



19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA

11 Número de publicación: **2 336 927**

51 Int. Cl.:  
**G21C 19/307** (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

96 Número de solicitud europea: **05745651 .9**

96 Fecha de presentación : **04.05.2005**

97 Número de publicación de la solicitud: **1747561**

97 Fecha de publicación de la solicitud: **31.01.2007**

54 Título: **Fijación de yodo radioactivo en un reactor nuclear.**

30 Prioridad: **19.05.2004 DE 10 2004 024 722**

45 Fecha de publicación de la mención BOPI:  
**19.04.2010**

45 Fecha de la publicación del folleto de la patente:  
**19.04.2010**

73 Titular/es: **EnBW Kraftwerke AG.  
Kernkraftwerk Philippsburg, Rheinschanzinsel  
76661 Philippsburg, DE**

72 Inventor/es: **Ruehle, Wilfried;  
Schmitt, Heribert y  
Seider, Werner**

74 Agente: **Carpintero López, Mario**

ES 2 336 927 T3

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín europeo de patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre concesión de Patentes Europeas).

DESCRIPCIÓN

Fijación de yodo radioactivo en un reactor nuclear.

5 Durante el funcionamiento de los reactores nucleares se produce constantemente yodo radioactivo (J-131). El yodo es muy volátil y se deposita en la glándula tiroidea de las personas. Por este motivo el yodo radioactivo representa una fuente de riesgo considerable para la salud humana.

10 Para llevar a cabo trabajos de inspección y mantenimiento es preciso que los reactores nucleares se paren periódicamente y se abran los sistemas expuestos a radioactividad, por ejemplo el sistema de refrigeración y/o el núcleo del reactor. Para impedir que al hacerlo escape yodo radioactivo es preciso aplicar medidas complejas de aspiración que pueden durar varios días. Si hay barras combustibles defectuosas entonces se forman en mayor cantidad compuestos de yodo aerotransportados, lo que requiere un gasto considerablemente mayor de protección contra radiaciones.

15 El tiempo necesario para llevar a cabo los trabajos de inspección y mantenimiento se basa en una parte considerable en las medidas de aspiración necesarias de protección contra la radiación que se han de llevar a cabo antes de abrir los sistemas que conducen radioactividad. Cuanto más largo sea el tiempo que transcurre entre una parada y el nuevo arranque del reactor nuclear, tanto mayores son los costes que se producen debido a falta de producción, ya que durante este período de tiempo no se puede producir corriente. Por este motivo tiene una considerable importancia económica poder acortar los tiempos de parada de un reactor.

20 El objetivo de la invención es el de mostrar una forma cómo se puede contrarrestar un escape de yodo radioactivo de un reactor nuclear por vía aérea y se pueden realizar más rápidamente los trabajos de inspección y mantenimiento.

25 Este objetivo se resuelve por el procedimiento dado a conocer en la reivindicación 1.

Mediante el empleo de un medio de reducción se puede contrarrestar en un reactor nuclear un escape de yodo radioactivo.

30 Mientras que las moléculas de yodo y las moléculas que contengan yodo son muy volátiles, en cambio los iones yoduro permanecen en solución acuosa incluso a altas temperaturas y no pasan a la atmósfera situada encima. Cuando el agua se evapora totalmente los iones yoduro forman con los cationes contenidos en el agua, por ejemplo cationes sodio, sales no volátiles de alto punto de fusión. Los iones yoduro se pueden eliminar de la fase acuosa mediante un intercambiador de iones.

35 De acuerdo con la doctrina de la presente invención se pueden reducir mediante el empleo de un medio de reducción moléculas de yodo y compuestos que contengan yodo, de modo que se formen iones yoduro. Esta forma de proceder es especialmente adecuada para yodo que esté disuelto en el agua de refrigeración del reactor nuclear. Para fijar el yodo que ya se encuentre en una fase gaseosa se puede pulverizar un medio de reducción, preferentemente un compuesto orgánico, en solución acuosa y rociarlo a modo de niebla. Si en la fase gaseosa reinan temperaturas elevadas entonces son también especialmente adecuados los medios de reducción que fijen el yodo mediante una reacción de adición. Para ello son especialmente bien adecuados los compuestos orgánicos con enlaces insaturados (es decir con anillos aromáticos o con enlaces dobles y triples entre los átomos de carbono), por ejemplo Butindiol.

45 Un hallazgo importante de la presente invención consiste en que para obtener una protección contra radiaciones durante la realización de los trabajos de inspección y mantenimiento no es necesario fijar el yodo radioactivo de modo permanente, incluso durante en las condiciones de trabajo del reactor. En cambio basta si el yodo radioactivo se mantiene fijado mientras duren los trabajos de mantenimiento durante los cuales están abiertos los sistemas que conducen radioactividad. Por ese motivo son adecuados para la presente invención productos tales como butindiol, que durante el funcionamiento del reactor se descomponen rápidamente por la acción de la radiación o de la temperatura. Y es que no molesta si por ejemplo el yodo fijado en el circuito de refrigeración vuelve a quedar libre una vez terminados los trabajos de mantenimiento, puesto que entonces ya no puede escapar del sistema de refrigeración cerrado.

50 Dentro del marco de la presente invención no hay que entender el concepto de "fijar" en su sentido químico más estrecho, de modo que el yodo radioactivo tenga que establecer un enlace químico con el medio de reducción. Es suficiente por el medio de reducción impida de algún modo que el yodo radioactivo pueda escapar a la atmósfera. Por ejemplo, el yodo se puede fijar como ión yoduro en solución acuosa o mediante una reacción de adición durante la cual tiene lugar un enlace químico con el medio de reducción y se precipita junto con éste.

60 En el sistema de refrigeración de un reactor de agua ligera se alcanzan durante el funcionamiento temperaturas de varios cientos de grados centígrados. En estas condiciones pueden causar daños las sustancias extrañas, especialmente por corrosión, por lo que se vigila cuidadosamente de que el agua de refrigeración empleada esté lo más exenta posible de impurezas. En las condiciones de funcionamiento del reactor las moléculas orgánicas se descomponen muy rápidamente en el circuito de refrigeración y pueden constituir por lo tanto una fuente de sustancias extrañas corrosivas. Para evitar daños, el medio de reacción conforme a la invención debería estar lo más exento posible de halógenos y de azufre, ya que en caso contrario podrían formar productos corrosivos de descomposición a partir del medio de reducción.

## ES 2 336 927 T3

Sorprendentemente, el dióxido de carbono no es crítico a pesar de su efecto ácido como producto de descomposición de un medio de reducción orgánico en el circuito de agua de refrigeración de un reactor de agua ligera, por lo que se pueden añadir al refrigerante sin problema medios de reducción orgánicos en concentraciones de algunos cientos de miligramos por kilo, lo que es más que suficiente para una fijación eficaz del yodo radioactivo.

5

Los ensayos han demostrado que los sistemas de refrigeración de los reactores de agua a presión son considerablemente menos propensos a sufrir daños causados por sustancias extrañas que los sistemas de refrigeración de los reactores de agua en ebullición. Dentro del marco de la invención se ha hallado que incluso los medios de reacción que contengan nitrógeno tal como por ejemplo hidracina, se pueden emplear en el sistema de refrigeración de un reactor de agua a presión, por lo menos con unas concentraciones de algunas decenas de miligramos por kilo de agua de refrigeración, sin que se causen daños por los productos de descomposición que contienen nitrógeno.

10

Por el documento DE 3100112 A1 se conoce el empleo de almidón insoluble en agua como material filtrante para eliminar yodo elemental del agua de una central nuclear que se trata de depurar.

15

Para contrarrestar la corrosión por tensiones se conoce también por el documento DE 10123690 A1 el hecho de añadirle un alcohol al refrigerante primario de un reactor de agua en ebullición durante el funcionamiento.

20

La invención se explica a continuación con mayor detalle sirviéndose de ejemplos de realización. Las particularidades ahí descritas pueden emplearse de modo individual o combinadas entre sí para crear realizaciones preferentes de la invención.

25

Si se para un reactor de agua ligera para realizar trabajos de mantenimiento en los cuales sea necesario abrir sistemas que conduzcan radioactividad, por ejemplo un sistema de refrigeración, existe el riesgo de que se escape yodo radioactivo transportado por el gas. Para contrarrestar un escape de yodo radioactivo del sistema de refrigeración de un reactor de agua a presión o de agua en ebullición se añade de acuerdo con la invención un medio de reducción al refrigerante al efectuar la parada del reactor, que fija el yodo radioactivo o lo reduce formando yoduro que no es volátil y que no tiene tendencia a pasar a la fase gaseosa.

30

El medio de reducción contiene como componente reductor uno o varios compuestos orgánicos. Se prefieren para ello compuestos que contengan uno o varios compuestos de carbono insaturado, es decir enlaces dobles o triples entre los átomos de carbono, o un grupo aromático. Se prefiere especialmente como componentes reductores del medio reductor, compuestos que tengan un peso molecular que en unidades de masa atómica sea inferior a 300 a.u., en particular inferior a 250 a.u. El medio de reducción está preferentemente exento de halógenos y azufre, es decir que contiene azufre o halógeno únicamente como impurezas o trazas, preferentemente en una concentración inferior a 100 ppm.

35

El medio de reducción contiene preferentemente como componente reductor uno o varios compuestos realizados exclusivamente a base de carbono, hidrógeno y oxígeno. Además de los hidrocarburos son especialmente adecuados los aldehídos, preferentemente hidroquinona, resorcina y/o brencatequina, alcoholes y/o ácidos carbónicos, en particular ácido ascórbico. El medio de reducción se añade al refrigerante con una concentración mínima de 0,1  $\mu\text{mol/kg}$ , preferentemente mínimo 0,5  $\mu\text{mol/kg}$ . Las concentraciones superiores a 1 mmol/kg se necesitan en el caso de medios de reducción muy débiles para lograr un enlace sensiblemente total del yodo radioactivo, pero entrañan un riesgo cada vez mayor de daños de corrosión del sistema de refrigeración, especialmente en el caso de los ácidos carbónicos.

45

Durante el régimen de parada de un reactor nuclear y el subsiguiente régimen de postenfriamiento, se añade el medio de reducción de modo dosificado múltiples veces para que la concentración del medio reductor en el refrigerante, referido a su o sus componente(s) reductor(es) no descienda por debajo de un valor límite predeterminado, preferentemente de aproximadamente 0,1  $\mu\text{mol/kg}$  de refrigerante. De este modo el yodo radioactivo que esté presente en el sistema de refrigeración se puede fijar de forma rápida y total, de modo que al abrir a continuación el sistema de refrigeración no puede escapar.

50

Dado que al efectuar la parada de un reactor nuclear y durante el subsiguiente régimen de postenfriamiento la temperatura en el sistema de refrigeración del reactor desciende constantemente puede ser conveniente emplear al principio cuando las temperaturas son más altas un medio de reducción diferente al empleado hacia el final, cuando las temperaturas son más bajas. De este modo se puede aportar en todo momento un medio de reacción que sea óptimamente adecuado para fijar el yodo radioactivo en las condiciones existentes en cada momento.

55

La dosificación añadida del medio de reducción no se realiza porque acaso el medio de reducción se consuma debido a las reacciones con el yodo radioactivo, sino en primer lugar porque incluso durante el régimen de postenfriamiento del reactor, se descompone con relativa rapidez o se elimina a través de los filtros de limpieza.

60

En un reactor de agua en ebullición se emplea para las partes del sistema de refrigeración atravesadas por el fluido un primer medio de reducción o un primer componente del medio de reacción, y para las partes del sistema de refrigeración atravesadas por vapor, un segundo medio de reducción o un segundo componente del medio de reducción. Para los reactores de agua en ebullición ha resultado especialmente conveniente una mezcla a base de ácido ascórbico y butindiol. El ácido ascórbico permanece en la parte del sistema de refrigeración atravesada por el líquido y fija allí el yodo radioactivo, al reducirlo para formar iones yodo. El butindiol es arrastrado por el vapor de agua en las partes del

65

## ES 2 336 927 T3

sistema de refrigeración atravesadas por el vapor, donde se deposita en las superficies libres, por ejemplo en las paletas de la turbina, y fija allí mediante una reacción de adición el yodo radioactivo procedente de la fase gaseosa. El butindiol presenta además la ventaja adicional de proteger contra la corrosión las superficies metálicas en las partes del sistema de refrigeración atravesadas por vapor. El ácido ascórbico y el butindiol se añaden al refrigerante en solución acuosa, siempre en una primera concentración mínima de 0,1 mg/kg de refrigerante, preferentemente en una concentración de 0,2 mg/kg de refrigerante. Esto equivale a una concentración de 0,5 a 1  $\mu\text{mol/kg}$  de refrigerante para la reacción de ácido ascórbico y una concentración de 0,25 a 0,5  $\mu\text{mol/kg}$  de refrigerante para el butindiol.

Otro ejemplo de realización consiste en pulverizar en los sistemas que conducen radioactividad, por ejemplo en el condensador de la turbina o en las conducciones de vapor en forma de niebla finas gotitas de un medio de reducción, por ejemplo ácido ascórbico disuelto en agua o Quercetin. La concentración del ácido ascórbico o del Quercetin en solución acuosa es de 0,1 a 1 mg/kg de agua. De este modo se puede fijar incluso yodo radioactivo que ya haya pasado a la fase gaseosa.

Al efectuar el cambio de elementos combustibles se puede contrarrestar la liberación de yodo, cubriéndolos con agua que contenga el medio de reducción.

Para efectuar trabajos de inspección y mantenimiento es normal que un reactor de agua ligera se pare una vez al año durante unos 15 a 25 días. Al efectuar las pruebas del procedimiento descrito se pudo volver a poner en servicio el reactor incluso cinco días antes. Para ello se añadió al sistema de refrigeración durante la parada del reactor, butindiol en solución acuosa, cada hora en una concentración de 0,1 mg/kg de vapor. Unas diez horas después de la parada del reactor la temperatura en el sistema de refrigeración había descendido tanto que la cantidad de vapor ya sólo era aproximadamente un 10% del valor original. En este momento se añadió al agua de refrigeración (líquida) ácido ascórbico en solución acuosa en una concentración de 0,4 mg/kg de refrigerante. De este modo se pudo abrir el sistema de refrigeración unas 24 horas después de la parada del reactor, mientras que de acuerdo con el estado de la técnica es preciso extraer bombeando aire del sistema de refrigeración durante varios días para impedir un escape del yodo radioactivo.

30

35

40

45

50

55

60

65

REIVINDICACIONES

- 5 1. Procedimiento en el que se introduce un medio de reducción en el sistema de refrigeración de un reactor nuclear refrigerado por agua, **caracterizado** porque, el medio de reducción se aporta al sistema de refrigeración al efectuar la parada del reactor y/o durante el subsiguiente régimen de postenfriamiento, y por medio del medio de reducción se fija yodo radioactivo durante la realización de los trabajos de mantenimiento estando abierto el sistema de refrigeración y de este modo se impide que el yodo radioactivo pase a la atmósfera.
- 10 2. Procedimiento según la reivindicación 1, en el que el medio de reducción está exento de halógenos y de azufre.
3. Procedimiento según una de las reivindicaciones anteriores, en el que el medio de reducción contiene como componente reductor uno o varios compuestos orgánicos.
- 15 4. Procedimiento según la reivindicación 3, **caracterizado** porque el compuesto tiene un peso molecular inferior a 300 a.u., preferentemente inferior a 250 a.u.
5. Procedimiento según la reivindicación 3 ó 4, en el que el medio reductor contiene como componente reductor uno o varios compuestos formados exclusivamente por carbono, hidrógeno y oxígeno.
- 20 6. Procedimiento según la reivindicación 5, en el que el medio reductor contiene como componente reductor uno o varios hidrocarburos.
7. Procedimiento según una de las reivindicaciones anteriores, en el que el medio de reducción contiene como componente reductor uno o varios compuestos con un compuesto de carbono insaturado.
- 25 8. Procedimiento según una de las reivindicaciones 2 a 7, en el que el componente reductor es un aldehído, preferentemente hidroquinona, resorcina y/o brencatequina, un alcohol y/o un ácido carbónico, preferentemente ácido ascórbico.
- 30 9. Procedimiento según una de las reivindicaciones anteriores, en el que el medio de reducción se añade a un refrigerante.
10. Procedimiento según la reivindicación 9, en el que el medio de reducción se añade a una fase líquida del refrigerante.
- 35 11. Procedimiento según la reivindicación 9 ó 10, en el que el medio de reducción se añade al refrigerante en una concentración mínima de 0,1  $\mu\text{mol/kg}$ , preferentemente mínima de 0,5  $\mu\text{mol/kg}$ .
- 40 12. Procedimiento según una de las reivindicaciones anteriores, en el que para las partes del sistema de refrigeración atravesadas por líquido se emplea un primer medio de reducción o un primer componente del medio de reducción y para las partes del sistema de refrigeración atravesadas por vapor, un segundo medio de reducción o un segundo componente del medio de reducción.
- 45 13. Procedimiento según una de las reivindicaciones anteriores, donde por lo menos una vez más durante el régimen de postenfriamiento se añade un medio de reducción.
14. Procedimiento según una de las reivindicaciones anteriores, en el que mediante la dosificación añadida del medio de reducción se contrarresta la disminución de la concentración del medio de reducción en el refrigerante por debajo de un valor establecido de preferentemente 0,1  $\mu\text{mol/kg}$ , muy preferentemente de 0,5  $\mu\text{mol/kg}$ .
- 50
- 55
- 60
- 65