

7-3-75  
- 8 ABR. 1975

IND. CIA	BODI. COLB

P.- 59.873

File: 74-31D

MEMORIA DESCRIPTIVA

para solicitar PATENTE DE INVENCION

a nombre de AMERICAN AIR FILTER COMPANY, INC.

entidad norteamericana

establecida en 215 Central Avenue, Louisville,  
Kentucky 40201, Estados Unidos  
de América

por : "UN METODO PARA SEPARAR YODO RADIOACTIVO Y YODUROS ORGANICOS RADIOACTIVOS DE UNA CORRIENTE DE GASES MALOLIENTES QUE CONTENGAN YODO Y YODURO"

(Clase Internacional COLB, C10K)

## FONDO DE LA INVENCION

Esta invención se refiere a una composición y dispositivos para separar, o sacar, yodo y yoduros orgánicos de una corriente de gases malolientes que contenga yodo y, más particularmente, se refiere a una composición que se puede utilizar en la separación de yodo y yoduro. Aún más particularmente, la invención se refiere a un método para elaborar un material absorbente para la separación de yodo y yoduros orgánicos de la corriente de gases malolientes que contenga yodo y yoduro.

En el desarrollo de las plantas que generan electricidad de propulsión nuclear, han surgido muchos nuevos tipos de problemas de contaminación. En la elaboración de materiales radioactivos en estas instalaciones que generan electricidad de propulsión nuclear, se han centrado grandes intereses alrededor de la separación del yodo radioactivo, el yodo 131, y sus formas orgánicas para evitar el escape del yodo radioactivo en la atmósfera. Ya, varios tipos de dispositivos adsorbentes y filtradores se han desarrollado para la separación del yodo radioactivo de estas corrientes de gas maloliente. El material más comúnmente usado ya disponible, es el carbón activado impregnado. Estos carbones activados, han probado ser adsorbentes efectivos pero han tenido desven

tajas a causa del aún presente problema del autoencendido debido al calor en decrecimiento en grandes cargas. Se ha notado además, que las características adsorbentes de los carbones activados se deterioran en la purga del proceso, del gas maloliente, y el yodo radioactivo se moverá a través del filtro de carbón. También, se ha notado que donde la corriente de gas maloliente contiene apreciables cantidades de humedad, la eficacia de la adsorción de un carbón activado, o filtro de carbón vegetal, se disminuye grandemente.

Otros métodos sugeridos para la separación de yodo y yoduros orgánicos, a partir de corrientes de gas maloliente, han sido, emplear metales que reaccionan con yodo y lo retiene en la superficie como un yoduro, siendo empleados estos metales generalmente en medios filtrantes y lo semejante. Además, se ha propuesto la zeolita plateada y se encuentra que es y hace un trabajo aceptable donde se utiliza la plata en un gran porcentaje. Sin embargo, el costo de este producto es extremadamente alto. También, el trabajo se ha hecho con la impregnación de alúminas de sílice que tienen áreas de superficie de desde 300-400 m<sup>2</sup>/g, siendo los impregnantes nitrato de plata y otros nitratos metálicos. Sin embargo, se ha encontrado que la eficiencia de estos adsorbentes es demasiado pobre.

## RESUMEN DE LA INVENCION

Es un objeto de la presente invención,  
proporcionar un método para la separación de yodo y yodu  
5 ros orgánicos a partir de corrientes de gas malolientes  
de reactores nucleares. Es otro objeto de esta invención,  
proporcionar un proceso para la preparación de un mate-  
rial adsorbente para separar yodo y yoduros orgánicos de  
corrientes de gas de reactores nucleares. Es aún otro  
10 objeto, de esta invención, proporcionar un material ad-  
sorbente de yodo radioactivo que se pueda utilizar para  
sacar yodo y yoduros orgánicos de corrientes de gases  
malolientes de reactores nucleares. Otros objetos y ven-  
tajas de esta invención llegarán a ser aparentes para  
15 los expertos en la técnica en consideración del descu-  
brimiento, o revelación, acompañante.

La presente invención reside en el recono-  
cimiento que ciertos materiales de cerámica impregnados  
con sales metálicas cuando están en contacto con yodo  
20 radioactivo y yoduros orgánicos radioactivos atrapan o  
adsorben estos materiales radioactivos. Se ha encontrado  
que muchos materiales cerámicos de escalas preescogidas  
de área de superficie, cuando se impregnan con sales me-  
tálicas, son susceptibles a la adsorción del yodo radioac-  
25 tivo cuando hacen contacto por una corriente que contiene

5            estos materiales radioactivos, siendo los adsorbentes  
            más efectivos aquellos en donde el área de superficie  
            del material cerámico está entre aproximadamente 5 a cer  
            ca de 250 m<sup>2</sup>/g. Además, se ha encontrado que las sales  
10            de nitrato de plata, cobre, cadmio, plomo, cinc, níquel,  
            cobalto, cerio y mezclas de los mismos, tienen fuerte  
            afinidad para la quimioadsorción y ligadura de los yodos  
            radioactivos con las sales de nitrato de plata que es lo  
            más efectivo. Además, se nota que el porcentaje por pe-  
15            so de los impregnantes, en el material de cerámica, tam-  
            bién tiene un efecto sobre la afinidad del material de  
            cerámica para adsorber el yodo radioactivo y el yoduro.  
            Por ejemplo, se ha encontrado que los materiales cerámicos  
            impregnados con nitratos metálicos para los materiales  
20            adsorbentes más eficientes incluyen desde cerca de 5% a  
            aproximadamente 15% por peso del impregnante. Aún ade-  
            más se ha encontrado que los materiales preferidos de  
            cerámica para la más efectiva remoción del yodo radioacti  
            vo y el yoduro, son aquellos que contienen sílice y alú-  
25            minas de sílice.

            Un material preferido que adsorbe yodo ra  
            dioactivo encontrado útil en la presente invención, es  
            un material cerámico que tiene una área de superficie de  
            desde aproximadamente 5 m<sup>2</sup>/g a aproximadamente 250 m<sup>2</sup>/g  
25            en donde el material cerámico se escoge del grupo consis



5 el yodo radioactivo y los yoduros orgánicos radioactivos, se separan de una corriente de gas maloliente que contenga yodo y yoduro radioactivos al pasar la corriente del gas maloliente a través de un lecho de material adsorbente que tenga un área de superficie de cerca de  $5 \text{ m}^2/\text{g}$  a  $250 \text{ m}^2/\text{g}$ , estando, el material adsorbente, impregnado con una sal metálica.

10 Se puede obtener un entendimiento más comprensible de la invención al considerar los siguientes ejemplos. Sin embargo, se debe entender que los ejemplos no están pensados para ser indebidamente limitativos de la invención.

#### EJEMPLOS I - VI

15

Los siguientes ejemplos demuestran el procedimiento que se siguió al preparar un material que adsorbe yodo radioactivo y luego utilizar el material en una corriente de gases malolientes que contengan yodo radioactivo.

20

#### EJEMPLO I

25 Se preparó un material adsorbente cerámico al cortar una capa de Fibra de Kaowool de 2,54 cm

(1 pulg) de grueso que tenga una área de superficie de  $10 \text{ m}^2/\text{g}$  a  $50 \text{ m}^2/\text{g}$  en discos de 5,08 cm (2 pulg) de diámetro, siendo, el Kaowool, un producto de Babcock y Wilcox y se hace de un caolín pardo que y arcilla de china de sílice y alúmina natural. Los discos se trataron luego, o se desgasificaron, en aproximadamente  $150^\circ\text{C}$  y 4 a 5 mm de Hg durante un período de 3 horas y se enfrió a temperatura ambiente. Los discos se pesaron luego y se mantuvieron en un deshidratante antes de sumergirlos en una solución acuosa que contiene nitrato de plata.

Luego, se preparó una solución acuosa al añadir 7,5 gramos de nitrato de plata a una vasija que contiene 200 ml de agua destilada. Se impregnaron 100 gramos de discos en esta solución durante un período de aproximadamente 30 minutos luego se separaron y se secaron en aproximadamente  $100^\circ\text{C}$  durante cerca de 6 horas y luego se tomaron y se llevaron a un secado final de aproximadamente  $175^\circ\text{C}$  durante aproximadamente 4 horas.

#### EJEMPLO I - A

Se formó una porción del producto cerámico impregnado en un lecho de 5,08 cm (2 pulg) de grueso y se colocó en una corriente de gases radioactivos que contiene  $2,0 \text{ mg}/\text{m}^3$  de yoduro de metilo radioactivo duran

te 2 horas, en donde la temperatura de la corriente del gas estuvo cerca de 88°C y la humedad relativa a 90%. Más tarde, el producto expuesto se purgó con aire húmedo limpio en las susodichas condiciones durante 2 horas.

5                    Se encontró que el material radioactivo separado de la corriente de gas fue aproximadamente 99,0%.

#### EJEMPLO I - B

10                    Se formó una segunda porción del producto cerámico impregnado en un lecho de 5,08 cm (2 pulg) y se colocó en una segunda corriente de gas conteniendo 15-20 mg/m<sup>3</sup> de yodo-131 radioactivo durante 90 minutos, siendo la temperatura de la corriente del gas 130°C en una presión de 3,867 kg/cm<sup>2</sup> (55,0 libras/pulg<sup>2</sup>) y la humedad re-  
15                    lativa de 92%. El producto expuesto se purgó luego con aire húmedo limpio en las susodichas condiciones durante 90 minutos.

20                    La eficiencia de la separación, en estas condiciones, se encontró que es 99,9%.

#### EJEMPLO II

25                    Se preparó un material cerámico adsorbente al cortar una tela, o capa, de fibra de Kaowool de

2,54 cm (1 pulg) de espesor, teniendo una área de superficie de  $10 \text{ m}^2/\text{g}$  a  $50 \text{ m}^2/\text{g}$  en discos de 5,08 cm (2 pulg) de diámetro, siendo el Kaowool un producto de Babcock y Wilcox y se hace de una arcilla china de sílice y alúmina natural y caolín pardo. Se sumergieron 100 gramos de los discos en una vasija que contiene 500 ml de solución de  $\text{HNO}_3$  al 50% (v/v) durante 30 minutos y se secó durante 16 horas a  $110^\circ\text{C}$ . Los discos tratados con ácido se pesaron luego y se mantuvieron en un receptáculo plástico antes de sumergirse en una solución acuosa que contenía nitrato de plata.

Se preparó luego una solución acuosa al añadir 7,5 gramos de nitrato de plata a una vasija que contenga 200 ml de agua destilada. Se remojaron 100 gramos de discos tratados con ácido luego en esta solución durante un período de aproximadamente 30 minutos, luego se separaron y se secaron en aproximadamente  $100^\circ\text{C}$  durante cerca de 6 horas y se llevaron a un secado final de aproximadamente  $175^\circ\text{C}$  durante aproximadamente 4 horas.

Se formó una porción del producto cerámico impregnado en un lecho de 5,08 cm (2 pulg) de espesor y se colocó en una corriente de gas radioactivo conteniendo aproximadamente  $6,0 \text{ mg}/\text{m}^3$  de yoduro de metil radioactivo durante 90 minutos. La temperatura de la corriente de gas fue de cerca de  $132^\circ\text{C}$  a una presión de  $3,867 \text{ kg}/\text{cm}^2$

(55 pulg<sup>2</sup>) y una humedad relativa de 90%. El material expuesto se purgó luego con aire húmedo limpio bajo las susodichas condiciones durante 90 minutos.

5 Se encontró que el porcentaje del material radioactivo separado fue de aproximadamente 99,998%.

### EJEMPLO III

10 Un material de base adsorbente cerámico de kieselgur un sílice de diatomeas natural que tiene un área de superficie de 40 a 60 m<sup>2</sup>/g en forma extruída de 1,588 mm (1/16") de diámetro, se trató o desgasificó en aproximadamente 150°C y 4 mm de Hg durante un período de 3 horas y luego se enfrió a temperatura ambiente. Se pe  
15 saron luego las extrusiones y se mantuvieron en un deshidratante antes de sumergirse en una solución acuosa que contiene nitrato de plata.

20 Se preparó luego una solución acuosa al añadir 7,5 gramos de nitrato de plata a una vasija conteniendo 250 ml de agua destilada. Se remojaron 100 gramos de las extrusiones en esta solución durante un período de aproximadamente 30 minutos entonces se separaron y se secaron a aproximadamente 100°C durante aproximadamente 6 horas y se llevaron a un secado final de aproximadamente 25  
25 madamente 175°C durante aproximadamente 4 horas.

Se formó luego una porción del producto cerámico impregnado en un lecho de 2,54 cm (1 pulg) de espesor y se colocó en una corriente de gas radioactivo conteniendo aproximadamente 2,0 mg/m<sup>3</sup> de yoduro 131 de metilo durante 90 minutos, siendo la temperatura de la corriente de gas de aproximadamente 87°C con humedad relativa de cerca de 90%. El producto expuesto se purgó luego con aire húmedo limpio en las dichas condiciones durante 2 horas.

Se encontró que el lecho de 2,54 cm (1 pulg) de profundidad de este material se separó aproximadamente 95% del material radioactivo.

#### EJEMPLO IV

Un material cerámico de base adsorbente de kieselgur un sílice de diatomeas natural que tiene un área de superficie de 40 a 60 m<sup>2</sup>/g, en forma extruída de 1,5883mm (1/16") de diámetro se trató o desgasificó en aproximadamente 150°C y 4mm Kg durante un período de 3 horas y luego se enfrió a temperatura ambiente. Se pesaron luego las extruisiones y se mantuvieron en un deshidratante antes de sumergirse en una solución acuosa que contenga nitrato de plata.

Se preparó luego una solución acuosa al

añadir 10,0 gramos de nitrato de plata a una vasija que contiene 250 ml de agua destilada. Se remojaron 100 gramos de las extrusiones en esta solución durante un período de cerca de 30 minutos luego se separaron y se seca-  
5 ron en aproximadamente 100°C durante cerca de 6 horas y se llevaron a un secado final de cerca de 175°C durante aproximadamente 4 horas.

Una porción del producto impregnado se formó luego en un lecho de 5,08 cm (2 pulg) de espesor y se colocó en una corriente de gas radioactiva conteniendo 34 mg/m<sup>3</sup> de yoduro de metilo radioactivo durante una hora, siendo la temperatura de la corriente del gas aproximadamente 130°C a una presión de 3,867 kg/cm<sup>2</sup> (55 libras/pulg<sup>2</sup>) y una humedad relativa de 91%. La muestra  
10 expuesta se purgó luego con aire húmedo limpio en las su sodichas condiciones durante una hora.

Se encontró que la eficiencia de la separación del yoduro de metilo radioactivo era de 99,983%.

20

#### EJEMPLO V

Un material cerámico de base adsorbente de alúmina y sílice granular que tiene una área de superficie de 150 m<sup>2</sup>/g, se trató o desgasificó en aproximadamente 150°C y 4 a 5 mm de Hg durante un período de 3 ho  
25

ras y luego se enfrió a temperatura ambiente. Los gránulos se pesaron luego y se mantuvieron en un desecador antes de sumergirse en una solución acuosa conteniendo nitrato de plata.

5                    Se preparó luego una solución acuosa al añadir 7,5 gramos de nitrato de plata a una vasija que contiene 250 ml de agua destilada. Se remojaron 100 gramos de los gránulos en esta solución durante un período de aproximadamente 30 minutos, luego se separaron y se  
10                    secaron a aproximadamente 100°C durante aproximadamente 6 horas y se llevaron a un secado final de aproximadamente 175°C durante aproximadamente 4 horas.

EJEMPLO V-A

15                    Una porción del producto cerámico impregnado se formó en un lecho de 5,08 cm (2") de espesor y se colocó en una corriente de gas radioactiva conteniendo aproximadamente 2 mg/m<sup>3</sup> de yoduro de metilo radioactivo durante 50 minutos, siendo la temperatura de la corriente de gas 85°C con una humedad relativa de 72%. El  
20                    material expuesto se purgó luego con aire húmedo limpio en las susodichas condiciones durante 2 horas.

                         Se encontró que la eficiencia del yoduro de metilo radioactivo es de 99,88%.

25

#### EJEMPLO V - B

Una segunda porción del material impregnado se probó como arriba a 130°C, la presión a 3,867 kg/cm<sup>2</sup> (55 libras/pulg<sup>2</sup>) y una humedad relativa mayor de 100% con una concentración de yoduro de metilo radioactivo de 38,0 mg/m<sup>3</sup>.

La eficiencia de separación para el lecho de 2" (5,08 cm) se encontró que era de 99,6%.

10

#### EJEMPLO VI

Un material cerámico de base adsorbente de alúmina y sílice que tiene una área de superficie de 200 m<sup>2</sup>/g en la forma de extrusiones de 3,175 mm (1/8"), se trató o desgasificó en aproximadamente 150°C y 4 a 5 mm de Hg durante un período de 3 horas y luego se enfrió a temperatura ambiente. Las extrusiones se pesaron y se mantuvieron en un desecador antes de sumergirse en una solución acuosa conteniendo nitrato de plata.

20

Se preparó una solución acuosa luego al añadir 7,5 gramos de nitrato de plata a una vasija conteniendo 250 ml de agua destilada. Se remojaron 100 gramos de extrusiones en esta solución durante un período de aproximadamente 30 minutos luego se separaron y se se

25

caron en cerca de 100°C durante 6 horas y se llevaron a un secado final de aproximadamente 175°C durante aproximadamente 4 horas.

5

EJEMPLO VI - A

Una porción del producto cerámico impregnado se formó en un lecho de 5,08 cm (2") de espesor y se colocó en una corriente de gas radioactiva conteniendo 2,0 mg/m<sup>3</sup> de yoduro de metilo radioactivo durante 90 minutos. Siendo la temperatura de la corriente del gas de 86°C con una humedad relativa de 70%. El producto expuesto se purgó luego con aire húmedo limpio en las su sodichas condiciones durante 2 horas.

15

La eficiencia de separación del yoduro de metil radioactivo fue de 99,0%.

EJEMPLO VI - B

20

Una segunda porción del producto cerámico impregnado se formó en un lecho de 5,08 cm (2") de espesor y se colocó en una corriente de gas que contiene 15-20 mg/m<sup>3</sup> de yodo radioactivo durante 90 minutos, siendo la temperatura de la corriente de gas de 130°C a una presión de 3,867 kg/cm<sup>2</sup> (55 libras por pulgada cuadrada)

25

con una humedad relativa de 92%. El material expuesto se purgó luego con aire húmedo limpio durante 90 minutos.

Se encontró que se separó el 99,9% del material radioactivo.

5                    En los susodichos Ejemplos I-VI, la eficiencia de la separación fue al menos 99% para los lechos de 5,08 cm (2") de espesor, lo que es una proporción relativamente alta de adsorción del yodo radioactivo y al menos 95% para un lecho de 2,54 cm (1") de espesor.

10                   Se entiende que las corrientes de gas maloliente significa incluir sistemas caracterizados para la seguridad industrial y sistemas de adsorción de gases atmosféricos así como sistemas de escape del condensador.

15                   Esta solicitud que corresponde a la presentada en Estados Unidos de América, el 18 de Julio de 1974, bajo el Nº 489.524, se acoge a los beneficios del Artículo 51 del vigente Estatuto sobre Propiedad Industrial.

20

#### REIVINDICACIONES

25                   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 que se recogen en las reivindicaciones siguientes:

5

10

1ª.- Un método para separar yodo radioactivo y yoduros orgánicos radioactivos de una corriente de gases malolientes que contengan yodo y yoduro, que comprende pasar una corriente de gases malolientes que contienen yodo y yoduro a través de un lecho de material cerámico adsorbente que tiene una área de superficie de desde cerca de 10 m<sup>2</sup>/g a aproximadamente 250 m<sup>2</sup>/g, estando, el material adsorbente, impregnado con una sal metálica.

15

2ª.- Un método para preparar yodo radioactivo y yoduros orgánicos radioactivos de una corriente de gases malolientes que contengan yodo y yoduro.

Tal y como se ha descrito en la Memoria que antecede y para los fines que se han especificado.

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

Madrid,

24 MAY 1976

P.A.

Fernando de Elizaburu

Por Poderes

7-5-76  
VGD.