



PATENTE DE INVENCION

Your ref: Pats/24/2081/22

**3 01 6 96**

G 21 C 015260, G 21 C 005120

*Memoria Descriptiva*

*sobre:*

"Procedimiento para reducir la pérdida de carbon de un moderador de grafito en un reactor nuclear".

*Solicitante:*

UNITED KINGDOM ATOMIC ENERGY AUTHORITY, entidad inglesa, residente en 11-12, Charles II Street, Londres, S.W.1. Inglaterra.

Este invento se refiere a reactores nucleares dotados de un moderador de grafito y con refrigeración por dióxido de carbono, que circula a través del reactor, sometido a presión y forma -

5. contacto con el moderador.



5. Es sabido que en dichos reactores se realiza una reacción entre el moderador de grafito y el refrigerante, que da por resultado una pérdida de carbón del moderador, y que el ritmo de la reacción aumenta con el nivel de irradiación, de tal modo -- que en reactores de régimen elevado, la pérdida de carbón del moderador, puede ser seria. Este invento se relaciona especialmente, por tanto, con la provisión de medios para inhibir la reacción y reducir la pérdida.

10.

En la solicitud de la Patente Británica - No. 874.487, se describe la inhibición de la reacción manteniendo en el refrigerante una proporción de monóxido de carbono, variable entre 0,5 y 10% en volumen. Este invento se funda en el descubrimiento de que el efecto de inhibición del monóxido de carbono aumenta si se añade también al refrigerante un hidrocarburo parafínico.

15.

Este invento, por tanto, en uno de sus - aspectos, consiste en la adición de un hidrocarburo parafínico, líquido, al refrigerante de dióxido de carbono de un reactor nuclear moderado con grafito.

20.

En la actualidad se admite que el efecto inhibitor de los hidrocarburos parafínicos, se debe a la absorción del verdadero hidrocarburo o de algún producto radiolítico tal y como los radiales metilo de la superficie del moderador de grafito. Se ha descubierto sin embargo, que la concentración de los hidrocarburos parafínicos añadidos al refrigerante de acuerdo con este invento, disminuye gradual-

25.

30.

- 3 - 30 1696



- mente durante un periodo de tiempo y que, aunque el efecto inhibitor no cesa inmediatamente, para la protección permanente del moderador de grafito, se consideran necesarias las adiciones repetidas de hidrocarburos parafínicos, a un ritmo controlado. Con preferencia, las adiciones son continuas, de tal modo que la concentración preferida de hidrocarburos parafínicos, se conserva en el refrigerante del reactor.
- 5.
10. Este invento, por tanto, consiste, en un segundo aspecto, en un refrigerante de dióxido de carbono, para un reactor nuclear moderado con grafito; el refrigerante contiene, por lo menos, 50 partes por millón, en volumen, de un hidrocarburo parafínico.
15. Los hidrocarburos parafínicos se descomponen, sometidos a irradiación, y en el refrigerante del reactor se formará metano al que se añadirán -- aquellos incluso en el caso de no agregarse específicamente. Además, la sencillez del metano los hace especialmente útil como aditivo. Consiguientemente, este invento consiste también en un refrigerante de dióxido de carbono que contenga, por lo menos, 50 partes por millón, en volumen, de metano.
- 20.
25. El efecto inhibitor de los hidrocarburos se reduce evidentemente si se halla también presente vapor de agua en el refrigerante y, en general, cuanto menos vapor de agua esté presente, tanto más -- efectiva será la inhibición por los hidrocarburos presentes, y cuanto más elevada sea la concentra-
- 30.



5. ción de metano en el refrigerante, tanto mayor será la cantidad total de vapor de agua que podrá tolerarse. La influencia del vapor de agua sobre el -- efecto inhibitor es más apreciable en las concentra- ciones crecientes, sin embargo, y es preferible que la concentración del vapor de agua sea inferior a - la mitad de la concentración del metano en el refri- gerante.

10. El monóxido de carbono se hallará siempre presente en el refrigerante de dióxido de carbono - de la descomposición del dióxido de carbono sometido a irradiación, y puede también añadirse delibe- damente. Se ha comprobado, sin embargo, que si se - añade un hidrocarburo parafínico al refrigerante, -  
15. de acuerdo con este invento, la cantidad precisa de monóxido de carbono para producir un efecto inhibi- dor satisfactorio, es susceptible de reducción. Esta reducción constituye una ventaja ya que disminuye la tendencia al depósito de carbón en los circuitos del refrigerante, del exterior del reactor. A con-  
20. tinuación se describen ejemplos aclaratorios de este invento y se hace referencia a las figuras 1 y 2, que ambas constituyen gráficas.

25. Los ejemplos siguientes aclaran el efec- to inhibitor en presencia del metano.

EJEMPLO 1

30. Una muestra de grafito, análogo al emplea- do para estructuras moderadoras de reactores nuclea- res, se expuso en un flujo de neutrones de  $3,6 \times 10^{13}$  a una corriente de dióxido de carbono. La presión -

- 30 1696



- manométrica era de 14,7 kg/cm<sup>2</sup> aproximadamente y la temperatura, de unos 350°C. Una muestra análoga se expuso a continuación, en condiciones similares, a una corriente de dióxido de carbono que contenía 5,6 volúmenes de monóxido de carbono y 440 partes por millón, en volumen, de metano. Con el metano y el monóxido de carbono presentes, la pérdida de peso de la muestra de grafito se redujo por un factor de 12 aproximadamente.
- 5.
10. EJEMPLO 2
- El mismo tipo de muestra del Ejemplo 1 se expuso en condiciones iguales a las de dicho Ejemplo, a una corriente de dióxido de carbono que contenía 0,44 volúmenes de monóxido de carbono, y una muestra análoga se expuso a dióxido de carbono que contenía 0,44 volúmenes de monóxido de carbono y 500 partes por millón de metano, en volumen. En este ejemplo la pérdida de peso de la muestra del grafito se redujo por un factor de 6, en presencia del metano.
- 15.
20. EJEMPLO 3
- En las mismas condiciones de los Ejemplos anteriores, el mismo tipo de muestras se expusieron a dióxido de carbono puro, y a dióxido de carbono que contenía 2,2 volúmenes de monóxido de carbono y 540 partes por millón de metano. La pérdida de peso se redujo en presencia del metano y del monóxido de carbono, por un factor de 15, mientras que una concentración análoga de monóxido de carbono, sin metano, proporcionó un factor de reducción de 1,6 solamente.
- 25.
30. Para aclarar el efecto del metano y otros hi-

- 6 301696



- drocarburos en la irradiación de dióxido de carbono y de dióxido de carbono que contenía, respectivamente metano, etano, propano, n-butano y neopentano, - se hicieron pasar sobre muestras de grafito activadas con carbono-14 dispuestas en el flujo de neutrones de un reactor experimental, y se determinó la actividad del carbón-14 en el gas de salida, para cada mezcla, como representativa del grado de ataque de la muestra del grafito. El factor de inhibición para cada muestra comparado con el dióxido de carbono puro se calculó a continuación con una relación  $\frac{\text{actividad en CO}_2 \text{ puro}}{\text{actividad en la mezcla}}$
- 5.
- 10.

Se obtuvieron los siguientes resultados:

- 7 - 301696



T A B L A I

Experimento No.	Colocación de la muestra.	Resultados analíticos, volúmenes por minuto.								factor de inhibición.
		CO	H <sub>2</sub>	H <sub>2</sub> O	CH <sub>4</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>6</sub>	C <sub>3</sub> H <sub>8</sub>	n-C <sub>4</sub> H <sub>10</sub>	neo-C <sub>5</sub> H <sub>12</sub>	
1	entrada	4800	<10	40	190					6.2-8.2
	salida	4800	60	90	110					
2	entrada	<10	<10	20	<5	340				20-27
	salida	1400	180	520	25	<10				
3	entrada	<20	<10	430	<5	<20	195			32-40
	salida	1000	80	420	60	N.D.	N.D.			
4	entrada	<100	<10	250	<5	-	-	200		65-95
	salida	1100	80	550	80	N.D.	N.D.	N.D.		
5	entrada	<20	<10	20	<5	<20	(presen	200		> 120
	salida	1400	40	450	180	60	te)	-	-	

Se obtuvieron también los resultados siguientes con el empleo de muestras de grafito activadas con carbón-14, y que indican el efecto de cantidades variables de metano en el refrigerante.

- 8 30 1696



T A B L A II

Experimento No.	Volúmenes		volúm. por millón		v. por millón		v. por millón		factor de in- hibición
	dentro	fuera	dent.	fuera.	dent.	fuera	dent.	fuera	
1 *	0.48	0.48	190	110	< 10	60	40	90	6.2-8.2
6	0.42	0.34	380	190	< 10	60	20	120	8-10
7	0.43	0.46	430	380	< 10	110	40	180	14.9-179
8	0.44	0.47	490	360	< 10	90	40	180	16-20
9	0.33	0.38	790	500	< 10	130	20	250	25-33
10	1.22	1.14	180	135	< 10	50	30	35	5.7-7.5
11	0.83	0.85	300	190	< 10	90	50	45	9.2-10.8
12	0.87	0.85	300	180	< 10	110	35	40	8.0-10.6
13	1.67	1.64	85	55	< 10	60	60	15	3.0.-3.8
14	1.82	1.82	440	340	< 10	170	20	50	13-19
15	1.7	1.8	450	400	< 10	100	40	45	17.5-22.5
16	1.51	1.47	930	750	< 10	110	45	110	37-49
17	5.4	5.0	430	340	20	100	40	80	10.7-14.7
18	nil	0.10	540	250	< 10	130	48	400	10-12
19	0.52	0.56	480	330	950	760	40	270	10-12
20	1.07	1.15	2400	2000	550	590	60	420	60-80

\* De la Tabla I



- Como se indica en la comunicación presentada por Lind y Wright (Simposio B.N.E.S., el reactor avanzado por refrigeración por gas, Comunicación - No. 20), el ritmo de la reacción  $\text{CO}_2$ -grafito es proporcional a la energía absorbida por el gas refrigerante en los poros del grafito. Así pues la extensión de la reacción en un reactor nuclear, dependerá de la cantidad de gas refrigerante en los poros del grafito y esto, a su vez dependerá de la presión del refrigerante y del volumen abierto en los poros del grafito. Consiguientemente el problema de la corrosión del grafito aumenta en la presión del refrigerante. El grado de la reacción depende también del flujo de energía. Es por tanto necesario aumentar el factor de inhibición cuando aumenta el flujo de los reactores. Por ejemplo, en un reactor del tipo Magnox, con un flujo de energía del orden de 3 MW/tonelada adyacente se considera que la presencia de 400 volúmenes por millón de metano, proporcionará protección adecuada, para al aumentar el flujo de energía utilizando grupos de elementos de combustible en lugar de elementos sencillos (como en el reactor avanzado refrigerado por gas de Windscale que tiene un flujo de energía del orden de 20 MW/tonelada adyacente) se considera conveniente que la concentración del metano se aproxime a 1.000 volúmenes por millón. El efecto de la presencia, de aproximadamente, esta cantidad de metano, en el reactor avanzado refrigerado por gas de Windscale, se indica en el grafito de la figura 1, que -
- 5.
- 10.
- 15.
- 20.
- 25.
- 30.

301696



se refiere a un sistema que contiene tambien 0,4% de monóxido de carbono y entre 200 y 300 volúmenes por millon de agua. Los resultados se obtuvieron por inserción de muestras activadas con carbón-14 en el reactor y se expresa como reducción en el valor  $G(-C)$ , o sea el número de átomos de carbono separados por la matriz de grafito, por 100 electron voltios de energia absorbidos por el gas en los poros del grafito, determinandose calorimétricamente la absorción de energia. En ausencia del metano el valor  $G(-C)$ , era la unidad.

5.

10.

Cuanto más vapor de agua se hallaba presente en el refrigerante tanto más metano se precisaba para obtener un factor de inhibición dado. Las ventajas de mantener la concentración de vapor de agua a un nivel reducido, se representan por el grafico de la figura 2, que indica el efecto en el refrigerante que contenia 400 partes por millón de metano y 0,2-0,5% de monóxido de carbono.

15.

20.

El vapor de agua se forma por descomposición del metano añadido, sometido a irradiación. La eliminación del vapor de agua es por tanto necesaria, mientras se realicen adiciones de metano al refrigerante. Puede utilizarse un secador convencional. Por descomposición del metano, se forma también hidrógeno. Si es necesario, puede eliminarse por oxidación que, al mismo tiempo retiraria el monóxido de carbono en exceso.

25.

N O T A

30.

Descrita suficientemente la naturaleza del



- invento así como la manera de realizarlo en la práctica, debe hacerse constar que las disposiciones anteriormente indicadas son susceptibles a modificaciones de detalle en cuanto no alteren su principio fundamental. También debe hacerse constar que el invento corresponde a una solicitud de patente presentada en Inglaterra con fechas 5 de Julio de 1.963, 19 de febrero de 1.964 y 22 de junio de 1.964, bajo el número 26835/63 y 7026/64, acogiendo por tanto a los beneficios que conceden los convenios internacionales en vigor, siendo lo que constituye la esencia del referido invento y por lo que se solicita Patente de Invención por 20 años en España sobre : "Procedimiento para reducir la pérdida de carbón de un moderador de grafito en un reactor nuclear"; caracterizándose por lo siguiente:
- 5.
- 10.
- 15.
- 20.
- 25.
- 30.
- 1ª.- Procedimiento para reducir la pérdida de carbón de un moderador de grafito en un reactor nuclear, refrigerado con dióxido de carbono, caracterizado porque comprende la adición de un hidrocarburo parafínico fluido al refrigerante de dióxido de carbono.
  - 2ª.- Procedimiento según reivindicación 1 caracterizado porque el hidrocarburo parafínico es metal.
  - 3ª.- Procedimiento según reivindicación 1, caracterizado porque el hidrocarburo parafínico contiene entre 2 y 5 átomos de carbono.
  - 4ª.- Procedimiento según reivindicación 1, caracterizado porque el refrigerante contiene por -



301.696

301696

lo menos 50 partes por millón, en volumen, y preferentemente entre 400 y 2500 partes por millón en volumen de metano.

5.

6a.- Procedimiento según reivindicación 1, caracterizado porque la concentración de vapor de agua es inferior a la mitad de la concentración del metano.

10.

7a.- Procedimiento para reducir la pérdida de carbón de un moderador de grafito en un reactor nuclear, tal y como queda substancialmente descrito en la presente memoria.

Esta memoria consta de doce hojas escritas a máquina por una sola cara.

Madrid,

22 JUL 1964

UNITED KINGDOM ATOMIC ENERGY AUTHORITY.

GOMEZ ACEBO Y MODET

p.p. Firmado: F. Hernández Rutz



30 1696

FIG.1.

ESCALA VARIABLE

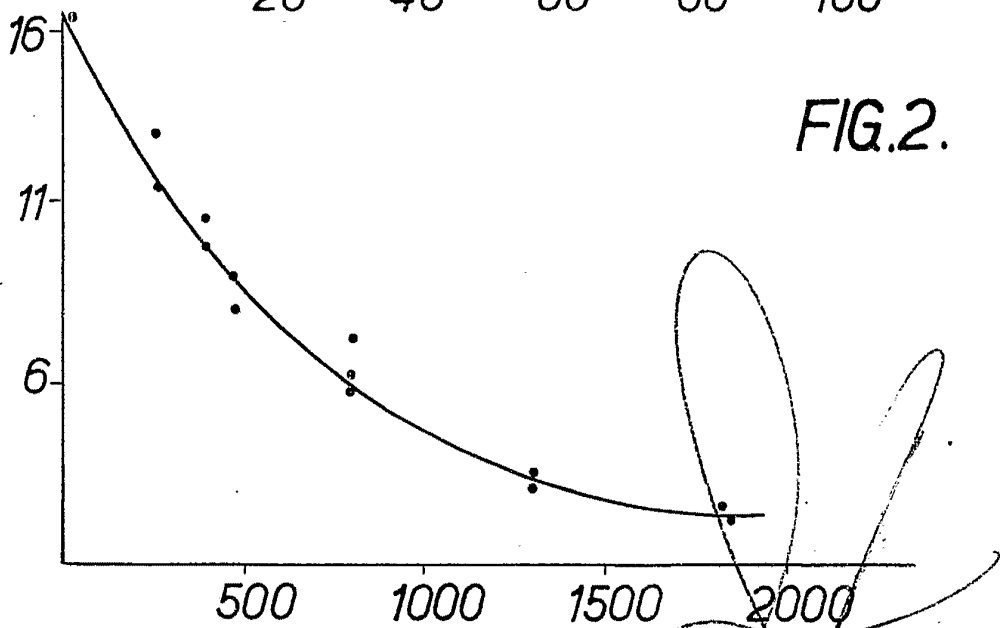
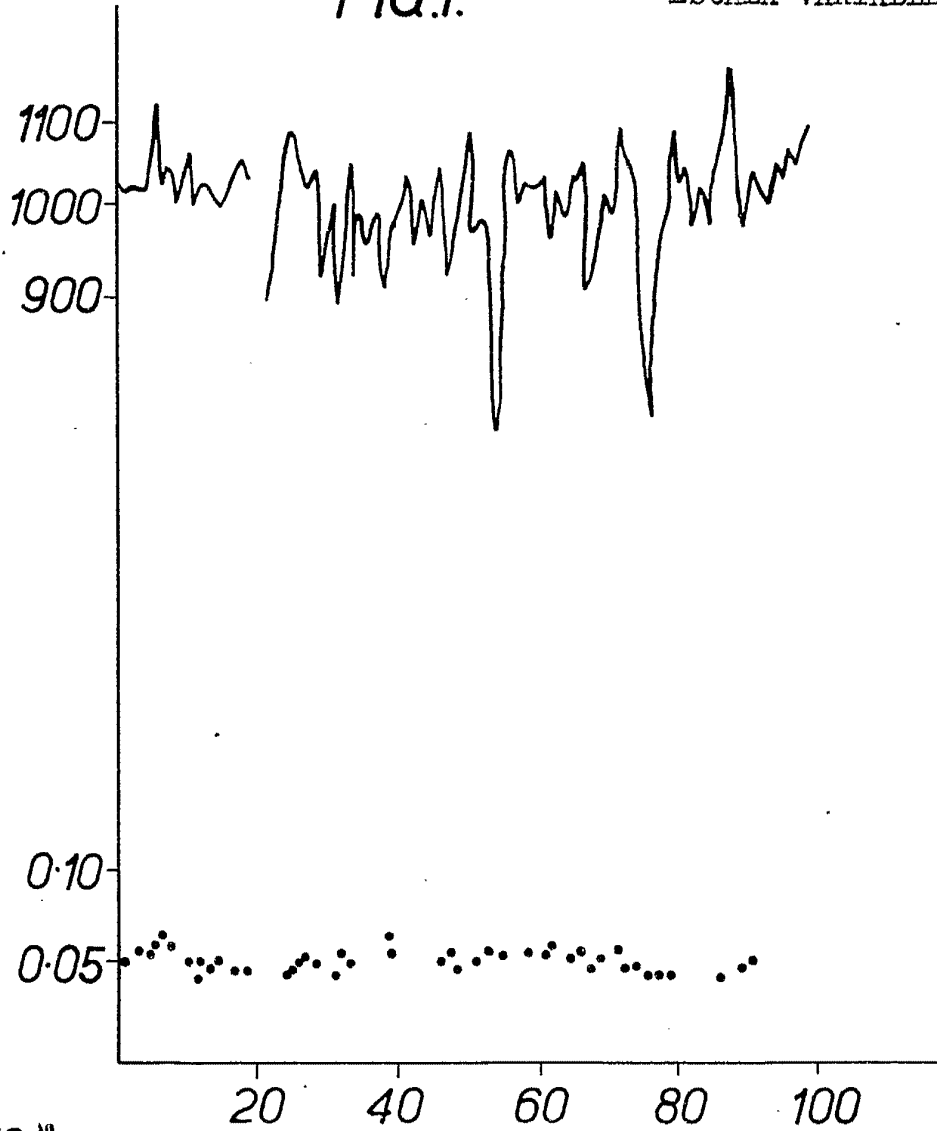


FIG.2.

Madrid,

24.11.54  
J. GONZALEZ