicação externa associada (congresso/periódico):				
Palavras chave: Radiotraçador gasoso, gasodutos, brometo de metila, unidade compacta				
Resumo: O objetivo do trabalho foi o desenvolvimento de uma unidade compacta para a produção do radiotraçador gasoso chamado brometo de metila, CH <sub>3</sub> Br, que foi marcado com <sup>82</sup> Br, a partir do sal irradiado de KBr. O gás é produzido e empregado próximo do sistema inspecionado, minimizando a possibilidade de contaminação radiológica e garantindo um transporte seguro para o material irradiado. O gás foi produzido através de dois métodos de síntese: metanol/ácido sulfúrico e sulfato de dimetila com rendimento médio de extração de 70 % e 88 %, respectivamente.				
Abstract: The objective this work was the development of a compact unit for production of the gaseous radiotracer called methyl bromide, CH <sub>3</sub> Br, it was marked with <sup>82</sup> Br, through KBr irradiated salt. The gas is produced and employed next the inspection system, minimizing the possibility of radiological contamination and assuring a safe transport for the irradiated material. The gas CH <sub>3</sub> <sup>82</sup> Br was produced by two syntheses: one using methanol/sulfuric acid and the second using dimethyl sulphate, with total efficiency of the extraction around 70 % and 88 %, respectively.				
Emissão		Nome	Rubrica	Data
Data:	Elaboração:	Ricardo Elias de M. Candeiro		
Divisão:	Revisão:	Luis E. Barreira Brandão		
Serviço:	Aprovação :	Ana Maria Silveira Braghirolli		
Instituto de Engenharia Nuclear: Via 5 s/n, Cidade Universitária, Ilha do Fundão, CEP 21945-970, CP 68.550, Rio de Janeiro – RJ - Brasil . Tel.: 00 55 21 2209-8080      Internet: <a href="http://www.ien.gov.br">www.ien.gov.br</a>				

## I. INTRODUÇÃO

Com a crescente participação do gás natural na matriz energética brasileira e o aumento no número de agentes envolvidos nas operações de produção, transporte e distribuição de gás natural ao longo de diferentes malhas de gasodutos, tornou-se crucial o investimento em medição de vazão e na identificação de problemas, como: vazamentos e obstruções, que ocorrem ao longo da malha de dutos. Através da detecção desses problemas, a probabilidade de um vazamento ou de um duto obstruído é minimizada, conseqüentemente inibindo o risco de uma explosão e incêndio nos arredores do gasoduto [1].

Grandes quantidades de gás naturais são transportadas, no Brasil, entre terminais situados em diferentes estados, através de dutos, que são de fundamental importância para o crescimento do país. Por diversas razões, que incluem, desde importância estratégica do gás natural, até o risco que essa atividade representa, não só para a população, mas também para o meio ambiente, o transporte foi regulamentado e fiscalizado em todo o mundo [1].

Vários países, já preocupados com o impacto ambiental e a possível perda de matéria-prima, investem em equipamentos e mão-de-obra especializados, na detecção de vazamentos e na manutenção de suas dutovias [2, 3]. Essa preocupação é crescente em todos os setores de petróleo e gás natural. Com o propósito de desenvolver um procedimento que permita a avaliação *in situ* de possíveis problemas operacionais, desenvolveu-se metodologia que emprega traçadores radioativos na avaliação de dutovias.

A disponibilidade de uma grande diversidade de métodos de produção de traçadores radioativos proporcionou um avanço no emprego de técnicas nucleares para o monitoramento e avaliação de unidades industriais. Em todo o mundo, diversos trabalhos ilustram o sucesso da implementação das aplicações de traçadores radioativos em diferentes campos da indústria, particularmente nos casos em que devido às impossibilidades tecnológicas (acesso difícil, amostragens complexas, sistemas complexos) os procedimentos convencionais não podem ser aplicados [4].

Destaca-se ainda como uma grande vantagem desta metodologia à possibilidade de serem efetuadas intervenções, sem influenciar na operação normal da instalação, o que não ocorria nos estudos iniciais de detecção de vazamento, onde tratavam das operações com uma preventiva parada dos dutos, o que trazia diversos prejuízos financeiros e inconvenientes para a operadora, não apresentando naquele momento caráter ou preocupação preventiva com relação a danos ambientais e eventuais acidentes pessoais [4].

Considerando a importância dos sistemas de transporte de material gasoso e a aferição e calibração de medidores de vazão em gasodutos, o objetivo principal deste trabalho foi desenvolver uma unidade compacta, para a produção do radiotraçador gasoso brometo de metila,  $\text{CH}_3^{82}\text{Br}$ , no próprio local de trabalho, com a síntese efetuada a partir de um composto sólido KBr previamente irradiado. A principal característica da unidade compacta é permitir que o gás produzido em seu interior seja diretamente injetado no sistema de transporte de material gasoso [4].

## II. MATERIAIS E MÉTODOS

### II.1. PROJETO E CONSTRUÇÃO DA UNIDADE COMPACTA PARA PRODUÇÃO DE $\text{CH}_3^{82}\text{Br}$

Como o traçador gasoso será empregado na avaliação de unidades que se localizam em regiões onde geralmente o transporte de um gás radioativo pode causar certo transtorno, o principal objetivo da construção da unidade compacta foi a possibilidade de efetuar a síntese do traçador gasoso  $\text{CH}_3^{82}\text{Br}$  no próprio local de inspeção com a unidade de síntese diretamente acoplada ao sistema a ser avaliado.

O projeto e a confecção da unidade compacta foram realizados na oficina mecânica do Instituto de Engenharia Nuclear (IEN/CNEN) e os detalhes do conjunto são mostrados na figura 1.

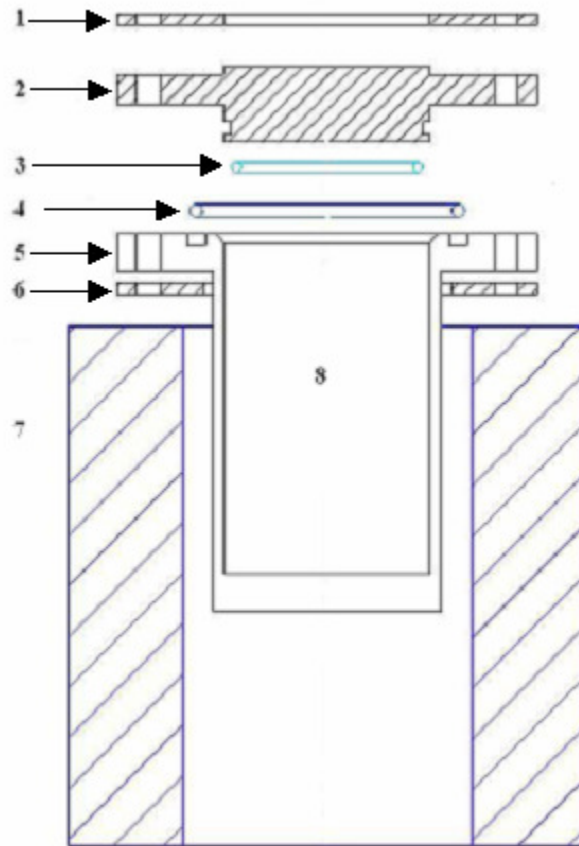


Figura 1. Desenho esquemático do conjunto da unidade compacta. 1. Flange superior; 2. Tampa; 3. Anel de vedação externo; 4. Anel de vedação interno; 5. Base do anel de vedação; 6. Flange inferior; 7. Castelo de chumbo; 8. Vaso da unidade produtora de gás.

No projeto da unidade compacta, foi necessário estudar fatores que garantissem a segurança radiológica do operador e a certeza que não ocorra alguma liberação de gás radioativo como: a forma

geométrica da unidade; a proteção mecânica; o tipo de material empregado; blindagem do vaso de reação; o sistema de injeção e transporte do gás radioativo. A unidade é composta por três conjuntos independentes: o primeiro é o vaso de reação, onde à síntese do gás ocorre; o segundo, o sistema de proteção mecânica que garante a blindagem e proteção radiológica do operador; e o terceiro o sistema de injeção e transporte do gás.

Todo o vaso de reação tem forma cilíndrica e foi construído em TEFLON, pois este material é inerte e não reage com nenhum dos produtos empregados na síntese do  $\text{CH}_3^{82}\text{Br}$  e também possibilita o emprego de temperatura da ordem de 240 °C. Além disso, é de fácil descontaminação podendo ser reutilizado em outras sínteses.

O volume interno do vaso de reação é de  $190 \text{ cm}^3$  ( $\phi_{\text{int}} = 55 \text{ mm}$ ,  $h = 80 \text{ mm}$ ), com paredes laterais e base com espessuras respectivamente de 3 mm e de 10 mm. A face superior tem-se um flange com 10 mm de espessura cuja finalidade é apoiar o conjunto de vedação do vaso de reação. Esta tampa, também confeccionada em TEFLON foi posicionada na abertura do vaso de reação e para garantir a vedação, entre a base e a tampa existe um anel de VITON. E um segundo anel de vedação foi utilizado mais internamente com o objetivo de garantir maior segurança na produção do gás. Todo conjunto é mostrado na figura 2.

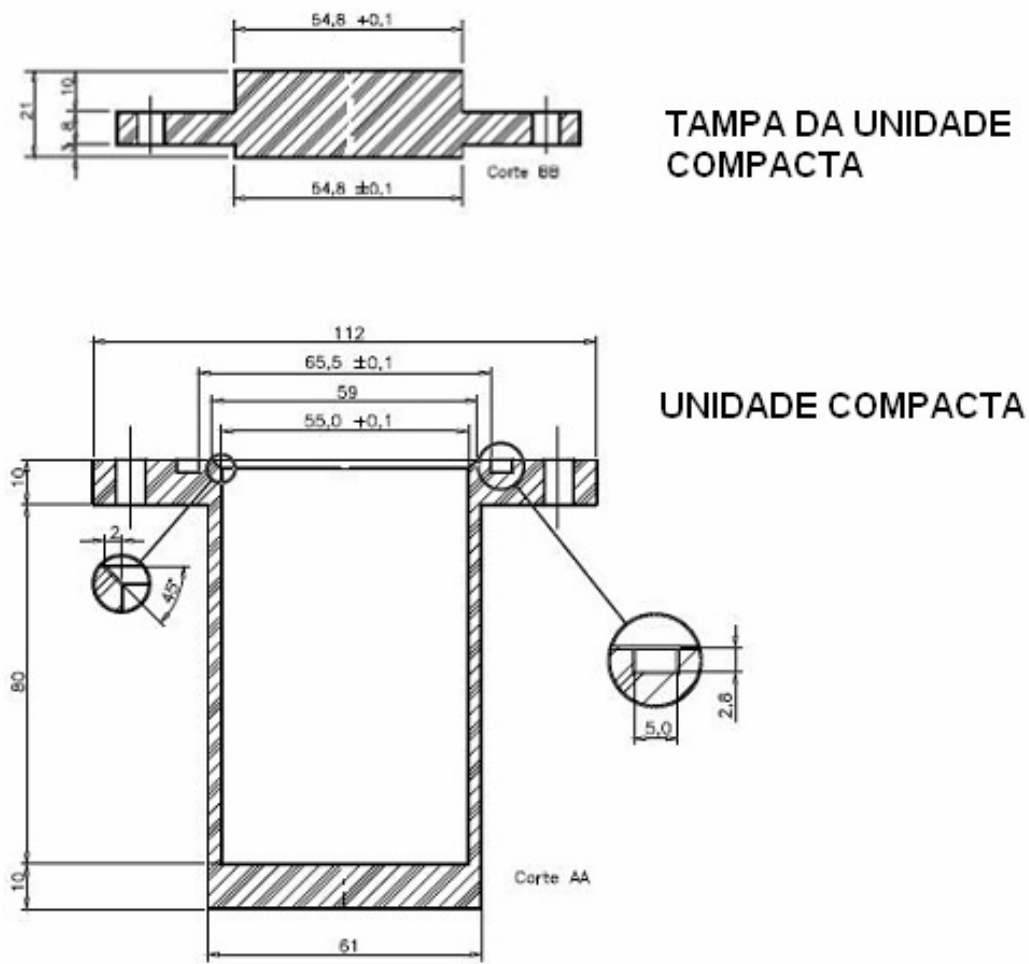


Figura 2. Desenho esquemático da vista lateral do recipiente da unidade compacta e da tampa da unidade.

Para que a síntese ocorra, é necessário fornecer calor ao sistema e, assim foi instalada ao redor da parede lateral do vaso de reação uma resistência de Ni/Cr que foi alimentada por uma tensão alternada provinda de um variador de tensão (VARIAC - Modelo TDGC-05; Tipo 0,5 KVA) que de acordo com a tensão aplicada sobre a resistência, obtém-se o aumento gradativo da temperatura desejada.

Como sistema de segurança todo o conjunto do vaso de reação é envolto por uma proteção mecânica confeccionada em ferro galvanizado com espessura de 1/8". A finalidade dessa proteção é dar maior rigidez ao sistema de síntese, principalmente a tampa do conjunto. Para fechar a unidade são utilizados seis parafusos de aço inox de 1/4" distanciados entre si por um ângulo de 60°. Para garantir a proteção radiológica do operador é usada uma proteção de chumbo ( $\phi_{ext} = 178,70$  mm,  $\phi_{int} = 76,85$  mm,  $h = 138,50$  mm) que envolve todo o conjunto de síntese. Todo o sistema de proteção é mostrado na figura 3.



Figura 3. Castelo de chumbo acoplado a unidade compacta

Para a entrada do sal  $K^{82}Br$  e para a saída do gás  $CH_3^{82}Br$ , foram fixados à tampa duas conexões, para transporte de gases, de 1/4" que permitem o acoplamento com dutos. Para alimentação de reagentes no vaso de reação (válvula 1) e gás arraste (válvula 2) foi empregada uma conexão em T, e para a exaustão do traçador radioativo  $CH_3^{82}Br$  foi empregada uma conexão simples (válvula 3). Em todas as saídas existe uma

válvula de controle que permite a abertura e o fechamento da entrada. Na produção do gás  $\text{CH}_3^{82}\text{Br}$ , quando a solução de  $\text{K}^{82}\text{Br}$  4 M entra na unidade, a primeira e a terceira válvula são abertas, a segunda é fechada. Depois de adicionada a solução, todas as válvulas são fechadas e a unidade começa a ser aquecida. Após o gás ser produzido somente a válvula 3 é aberta. Para o transporte dos gases são empregados tubos flexíveis de nylon. Este conjunto é mostrado na figura 4.



Figura 4. “Fotografias das vistas laterais da unidade compacta desacoplada e acoplada à tampa, mostrando as duas conexões em painel de 1/4”.

### III. RESULTADOS E DISCUSSÃO

#### III.1. ENSAIOS REALIZADOS COM A UNIDADE COMPACTA

O projeto e a construção da unidade compacta foram fundamentados nos resultados obtidos com as sínteses realizadas nos ensaios com a unidade em vidro [4]. Desta forma, foram estabelecidos alguns parâmetros técnicos para a unidade compacta.

Nos ensaios realizados com a unidade compacta, algumas adaptações, em relação ao conjunto em vidro, foram feitas a saber: no lugar da placa de aquecimento foi utilizada uma resistência metálica de Ni/Cr alimentada por um variador de tensão (VARIAC), e para a remoção do  $\text{CH}_3^{82}\text{Br}$ , foi empregado um

compressor de ar seco. Como os resultados mostraram um rendimento de extração do gás radioativo mediante uso de reagente em excesso, dispensou-se o emprego de um condensador na unidade compacta.

Para a determinação do rendimento de extração do gás radioativo foi empregado um detector cintilador NaI (2 x 2)", colimado, com abertura de 0.5 cm e a 10 cm de distância, de forma a registrar somente os eventos correspondentes à emissão da radiação gama presente na fase líquida da unidade.

Em todos os testes, inicialmente, procedeu-se à adição dos reagentes líquidos sob agitação mecânica e, posteriormente, à adição da solução aquosa do sal irradiado e a variação da temperatura na unidade compacta. Entre cada operação foi considerado um tempo de 10 minutos.

Todos os ensaios envolvendo a unidade compacta foram realizados dentro de uma caixa de luvas com uma geometria no formato de um trapézio onde as dimensões são: altura 20 cm, base menor 30 cm e base maior 50 cm, e contendo filtros específicos para retenção de bromo tanto na forma inorgânica como na forma orgânica. Supondo um vazamento de todo o radiotraçador gasoso dentro da caixa de luvas, empregando a atividade de 20 MBq, a atividade específica seria de  $0,96 \text{ kBq/cm}^3$ .

### **III.2. TESTE EMPREGANDO-SE O MÉTODO DA VIA DE SINTESE DO SULFATO DE DIMETILA**

Dois ensaios foram realizados com o sal irradiado, U1 e U2, com o objetivo de se determinar a quantidade extraída de gás através da unidade compacta.

A figura 5 mostra a curva de resposta normalizada para o ensaio U1, onde se verificou um problema estrutural na unidade compacta: um pequeno vazamento entre a tampa e a base da unidade.

Em  $t = 10$  minutos, o sinal do detector apresentou uma abrupta subida, indicando a entrada do sal radioativo, seguido de um pequeno patamar, entre  $t = 10$  minutos e  $t = 15$  minutos, enquanto a temperatura não atingia o valor de  $80 \text{ }^\circ\text{C}$ . Entre  $t = 16$  minutos e  $t = 22$  minutos, ocorreu um pequeno decréscimo no sinal do detector, indicando que o gás gerado estava sendo liberado da fase líquida. Entre  $t = 22$  minutos e  $t = 34$  minutos, observou-se uma repentina queda do sinal, indicando que houve remoção do  $\text{CH}_3^{82}\text{Br}$ , porém, a válvula 3 não havia sido aberta, foi confirmado a existência de um vazamento de gás. A válvula 3 só foi aberta em  $t = 35$  minutos, quando houve a liberação de mais gás devido a diminuição do sinal registrado pelo detector 1. Em  $t = 38$  minutos, a válvula foi novamente fechada, resultando num sinal constante, indicando que nenhum material estava sendo removido. Em  $t = 50$  minutos, a temperatura foi elevada para  $90 \text{ }^\circ\text{C}$  e a unidade, pressurizada por 5 minutos. Em seguida, novamente a válvula foi aberta e nenhuma variação significativa do sinal ocorreu.

A curva de resposta do detector 1 indicou a existência de vazamento, que foi comprovado, realizando-se dois testes, um dos testes foi com a unidade compacta mergulhada em um tanque de água e pressurizada a 5 atm. O teste constatou um vazamento entre a tampa e a base da unidade. O outro teste foi apenas para verificar se houve liberação do radiotraçador gasoso para a atmosfera e através do sinal medido



do filtro pelo detector, foi analisado que a quantidade retida de  $^{82}\text{Br}$  foi bastante pequena, pois o nível do sinal estava praticamente igual a radiação de fundo. Assim, de acordo com os dois testes, a unidade foi reparada e, após um novo teste de pressão, realizado nas mesmas condições do primeiro ensaio, e nenhum vazamento foi detectado.

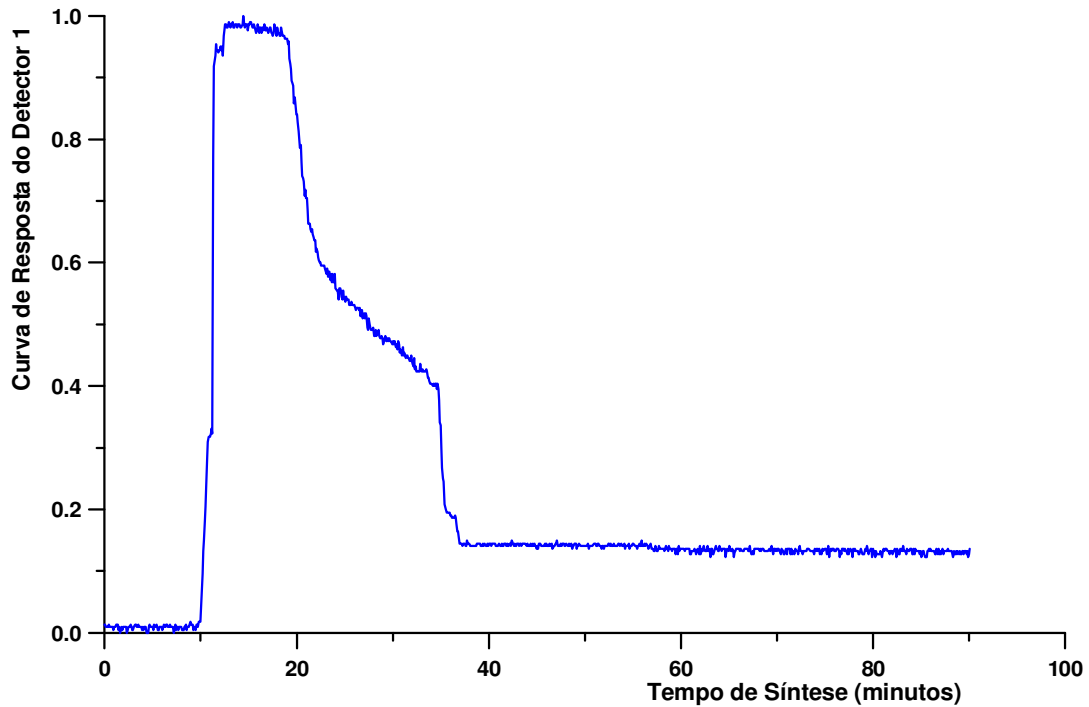


Figura 5. Curva de resposta do detector 1 usado no ensaio U1.

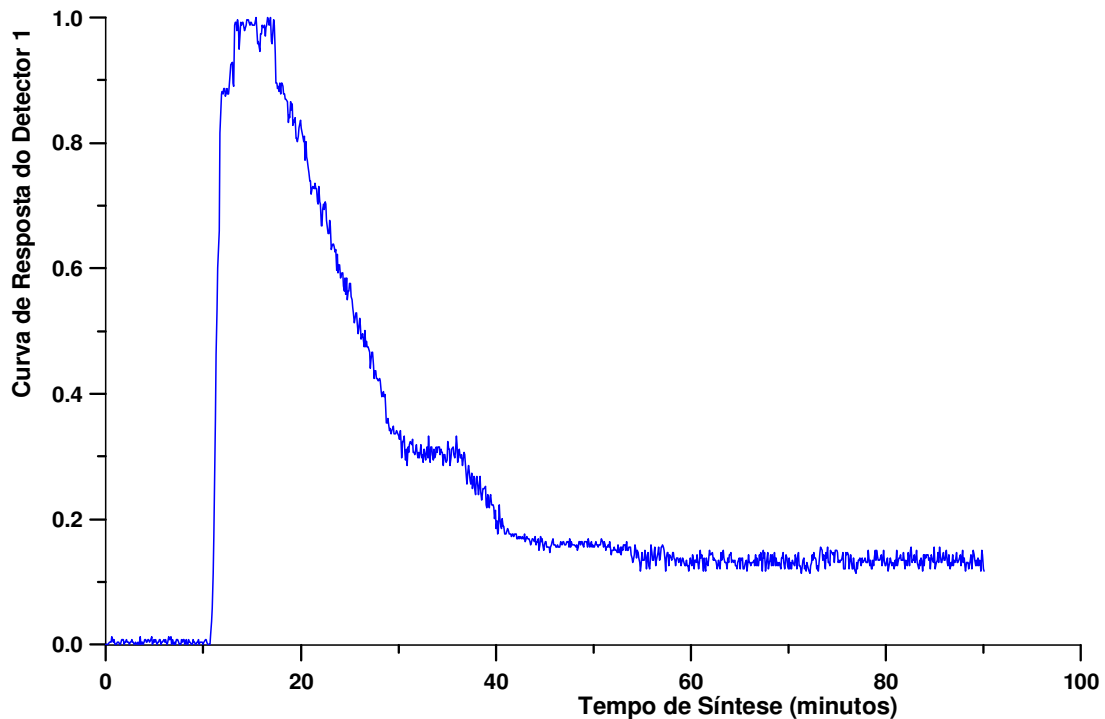


Figura 6. Curva de resposta do detector 1 usado no ensaio U2.

Um novo ensaio, U2, foi realizado e a curva de resposta normalizada do detector 1, encontra-se mostrada na figura 6, sendo que, em torno de  $t = 10$  minutos, verifica-se entrada de material, representada pela subida repentina do sinal, e, em seguida, um pequeno patamar durante o tempo em que a temperatura não atingiu  $80\text{ }^{\circ}\text{C}$ .

A primeira abertura da válvula ocorreu em  $t = 20$  minutos, quando o contador registrou uma grande fração de material sendo transferida para o vaso de coleta, onde logo em seguida foi passado o gás de arraste e que, por volta de  $t = 31$  minutos a válvula foi fechada. Depois de 5 minutos, a válvula foi novamente aberta e uma nova fração de gás foi extraída, observando-se uma pequena inclinação na curva no intervalo de  $t = 36$  minutos e  $t = 45$  minutos. Uma nova abertura da válvula foi realizada em  $t = 55$  minutos com o gás de arraste sendo bombeado constantemente. A curva de resposta do detector 1 indicou que, a partir de  $t = 60$  minutos não houve mais remoção do gás radioativo. Assim, o rendimento de extração do gás  $\text{CH}_3^{82}\text{Br}$ , para a síntese empregando o sulfato de dimetila,  $(\text{CH}_3)_2\text{SO}_4$ , foi em torno de 88 %.

### **III.3. TESTE EMPREGANDO-SE O MÉTODO DA VIA DE SÍNTESE DO METANOL/ÁCIDO SULFÚRICO**

Dois ensaios denominados de U3 e U4 foram realizados com o sal irradiado, empregando-se o método da via de síntese do metanol/ácido sulfúrico de reação, objetivando-se determinar o rendimento de extração do gás através da unidade compacta.

No ensaio U3, foram adicionadas as mesmas quantidades de reagentes empregados nos ensaios com o conjunto em vidro. No ensaio U4, foi empregado um excesso de metanol de 19 mL, equivalendo a uma proporção de metanol/ácido de 7:3, objetivando-se estudar a influência do excesso de álcool na extração do  $\text{CH}_3^{82}\text{Br}$ .

A curva de resposta do detector 1 do ensaio U3 encontra-se disposta na figura 7, no qual se observa também um pequeno patamar, na fase inicial da síntese (equilíbrio da temperatura). E em  $t = 45$  minutos, procedeu-se à primeira abertura da válvula 3, que logo em seguida foi fechada e observou-se que o sinal do detector decaiu abruptamente, indicando uma extração do  $^{82}\text{Br}$  em torno de 35 % do total existente na unidade compacta. Em  $t = 50$  minutos a válvula foi fechada e a temperatura foi aumentada para  $120\text{ }^{\circ}\text{C}$ . A unidade compacta foi mantida pressurizada, até  $t = 110$  minutos, quando ocorreu a segunda abertura da válvula e o gás de arraste passado, até  $t = 125$  minutos, notando-se que um grande volume de  $^{82}\text{Br}$  foi extraído. A temperatura foi variada novamente para  $130\text{ }^{\circ}\text{C}$  e a unidade compacta, pressurizada, quando, mais uma vez, a válvula 3 foi reaberta ( $t = 175$  minutos) e mantida aberta até final da síntese com o gás de arraste sendo passado constantemente.

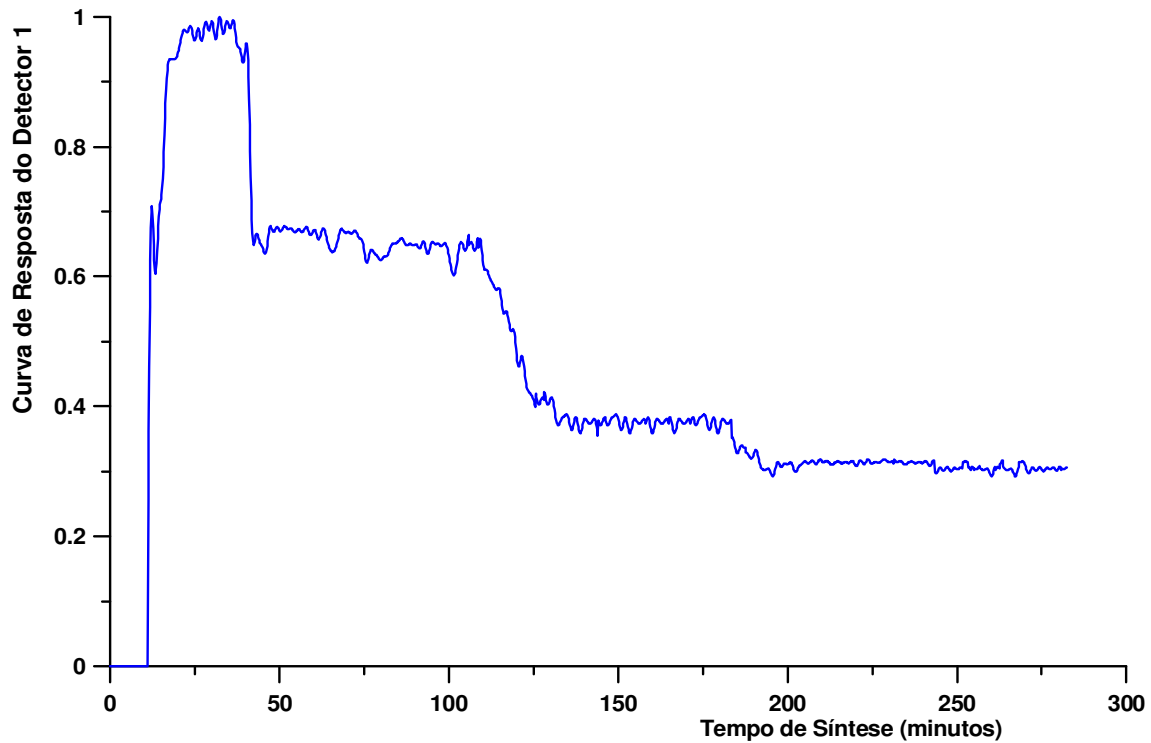


Figura 7. Curva de resposta do detector 1 usado no ensaio U3.

A partir de 200 minutos da síntese, a temperatura foi novamente aumentada, chegando a 140 °C, quando foi passado o gás de arraste, porém não se verificou nenhuma variação no comportamento da curva de resposta do detector 1, indicando que a extração havia acabado e alcançado um rendimento máximo de 70 %.

A curva de resposta do detector 1 referente ao ensaio U4, onde foi empregado excesso de álcool e é apresentada na figura 8, onde verifica-se também um patamar, durante o tempo de estabilização da temperatura. Em  $t = 23$  minutos a temperatura atingiu 110 °C, sendo, logo em seguida, aberta, a válvula 3, causando uma pequena mudança na curva de resposta.

Com a temperatura já no limite estabelecido, em  $t = 50$  minutos a válvula foi novamente aberta e o gás de arraste foi passado, observando-se que o sinal registrado continuou decrescendo lentamente. A partir desse ponto, a temperatura foi alterada para 140 °C e, a cada 20 minutos, a unidade compacta mantinha-se pressurizada, para, depois, ser aberta a válvula, liberando mais gás.

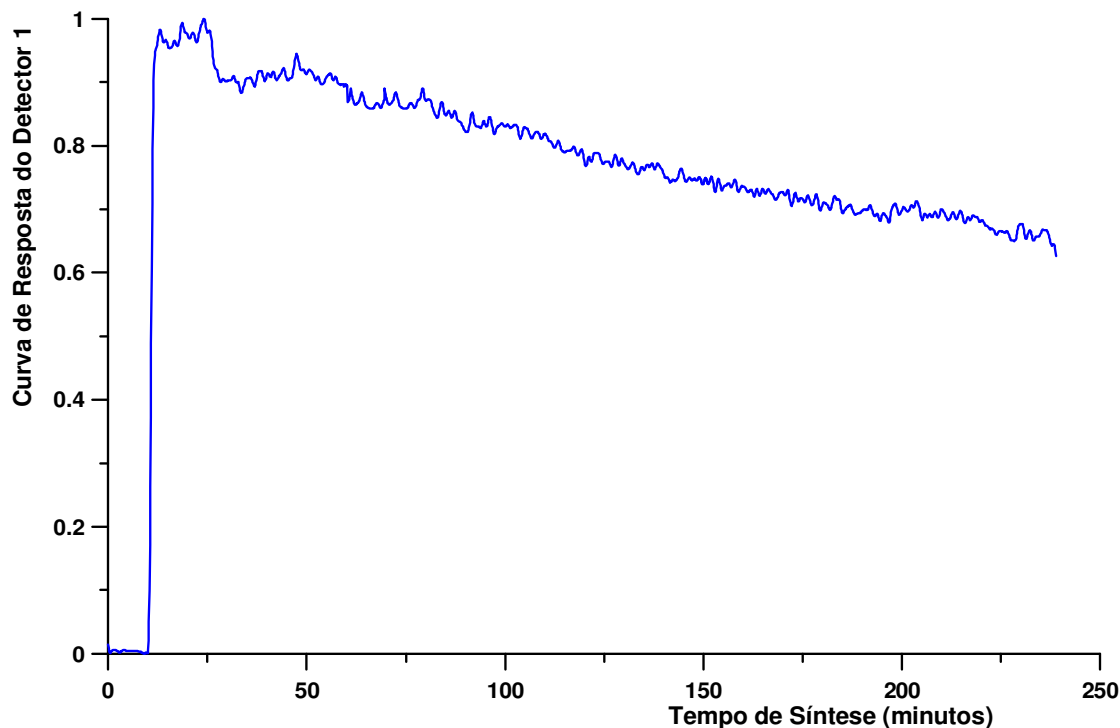


Figura 8. Curva de resposta do detector 1 usado no ensaio U4.

Depois de 250 minutos de síntese, notou-se que, durante todo o ensaio, a curva de resposta do detector 1 apresentou um comportamento decrescente constante, indicando que, com o excesso de álcool, o gás ficava solubilizado, dificultando a extração do  $\text{CH}_3^{82}\text{Br}$ , registrando-se um rendimento total de extração em torno de apenas 37 %.

Estes resultados indicaram que, ao se preparar uma síntese para a produção de  $\text{CH}_3^{82}\text{Br}$ , deve-se ter o cuidado de empregar proporções iguais de álcool e ácido para que o rendimento total de extração resulte equivalente ao do ensaio U3.

#### IV. CONCLUSÕES

Os resultados obtidos experimentalmente permitiram que os objetivos iniciais da pesquisa fossem alcançados. Como conclusões destacam-se:

- Com base nos testes de produção do radiotraçador gasoso  $\text{CH}_3^{82}\text{Br}$ , a unidade compacta demonstrou ser viável, porque proporcionou, na produção/extração pelas duas vias de reação estudadas, via metanol/ácido sulfúrico e via sulfato de dimetila, que fossem alcançados, respectivamente, os rendimentos de extração de 70 % e 88 %.

- A unidade compacta pode ser empregada na avaliação de dutos que se localizem em regiões mais complexas, no que se refere ao transporte do gás radioativo, como em áreas com alta densidade populacional e de difícil acesso, já que possibilita se efetuar a síntese do traçador gasoso  $\text{CH}_3^{82}\text{Br}$  no local da inspeção, com a unidade de síntese diretamente acoplada ao sistema sob avaliação.
- Na construção da unidade compacta foram empregados materiais de baixo custo, e de fácil manipulação, tais como, o teflon e o ferro galvanizado, usado na proteção mecânica, ambos disponíveis com grande facilidade na rede de comércio especializado. A produção do brometo de metila via metanol/ácido sulfúrico resultou mais vantajosa, em termos dos reagentes empregados serem de baixo custo, fácil manipulação e disponíveis no mercado nacional, apesar da taxa de extração ter sido menor do que a fornecida por via sulfato de dimetila.

## **V. AGRADECIMENTOS**

Os autores agradecem ao Instituto de Engenharia Nuclear pelas suas colaborações, especificamente ao laboratório de radiotraçadores, Divisão de radiofármacos (DIRA).

## **VI. REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS**

[1] [http://www.gasnet.com.br/novo\\_gasoduto/operacao.asp](http://www.gasnet.com.br/novo_gasoduto/operacao.asp)

[2] TOLMASQUIM, M. T., SZKLO, A. S. “A matriz energética brasileira na virada do milênio” – COPPE/UFRJ – ENERGE, Rio de Janeiro, 2000.

[3] [www.whitemartins.com.br/site/fispq/WM014871.pdf](http://www.whitemartins.com.br/site/fispq/WM014871.pdf)

[4] CANDEIRO, R.E.M. *Unidade Compacta para Produção de Radiotraçador Gasoso  $\text{CH}_3^{82}\text{Br}$  e Desenvolvimento de Metodologia para Inspeção em Instalações Industriais*. Tese de Doutorado, COPPE/UFRJ, Rio de Janeiro, Brasil (2008).