



263 172

MEMORIA DESCRIPTIVA

para solicitar

P A T E N T E D E I N V E N C I O N

en

E S P A Ñ A

por VEINTE años

a nombre de COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE, entidad francesa, establecida en 69, rue de Varenne, Paris, Francia, por:  
"DISPOSITIVO CRIÓGENO PARA IRRADIACION A BAJA TEMPERATURA".

---

El presente invento tiene por objeto un procedimiento y un dispositivo criógenos para irradiación a baja temperatura, especialmente para reactor nuclear.

Se sabe que es interesante efectuar las irradiaciones a baja temperatura cuando se tiene el propósito de estudiar las modificaciones químicas o físicas en sólidos o líquidos sometidos a la acción de radiaciones ionizantes o de flujo de partículas.

Se utiliza a menudo el nitrógeno líquido como fuente de

263 174



frigorías, pero también el hidrógeno líquido, el helio líquido, sus isótopos, u otros líquidos con un punto de ebullición inferior a la temperatura ambiente; la fuente por medio de la cual se efectúa la irradiación es un reactor nuclear, un acelerador de partículas o una sustancia radioactiva.

En algunos casos, se tiene interés en una muestra sumergida en el líquido criógeno, o en contacto con él durante la exposición a las radiaciones. En otros casos, son las modificaciones de propiedades del líquido criógeno mismo bajo la acción de las radiaciones las que son estudiadas.

Se han de superar diversas dificultades para el empleo de los dispositivos que permiten las irradiaciones a baja temperatura.

Algunas de ellas están ligadas a los efectos secundarios de las radiaciones sobre las impurezas de los fluidos utilizados para la refrigeración.

Es así como, cuando se emplea nitrógeno líquido comercial, que es barato y está disponible en grandes cantidades, y cuando se le deja vaporizar bajo las influencias conjuntas de la radiación de origen nuclear y de las pérdidas térmicas de los vasos, se es molestado por el oxígeno y el argón que contiene como impurezas.

El oxígeno, bajo la acción de radiaciones gamma en particular, da lugar a la formación de ozono que, a causa de su punto de ebullición elevado, con relación al del nitrógeno, tiende a concentrarse allí. Este ozono es el origen de corrosiones intensas del material. Es susceptible de provocar, por otra parte, por reacción sobre cantidades incluso poco importantes de materias orgánicas, o espontáneamente, explosiones que pueden entrañar la destrucción por lo menos parcial de la instalación,

263 172



como ha ocurrido ya muchas veces.

El argón, bajo la acción de los neutrones, da un isótopo radiactivo cuya presencia contamina el nitrógeno vaporizado, de punto de ebullición próximo.

5           Se ha intentado remediar estas dificultades creando una circulación cerrada: la cantidad de ozono permanece así limitada y el argón no es lanzado a la atmósfera. Se utiliza por lo demás entonces nitrógeno puro como líquido de refrigeración en la parte de la instalación que está sometida a un flujo intenso de radiaciones; la aportación de frigorías se hace a partir de un cambiador cuyo circuito frío está constituido por nitrógeno líquido comercial impuro y el circuito caliente por el nitrógeno líquido puro citado más arriba, estando colocado este cambiador en el exterior del reactor o lejos de la fuente radiac  
10           tiva, allí donde la utilización de nitrógeno líquido comercial  
15           impuro es posible a causa de la ausencia de radiaciones.

La utilización así concebida del reciclado del fluido presenta grandes inconvenientes con relación al método que consiste en asegurar simplemente la renovación continua del fluido  
20           frigorígeno. Se estaba obligado en efecto hasta ahora a la construcción de una instalación que comprende, por una parte, un recipiente de irradiación, por otra parte un cambiador asociado o no a elementos del licuador, tales como compresor y válvula de expansión, estando asegurada la unión entre las dos partes por  
25           tuberías calorifugadas, y la circulación del líquido por una bomba, por ejemplo. Tales instalaciones cuestan caras, son complejas y entrañan un consumo elevado de frigorías debido tanto a la longitud de las tuberías de unión, como a la dificultad de asegurar un buen aislamiento.

30           Cuando se intenta estudiar las modificaciones físicas o

263172



químicas de un fluido bajo la influencia de las radiaciones, a baja temperatura, este reciclado ha sido siempre indispensable para asegurar una concentración razonable de las modificaciones o nuevos cuerpos formados. A los defectos ya señalados del reciclado se añade entonces el gran volumen de las instalaciones actualmente utilizadas: de modo general, ya sea como fluidos criógenos o para el estudio de sus modificaciones, se tiene interés más particularmente cada vez que se emplean cuerpos raros o de precio elevado (helio 3, deuterio, etc..) en reducir el volumen, actualmente prohibitivo en algunos casos, de las instalaciones de reciclado.

Finalmente, de una manera general, todo dispositivo para irradiación ha de satisfacer dos tipos de exigencias casi siempre contradictorias:

- Evitar toda fuga de radiaciones ionizantes a causa de la instalación;

- permitir sin embargo un acceso fácil al recinto en el cual son tratadas las muestras.

La interposición de pantallas absorbentes de plomo, parafina, etc... en el trayecto de las radiaciones salidas de la instalación es una respuesta clásica y eficaz al primer tipo de exigencias, pero reduce mucho las posibilidades de acceso fácil a las muestras.

En el caso de irradiaciones a baja temperatura, el imperativo de fácil accesibilidad es particularmente importante. En muchos casos, después de la irradiación se ha de retirar del aparato la muestra tratada manteniéndola a baja temperatura; es preciso operar rápidamente. Es por consiguiente indispensable conciliar las exigencias citadas en los dispositivos criógenos para irradiación, aunque las conexiones múltiples e independientes



263172

necesarias en este tipo de instalación sean una fuente suplementaria de dificultades.

El presente invento tiene por objeto un procedimiento y un dispositivo criógenos para irradiación a baja temperatura que permiten realizar muy sencillamente un reciclado continuo, en un volumen reducido, del fluido que se estudia o que se utiliza como líquido frigorígeno, y satisfacer las exigencias anteriores.

Este procedimiento se caracteriza porque la circulación continua del fluido criógeno se efectúa en un recinto estanco de dimensiones reducidas, térmicamente aislado, entre una parte del mismo en que reina un flujo de irradiación intensa, y una parte próxima en que el flujo de irradiación es débil y en que los vapores de dicho fluido se condensan sobre un cambiador refrigerado.

El dispositivo según el invento está constituido por un recinto estanco, de dimensiones reducidas, aislado térmicamente, que comprende dos partes esenciales: un baño criógeno situado en un flujo de irradiación intenso y un cambiador refrigerado situado en la proximidad de dicho baño y en una zona en que el flujo de irradiación es débil.

El desprendimiento de energía en las paredes, en el fluido y en la muestra que se sumerge en él eventualmente - desprendimiento que es fácilmente del orden de un décimo de watio por gramo - entraña la vaporización de una parte del líquido. Los vapores formados se condensan sobre el cambiador que está dispuesto de manera que el líquido que resulta de la condensación vuelva por gravedad hacia el recipiente de irradiación.

Otra particularidad esencial del invento es que las ventajas del reciclado continuo del fluido (eliminación de los riesgos de explosión, posibilidades de concentración de los efectos



de la irradiación, posibilidades de utilización de cantidades limitadas de fluido criógeno) se obtienen con un dispositivo sencillo. No presentan ningunos de los inconvenientes debidos, en las instalaciones conocidas hasta ahora, a las canalizaciones de unión, cambiador separado, bomba de circulación exterior. De ello resulta un conjunto menos complejo, menos costoso, de un funcionamiento más seguro y que aporta una gran economía de frigorías.

Según una variante, el dispositivo criógeno para irradiación a baja temperatura según el presente invento se caracteriza porque una separación de los ejes longitudinales de las partes superior e inferior, que suprime toda posibilidad de radiación directa del núcleo del reactor hacia el exterior, es prevista a un nivel tal que el grosor de moderador encima de la parte inferior es por lo menos igual al grosor de una protección biológica eficaz hecha por medio del material que constituye dicho moderador.

El dispositivo criógeno según esta variante permite satisfacer los imperativos de accesibilidad fácil y rápida al recinto de irradiación, y de protección biológica eficaz de los operadores. Además, este dispositivo presenta el tamaño más reducido en la proximidad inmediata y en la vertical del núcleo del reactor utilizado para la irradiación, lo que es esencial especialmente en la utilización en una pila de piscina.

Con referencia a las figuras esquemáticas 1 a 4 adjuntas, se describirán a continuación diversos ejemplos, dados a título no limitativo, de puesta en práctica del procedimiento y del dispositivo criógeno para irradiación a baja temperatura, objeto del invento.

La figura 1 es una vista en corte vertical de un dispositi-



253172

tivo conforme al invento, adaptado a un canal vertical de reactor nuclear;

la figura 2 es una vista en corte vertical de otro dispositivo igualmente conforme al invento, adaptado a un canal de irradiación horizontal;

la figura 3 es una vista en corte vertical más completa del dispositivo representado en la figura 1;

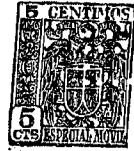
la figura 4 es una vista en corte vertical de un dispositivo especialmente adaptado a la utilización en un reactor nuclear del tipo piscina.

Solo han sido representados en las figuras los elementos necesarios para la comprensión del invento, llevando los elementos correspondientes de estas figuras números de referencia idénticos.

Se ve en la figura 1 el baño criógeno 1 sometido a un flujo de radiaciones 2. Un cambiador de condensación 3 se encuentra en la proximidad del baño 1, es decir, que su distancia a éste varía entre algunos centímetros y algunos metros. Es ante todo función de la distribución del flujo de radiaciones en la proximidad de la fuente de radiación. Es siempre posible reducirla al mínimo atenuando el flujo residual en la proximidad del cambiador 3 por una protección 4, por ejemplo de plomo, si es necesario. Habida cuenta de esta sujeción, hay evidentemente interés en hacer esta distancia tan pequeña como sea posible para conservar al invento todo su alcance. El baño criógeno 1 y el cambiador 3 están en un recinto estanco 27 constituido por una doble pared en la cual se hace el vacío por la canalización 28.

El cambiador 3 es aquí del tipo tubular y contiene un fluido a baja temperatura 5, por ejemplo nitrógeno líquido comercial,

253172



que provoca la condensación de los vapores salidos del baño criógeno 1.

El invento no está limitado al caso en que el dispositivo es estrictamente vertical; es igualmente aplicable cuando el recinto estanco y térmicamente aislado es horizontal: como se ve en la figura 2, en esta variante se coloca entonces el cambiador 6 de tal manera que el reflujo del fluido criógeno de un recipiente colector 7 colocado debajo del cambiador 6, hacia el recipiente de irradiación 8, sea posible gracias a un tubo 9.

Dicho de otro modo, el invento se caracteriza por el hecho de que el reciclado es posible sin utilización de una bomba o de un compresor exterior al recinto 27 de dimensiones reducidas.

Se ve igualmente que el invento no está limitado a la utilización de un cambiador tubular, como se indica en la figura 1: éste puede estar constituido por serpentines, tubos provistos de aletas, como se indica en la figura 2, o cualquier otra forma de cambiador habitualmente utilizado en los aparatos criógenos.

El invento no está limitado tampoco a una forma determinada del recinto estanco y térmicamente aislado. Si por razones de comodidad de ejecución y de adaptación a las facilidades experimentales de las fuentes de radiación, se tiene frecuentemente interés en adoptar una geometría cilíndrica, se puede aplicar el invento a un dispositivo de sección cuadrada, poligonal o cualquiera, que presente o no un eje de simetría.

El invento es aplicable a todos los fluidos utilizados en técnica de las bajas temperaturas. El fluido de condensación (designado en adelante por "A") utilizado en el cambiador puede ser con excepción de algunas impurezas, el mismo que el fluido criógeno propiamente dicho (designado en adelante por "B"). La presión de "A" ha de ser ligeramente inferior a la de "B" para que

263 172



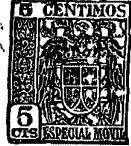
la condensación de este último sea posible. La diferencia de temperatura y por consiguiente de presión depende a la vez de la superficie de cambio y de la cantidad de calor a evacuar, y es calculada según las reglas de la técnica. "A" y "B" pueden ser de naturaleza diferente, a condición naturalmente de que la temperatura de "A", en las condiciones de funcionamiento, sea inferior a la de "B". Sin embargo, el fluido "A" no ha de permitir la congelación de "B".

Es así como "A" puede ser por ejemplo, nitrógeno comercial (impurezas principales: 0,5% de oxígeno, 0,01% de argón) que hierve bajo una presión de una atmósfera, mientras que "B", es nitrógeno puro que contiene algunas partes por millón de impurezas solamente. "A" puede ser igualmente nitrógeno comercial, que hierve bajo una presión de 4 atmósferas siendo "B" metano. "A" puede ser hidrógeno que hierve bajo presión de una atmósfera, siendo "B" deuterio, "A" puede ser helio 4 que hierve bajo una presión de 240 mm. de mercurio, siendo "B" helio 3, sin que esta enumeración de fluidos utilizables tenga un carácter limitativo.

La figura 3 representa un ejemplo de realización del invento, que permite la irradiación de muestras a la temperatura del nitrógeno líquido en un reactor nuclear de flujo elevado.

La muestra a irradiar 25 está sumergida en el baño 1 de nitrógeno líquido puro, contenido en un recinto de aluminio de 50 mm. de diámetro, protegido por un vacío de aislamiento 10. Esta parte del criostato es sometida al flujo intenso de radiaciones 2 del núcleo del reactor 11. El cambiador 3 está lleno de nitrógeno líquido, comercial 5 que hierve a presión normal; está situado en la parte superior del mismo recinto estanco, a un metro por encima del fondo, en un flujo de radiaciones ionizantes débil. El nitrógeno vaporizado en 1 por la energía que

263172



está almacenada en las paredes, el líquido y la muestra, se viene a condensar en el cambiador 5 y vuelve, por gravedad, a la parte inferior del criostato en que se encuentra la muestra.

La regulación del nivel de nitrógeno líquido puro se obtiene por medio de un presostato, no representado, conectado a un tubo 12 unido al recinto estanco que contiene el nitrógeno puro admitido previamente en cantidad deseada. Este presostato manda la alimentación de nitrógeno comercial que es aportada al dispositivo por un tubo 13. La evacuación de los vapores de nitrógeno comercial se hace por un tubo 14. Tubos 15 y 16 sirven para crear y para mantener los vacíos de aislamiento necesarios para la reducción de las fugas térmicas de la instalación.

La figura 4 representa un ejemplo de realización de un dispositivo adaptado a la utilización en un reactor nuclear del tipo piscina. El baño criogénico 1 es sometido a las radiaciones 2 del núcleo 11 del reactor. Este baño está dispuesto debajo del cambiador tubular 3 (a 1,3 m. en el ejemplo elegido) y en un mismo recinto protegido contra las fugas térmicas por un espacio 10 en que reina un vacío de aislamiento. Este puede ser mantenido, por ejemplo, por medio de bombas, por un tubo único 15, en el conjunto del aparato, incluido el trayecto de la canalización 13 de alimentación de nitrógeno líquido comercial. También se puede establecer de una vez para siempre, e incluir o no los dispositivos conocidos para reducir las pérdidas térmicas. La canalización 13 es utilizada en 5 para la aportación de las frigorías al cambiador. Un tubo 12 está unido al recinto estanco que contiene el nitrógeno puro. La evacuación de los vapores de nitrógeno comercial se hace por un tubo 14.

En este dispositivo se obtiene una protección biológica muy eficaz. Para hacer esto, en vez de prolongar en línea rec-



253172

ta, hasta salir por encima de la superficie del agua, el conjunto de los tubos que constituyen el aparato, como en el dispositivo precedente, se ha efectuado una separación entre la parte superior sobresaliente del dispositivo y la parte inferior expuesta a las radiaciones. Esta separación entre los ejes de las partes inferior y superior del dispositivo está situada a algunos metros por debajo del nivel 16 del agua cuando el aparato está en su sitio para irradiación. Esta cota no es imperativa y puede ser adaptada al valor del flujo de radiación a atenuar y a la naturaleza del líquido de la piscina, según las reglas de la técnica. La distancia entre los ejes de las partes superior e inferior depende evidentemente de la disposición general adoptada; se elegirá de tal manera que no puede llegar ninguna radiación directa del núcleo hacia el exterior a través del dispositivo. Un valor mínimo de esta distancia será, pues, del orden de magnitud del diámetro exterior del dispositivo o de la dimensión correspondiente, pero evidentemente se puede aumentar sin inconveniente tanto como se quiera; es así como para disminuir el tamaño debido a las tuberías de salida del aparato en la vertical del núcleo, se ha elegido del orden de un metro.

El conjunto tubular de transferencia 17, desmontable, asegura a la vez la continuidad del circuito 13 de alimentación de nitrógeno líquido comercial, el mantenimiento del vacío de aislamiento gracias a la doble pared 22 y, finalmente, la evacuación de los vapores de nitrógeno comercial que es hecha en la parte periférica cuya sección de paso es relativamente importante. Evidentemente, se pueden adoptar para este conjunto tubular otras disposiciones, ya sea que se modifiquen los medios de aislamiento térmico, ya sea que se dispongan de modo diferente los trayectos de los fluidos.

263172



Después de la irradiación, se llega a las muestras y se pueden sacar del aparato manteniéndolas a la temperatura de irradiación. Para esto, el dispositivo es levantado en primer lugar hasta que el nivel del agua se sitúa en 24; el desmontaje de las uniones estancas 18, 19 y 20 permite entonces retirar el conjunto tubular de transferencia 17. Se desmonta luego la unión estanca 21, lo que permite retirar el forro 23 que soporta el cambiador tubular 3 del cual está suspendido el recipiente 26 que contiene las muestras 25 mantenidas a la temperatura del baño criógeno. La disposición adoptada hace fácil entonces la transferencia de las muestras irradiadas a un baño criógeno preparado a este efecto.

El dispositivo ha sido instalado en un reactor nuclear cuyo flujo neutrónico en la parte inferior del criostato era de  $5.10^{12}$  neutrones/cm<sup>2</sup>/s y el flujo de radiación gamma de  $5.10^7$  Roentgen/hora. Al nivel del cambiador, estos valores fueron reducidos en un factor superior a  $10^6$  en lo que concierne al flujo neutrónico y en un factor superior a  $10^3$  para la radiación gamma. La experiencia muestra que los valores resultantes pueden ser considerados como despreciables, tanto para la formación de ozono como para la de argón radiactivo.

Para una energía de 50 W disipada en un baño de nitrógeno líquido de 200 cm<sup>3</sup>, y a su contacto, y con un cambiador de 1.600 cm<sup>2</sup> de superficie, la sobrepresión por encima del baño de nitrógeno puro es inferior a 100 g/cm<sup>2</sup>.

El consumo de nitrógeno líquido comercial es del orden de 70 litros por 24 horas, muy inferior a la de los dispositivos que utilizan un cambiador separado del criostato y una bomba de circulación, para los cuales se cifra en varios centenares de litros en el mismo tiempo.

263172



Se ha comprobado que los vapores del nitrógeno comercial consumido en el cambiador y que se escapan por el tubo 14, no presentan radioactividad mensurable, mientras que pruebas anteriores han mostrado que la irradiación de nitrógeno comercial con una renovación continua en un flujo como el que existe en la parte inferior del criostato descrito conduce, principalmente a consecuencia de la activación del argon (impureza del nitrógeno comercial) a una radioactividad bastante importante de los vapores que va de algunas centésimas a algunas décimas de Curie por m<sup>3</sup>. Tampoco hay formación notable de ozono, incluso después de varias decenas de horas de funcionamiento.

Esta solicitud que corresponde a la presentada en Francia, el 15 de Diciembre de 1959, bajo el Núm. PV. 813.080 y el 18 de Mayo de 1960, bajo el Núm. PV. 827511, se acoge a los beneficios del artículo 51 del vigente Estatuto sobre Propiedad Industrial.

#### N O T A

Los puntos de invención propia y nueva que se presentan para que sean objeto de esta solicitud de Patente de Invención en España, por VEINTE años, son los siguientes:

1.- Procedimiento criógeno para irradiación a baja temperatura, caracterizado porque la circulación continua del fluido criógeno se efectúa en un recinto estanco, entre una parte de éste que comprende un baño de dicho fluido en estado líquido, donde reina un flujo de irradiación intensa, y una parte próxima en que el flujo de irradiación es débil y en que los vapores emitidos por dicho baño son condensados por medio de un cambiador refrigerado, y porque el reciclado del líquido criógeno condensado hacia dicho baño se hace por gravedad.

263172



2.- Procedimiento según la reivindicación 1, según el cual la condensación al nivel de dicho cambiador se efectúa por medio de un fluido de igual naturaleza que el utilizado en el recinto estanco.

5           3.- Dispositivo criógeno para irradiación a baja temperatura, caracterizado porque tiene, por una parte, un recinto estanco de dimensiones reducidas, aislado térmicamente, que contiene un baño de líquido criógeno, situado en la proximidad de un flujo de irradiación intensa, y un cambiador de condensación de los vapores emitidos por dicho baño, estando colocado dicho cambiador en la proximidad de este baño en una zona en que el flujo de irradiación es débil y por otra parte, medios de reciclado por gravedad del líquido criógeno condensado hacia dicho baño, medios de introducción del fluido criógeno y medios de circulación del fluido refrigerador del cambiador.

10

15

4.- Dispositivo según la reivindicación 3, en el cual la parte del dispositivo que contiene el baño criógeno y el cambiador es de forma tubular, estando situado el baño criógeno debajo del cambiador.

20           5.- Dispositivo según la reivindicación 4, en el cual la parte del dispositivo que comprende los medios de introducción del líquido criógeno y los medios de circulación del fluido refrigerador está dispuesta encima de la parte del dispositivo que contiene el baño criógeno y el cambiador que es vertical y está desplazada con relación a esta última, estando previstos medios de unión entre estas dos partes del dispositivo.

25

6.- Dispositivo según la reivindicación 5, para irradiación bajo la acción de la radiación procedente del núcleo de una pila de piscina, en el cual dicho desplazamiento está previsto a un nivel del dispositivo tal que el grosor del líquido modera

30

263172



dor encima de la parte de este dispositivo que contiene el baño criógeno y el cambiador es por lo menos igual al grosor de una protección biológica realizada con este moderador.

5 7.- Dispositivo según la reivindicación 5, en el cual dichos medios de unión están constituidos por un conjunto tubular de transferencia, desmontable, estando provistos los extremos tubulares opuestos de este conjunto y de las otras dos partes del dispositivo de juntas de estanqueidad dispuestas aproximadamente en un mismo plano horizontal.

10 8.- Dispositivo criógeno para irradiación a baja temperatura.

Tal y como se ha descrito en la Memoria que antecede, representado en los dibujos que se acompañan y con los fines que se han especificado.

15 Esta Memoria consta de quince hojas escritas a máquina por una sola cara.

Madrid,

12 DIC. 1951  
P.A.)  
*[Handwritten signature]*

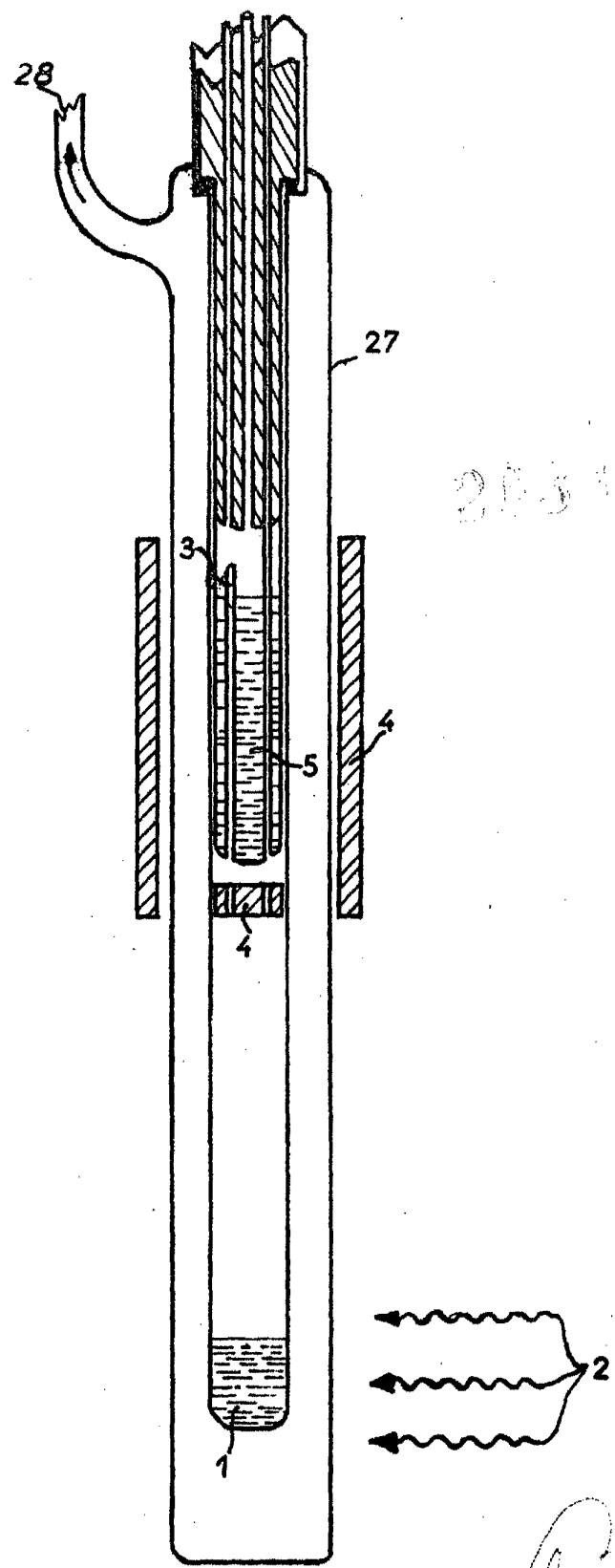
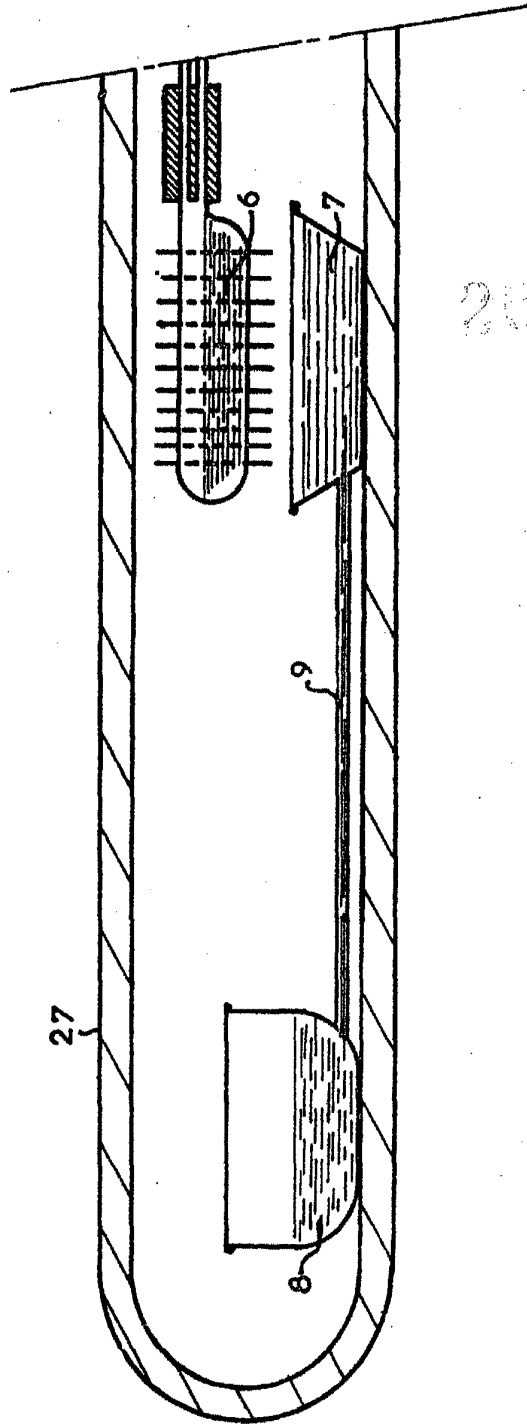


Fig.1

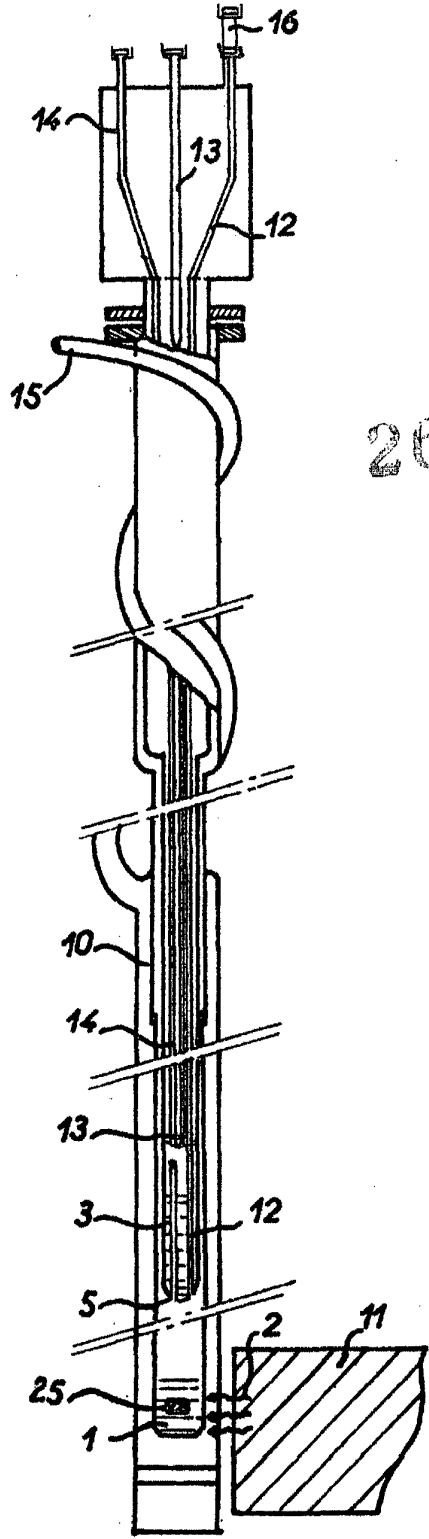
*Handwritten signature or initials.*



283172

Fig. 2

*W. L.*



263172

Fig.3

*Arb.*



263 172

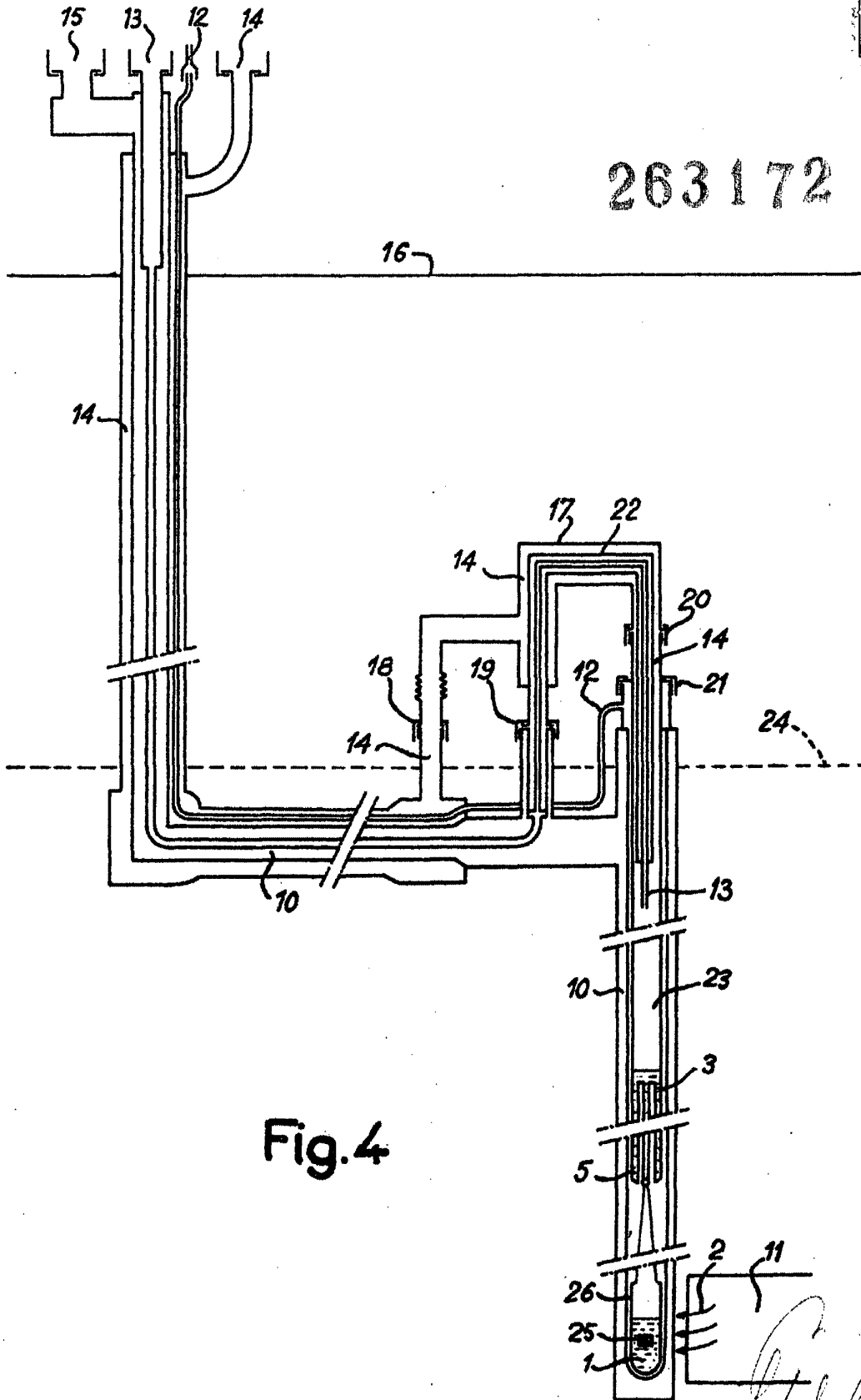


Fig. 4

*Alle*