



ESPAÑA

19 ES	11	NUMERO	449527	12 A1
	21	FECHA DE PRESENTACION		

PATENTE DE INVENCION



30 PRIORIDADES:	32 FECHA	33 PAIS
31 NUMERO 592,855	2 Julio 1.975	Estados Unidos.

47 FECHA DE PUBLICIDAD	51 CLASIFICACION INTERNACIONAL	62 PATENTE DE LA QUE ES DIVISIONARIA
------------------------	--------------------------------	--------------------------------------

54 TITULO DE LA INVENCION

METODO Y SU CORRESPONDIENTE APARATO PARA DETECTAR LA PRESENCIA DE UN VAPOR METALICO EN UNA ATMOSFERA CONFINADA MEDIANTE LA UTILIZACION DE UNA SUSTANCIA RADIOACTIVAMENTE MARCADA.

71 SOLICITANTE (S)

WESTINGHOUSE ELECTRIC CORPORATION

DOMICILIO DEL SOLICITANTE

Westinghouse Building, Gateway Center,
Pittsburgh, Pennsylvania 15222 - Estados Unidos.

72 INVENTOR (ES)

KUAN-HAN SUN, estadounidense.

73 TITULAR (ES)

74 REPRESENTANTE

D. BERNARDO UNGRIA GOIBURU

OF.



El invento se refiere a un método y a un aparato extremadamente sensible para detectar la presencia de un fluido metálico líquido, destinado principalmente a ser utilizado en reactores nucleares refrigerados por metal líquido. Más precisamente, se hace reaccionar el vapor metálico líquido contenido en una muestra de aire con una sustancia marcada radioactivamente, dando lugar a la liberación de un gas radioactivo en una cantidad proporcional a la cantidad de fluido metálico y se controla esta cantidad.

En todos los reactores nucleares, la detección de las fugas de refrigerante del reactor a partir del sistema primario es de importancia máxima para un funcionamiento seguro del equipo del reactor. Cuanto más temprano se efectúa esta detección, tanto menos probables serán los efectos perjudiciales en los sistemas del reactor, en el personal de servicio, y en el medio ambiente. Un sistema de detección capaz de detectar las fugas de pequeña magnitud asegura además que estas pequeñas fugas no podrán propagarse.

El sistema primario del reactor está contenido típicamente en una amplia estructura de contención, y la atmósfera en el interior del recinto está controlada para reducir al mínimo las fugas hacia el medio ambiente. Una estructura de recinto tiene aproximadamente un diámetro de 45,72 m (150 pies) y una altura superior a 60,95 m (200 pies) conteniendo un volumen interno libre del orden de 84.950 m^3 (3 millones de pies cúbicos). Por tanto, las pequeñas fugas de refrigerante del reactor son muy diluidas y exigen un sistema de detección extremadamente sensible. Algunos reactores utilizan un refrigerante constituido por un metal líquido, tal como sodio, potasio o una combinación de estos dos



metales ("NAK"). Una fuga del sistema principal en dichos reactores produce la salida de dicho metal líquido bajo la forma de un vapor en razón de la elevada temperatura de funcionamiento del reactor.

5 El objeto principal del invento consiste en proporcionar un método y un aparato extremadamente sensibles para la detección del metal líquido liberado en forma de vapor.

Teniendo en cuenta este objeto, el invento consiste en un método para detectar la presencia de un vapor metálico en una atmósfera confinada utilizando una sustancia marcada radioactivamente, estando dicho vapor metálico constituido por un metal elegido en el grupo que consiste en sodio, potasio, y mezclas de éstos, e incluyendo dicho método en las operaciones que consisten en hacer pasar una corriente de dicha atmósfera a través de una columna de intercambio que contiene dicha sustancia radioactivamente marcada, y en hacer pasar dicha corriente a través de una cámara de ionización para efectuar la detección de radioactividad con el fin de obtener una indicación de la presencia de dicho vapor metálico, caracterizado porque dicha sustancia marcada radioactivamente es capaz de liberar tritio cuando está en contacto con dicho vapor metálico e incluye por lo menos un compuesto químico elegido en el grupo que consiste en XT, siendo T el tritio y eligiéndose X en el grupo que consiste en OH, -OT, RCOO-, y RO- y mezclas de estos componentes, siendo $R-C_nH_{2n+1}$ y variando n entre 1 y 20 aproximadamente.

El invento consiste igualmente en un aparato para detectar la presencia de un vapor metálico en una atmósfera cerrada mediante la utilización de una sustancia marcada ra



dioactivamente, incluyendo dicho vapor metálico un metal
 elegido en el grupo que consiste en sodio, potasio y mez
 clas de estos, incluyendo dicho aparato una columna de in
 5 tercambio que contiene dicha sustancia marcada radioacti-
 vamente; un dispositivo para conducir una parte de dicha
 atmósfera a través de dicha columna de intercambio; un dis
 positivo para detectar la radioactividad con el objeto de
 obtener una indicación de la presencia de dicho vapor metá
 lico; y un dispositivo para hacer pasar la porción conduci-
 10 da de dicha atmósfera en un punto adyacente a dicho disposi
 tivo de detección, caracterizado porque dicha sustancia
 radioactivamente marcada es capaz de liberar tritio cuando
 está en contacto con dicho vapor de sodio e incluye por lo
 menos un compuesto químico que tiene la forma elegida en el
 15 grupo que consiste en XT, en el cual T es tritio y se elige
 X en el grupo que consiste en -OH, -OT, RCOO-, y RO-, y mez
 clas de estos, siendo $R-C_nH_{2n+1}$, variando n entre 1 y 20.

Como se ha dicho brevemente más arriba, el invento
 proporciona un método extremadamente sensible para la detec
 20 ción de diminutas cantidades de fluido metálico en una at-
 mósfera gaseosa, particularmente aplicable a la detección de
 sodio, potasio o "NAK" que se escapan de un reactor nuclear
 enfriado por un metal líquido. En el modo de realización prin
 cipal, el método consiste en hacer pasar una corriente de
 25 aire de muestra a través de una columna de intercambio en la
 cual el metal líquido reacciona con un compuesto marcado con
 tritio (T). El compuesto tiene una fórmula elegida en el gru
 po XT, en el cual X es -OH, -OT, RCOO-, y RO-, y siendo R
 $-C_nH_{2n+1}$, pudiendo n variar entre 1 y 20.

30 Otros radicales orgánicos adecuados, representados



generalmente por R pueden tambien ser empleados. Estos com
puestos reaccionan todos con un metal líquido tal como el
sodio, para liberar tritio. Despues de filtrar o limpiar
la corriente para eliminar los demás materiales, el aire re
5 sultante que contiene tritio se analiza por medio de una
cámara de ionización y otros aparatos de detección nuclear
para detectar la presencia del tritio. La detección del tri
tio indica la presencia de un metal líquido en la muestra.
El aparato utilizado para llevar a la práctica el método
10 de detección puede ser muy compacto y proporcionar una sen
sibilidad extremadamente elevada del orden de 8×10^{-16} gra
mos de sodio por centímetro cúbico de muestra de aire.

Si la humedad de la atmósfera del recinto ha trans
formado el sodio metálico o el potasio metálico en NaOH o
15 KOH, se utiliza adecuadamente en la columna $C_n H_{2n+1} COOT$
siendo n igual o superior a 6 e inferior a 20. Tambien pue
den utilizarse ácidos orgánicos similares con elevado punto
de ebullición. Se formará HTO y se extraerá bajo la forma
de vapor calentando la columna. La HTO (agua tritiada) se
20 transforma a continuación en HT haciéndola pasar a través
de un metal calentado tal como el magnesio. Se detecta HT
de la manera descrita más arriba.

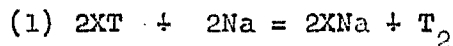
El funcionamiento y las ventajas del invento podrán
verse claramente leyendo la siguiente descripción de un modo
25 de realización del mismo conjuntamente con la figura 1 que
la acompaña, la cual representa un diagrama en bloques simpli
ficado del aparato principal empleado para llevar a la prác
tica el invento.

El invento proporciona un método para la detección
30 extremadamente sensible de un vapor de metal líquido. Está



destinado principalmente a ser empleado en una estructura de contención de un reactor nuclear que utiliza un refrigerante metálico líquido tal como sodio, potasio o combinación de estos dos metales ("NAK"). Las fugas procedentes del sistema primario de dicho reactor se emiten bajo la forma de un vapor tal como un vapor de sodio metálico en razón de la elevada temperatura de funcionamiento del reactor. El principio básico del método de detección del invento consiste en hacer que el vapor de sodio reaccione químicamente con un líquido o una sustancia sólida marcada radioactivamente, de modo que se libere un producto gaseoso radioactivo. El gas radioactivo resultante se hace pasar a continuación a través de un contador nuclear tal como una cámara de ionización, donde se mide la radioactividad. La radioactividad da una indicación proporcional de la cantidad de sodio contenida en el vapor original. Debido a la sensibilidad extremadamente elevada que puede obtenerse en las mediciones de radioactividad, el vapor metálico puede ser detectado en cantidades muy pequeñas. En el modo de realización preferido, la sustancia de marcación es el tritio, isótopo de nitrógeno con una masa de tres y que contiene dos neutrones y un protón en su núcleo. El tritio emite radiaciones beta y tiene una media vida de aproximadamente 12,5 años. El tritio se sitúa en un compuesto químico tal como agua tritiada, ácidos orgánicos de elevado punto de ebullición, y alcoholes, que liberan el tritio cuando reaccionan con el vapor de sodio de la manera que se indicará más adelante.

De manera general esta reacción es la siguiente:



En la cual T = tritio



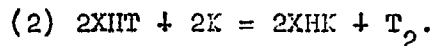
X = radical químico tal como
-OH, -OT RCOO-, y RO-

y

R = $-C_n H_{2n+1}$, variando n entre 1 y 20.

5 Aunque los compuestos que tienen un valor de n superior a 20 permiten obtener las reacciones deseadas, estos compuestos son más difíciles de formular y por tanto son menos convenientes.

10 Esta reacción puede describirse también bajo la siguiente forma:



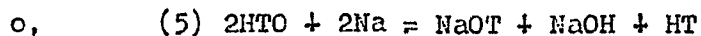
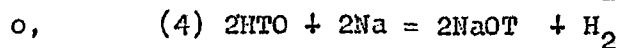
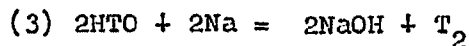
En la cual T y X se definen como más arriba con referencia a la ecuación (1).

15 Otros radicales orgánicos adecuados, que se representan generalmente por R, pueden también ser empleados. Estos radicales incluyen ácidos alifáticos o alcoholes, o ácidos o alcoholes aromáticos, o combinaciones de estos, como lo saben los peritos en la materia.

20 Las ecuaciones particulares que se dan a continuación son bien conocidas por los peritos en la materia y constituyen unos ejemplos de las clases de compuestos que pueden ser empleados en el invento.

EJEMPLO 1

25 En este ejemplo, X representa el radical hidróxido, -OH, y la ecuación (1) pasa a ser:



30 Ya que tritio e hidrógeno son intercambiables en las reacciones químicas, en término medio se produce un

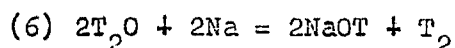


átomo de tritio por cada átomo de sodio. El conjunto químico designado por $2HTO$ es agua tritiada, que contiene un átomo de tritio por molécula. El sodio y el potasio son intercambiables, como en todos los ejemplos.

5

EJEMPLO 2

En este ejemplo, X representa un radical activo de tritio y oxígeno, $(OT)-$ y la ecuación (1) pasa a ser la siguiente:

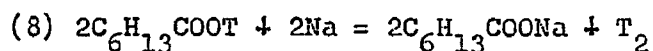


o, de la misma manera, $(7) \quad 2T_2O + 2K = 2KOT + T_2$.

10 T_2O es agua tritiada. Un átomo de tritio es liberado por cada átomo de sodio de potasio.

EJEMPLO 3

En este ejemplo, X representa $(RCOO)-$, siendo R y n como se han definido más arriba, y en este ejemplo, $n = 6$, y por tanto la ecuación (1) pasa a ser la siguiente:



$C_6H_{13}COOT$ es ácido caprónico tritiado, y

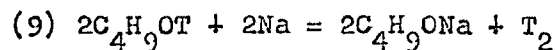
$C_6H_{13}COONa$ es caproicato de sodio.

20 La intercambiabilidad de los varios elementos de estas reacciones, como se indica en los ejemplos anteriores, es igualmente aplicable. También se observará que R puede estar constituido por otros radicales orgánicos adecuados que no están incluidos en la clase de C_nH_{2n+1} . El ingrediente activo principal es el radical ácido $(COOT)-$.

25

EJEMPLO 4

En este ejemplo, en el cual X representa $(RO)-$ y $n = 4$, la ecuación (1) pasa a ser la siguiente:



C_4H_9OT es alcohol butilo tritiado, y

30

C_4H_9ONa es butilato de sodio



Los compuestos iniciales que se representan más particularmente en los ejemplos que anteceden, así como otros compuestos de estos grupos, pueden situarse todos en forma líquida o sólida a la temperatura ambiente en el interior del recinto, es decir a una temperatura incluida entre 21,1°C y 43°C (70°F y 110°F). Por consiguiente, es relativamente sencillo incorporar los compuestos en una columna a través de la cual se hace pasar la corriente atmosférica. Es preciso solamente que la columna esté constituida por un recipiente herméticamente cerrado para contener el líquido a través del cual se hace pasar la corriente de muestra gaseosa, o por un recipiente del compuesto sólido, contra la superficie del cual se hace pasar la corriente de la muestra gaseosa. Algunos materiales de relleno, tales como anillos de relleno de cerámica o fibras de vidrio, pueden incorporarse en la columna para aumentar las superficies reactivas.

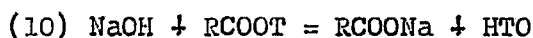
Después de hacer pasar la corriente de muestra a través de la columna, esta se filtra y se limpia adecuadamente para evitar cualquier lectura equivocada. En los casos en los cuales XT es un ácido orgánico de peso molecular elevado o un alcohol, esta filtración puede hacerse mecánicamente, utilizando por ejemplo un filtro que contiene lana de vidrio o una serie de finas mallas metálicas para retener las partículas indeseables contenidas en el líquido.

EJEMPLO 5

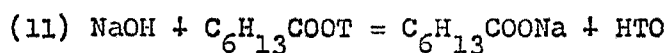
Cuando la atmósfera del recinto es húmeda, el vapor de sodio o de potasio reacciona rápidamente con la humedad para formar NaOH o KOH, formando unas finas partículas en suspensión en la atmósfera. El ácido orgánico, RCOOH,



contenido en la columna de extracción, reaccionará con el NaOH o con el KOH de la siguiente manera:



En un ejemplo particular $n = 6$ y la reacción es la siguiente:



El agua tritiada (HTO) que se forma puede ser extraída calentando la columna hasta una temperatura ligeramente superior a los 100°C . El vapor de HTO liberado puede hacerse pasar sobre una esponja de magnesio o sobre otras esponjas metálicas calentadas, que están dotadas de una amplia superficie, donde se transforma en gas HT.

La fase final del invento consiste en detectar el tritio resultando del paso de la corriente de muestra a través de los procesos descritos más arriba. El estado actual de la técnica de las cámaras de ionización y de los dispositivos de detección la sensibilidad de detección es aproximadamente de 10^{-6} Ci (cc) de aire. Un μCi de tritio es equivalente a 10^{-10} gramos de tritio y 10^{-6} μCi es equivalente aproximadamente a 8×10^{-16} gramos de sodio por cada centímetro cúbico de aire. Suponiendo que el volumen libre del recinto es aproximadamente de 84.950 m^3 (3.000.000 pies cúbicos) y suponiendo una distribución uniforme del vapor de sodio que se escapa a través de este volumen libre, esto corresponde a:

$$\frac{8 \times 10^{-16} \text{ g Na} \times 3 \times 10^6 \text{ ft}^3}{1 \text{ cc air}} \times \frac{2,83 \times 10^4 \text{ cc}}{1 \text{ ft}^3}$$

$$= 68 \mu\text{g Na.}$$

Por tanto, un escape de solamente $68 \mu\text{g}$ de sodio a través de todo el recinto podrá ser detectado gracias al mé



todo del invento en cuestión de segundos.

La figura 1 representa un diagrama en bloques simplificado del aparato utilizado conjuntamente con el invento. En 10 se representa un elemento soplador 10, en 12 una columna intercambiadora, en 14 un filtro, en 16 un detector de cámara de ionización y en 18 unos conductos unidos al aparato. El soplador necesita solamente tener un pequeño caudal incluido entre aproximadamente 28 y 56 litros/minuto (1 y 2 pies cúbicos por minuto). Puede simplemente ser un pequeño ventilador, una bomba de aspiración, o una simple bomba de chorro con la capacidad necesaria. La columna de intercambio térmico 12 contendrá uno o varios de los compuestos o de las mezclas iniciales definidas más arriba. No se necesita ningún control de temperatura de la columna 12 ya que esta funciona en la gama de temperatura del ambiente controlado del recipiente de un reactor nuclear, es decir entre 21,1°C y 43°C (70 y 110°F). Sin embargo, para asegurar la detección cuando el sodio que se escapa reacciona con la humedad de la atmósfera del recinto, como se ha indicado más arriba, la columna 12 debe mantenerse a una temperatura ligeramente superior a los 100°C para que el agua tritiada sea liberada en forma de vapor. El filtro 14 es convenientemente un filtro mecánico tal como una fina malla de alambre o lana de vidrio para separar todas las partículas arrastradas a partir de la columna 12. Como se ha mencionado conjuntamente con la ecuación (11), el filtro 14 puede ser también una esponja de magnesio calentada que transforma el agua en HT gaseoso. Los detectores de cámara de ionización 16 y otros aparatos de detección nuclear son bien conocidos como medio para detectar diminutas cantidades de radioacti-



vidad, y pueden adquirirse en el comercio con una elevada sensibilidad. Aparatos de modelo 955B o FHT 112B disponibles en los laboratorios Johnston, Inc. de Cockeysville, Maryland pueden ser utilizados.

5 Además de la alta sensibilidad, una ventaja particular que es facilitada por el invento consiste en que el aparato utilizado para llevar a la práctica el método del invento puede recibir una forma compacta y puede ser portátil. La columna 12 y el filtro 14 pueden tener cada uno las di-
10 mensiones externas de un cilindro de altura no superior a 30 cm (1 pie) y de algunos centímetros de diámetro. Aunque la atmósfera del recipiente circule constantemente a través de las unidades de refrigeración y de los sistemas de filtración del recinto, el pequeño ventilador local 10 que ha-
15 ce pasar la corriente de muestra dentro y a través del aparato es fácilmente transportable. El ventilador local 10 puede ser calculado de modo que tenga dimensiones tales que deje pasar un mínimo de 28 litros por minuto (1 pie cúbico por minuto) a través del sistema de detección. Con este caudal, el tiempo de respuesta es de unos pocos segundos. Esta
20 combinación de ventilador, columna y filtro según el invento que se llama a veces "cabezal de detección" puede hacerse en conjunto suficientemente pequeño para estar contenido en un recinto de aproximadamente 280 litros (10 pies cúbicos).
25 Por tanto, es posible situar un cabezal de detección casi en cualquier punto del recinto y es posible conectarlo a una cámara de ionización. También puede utilizarse una multiplici-
30 dad de cabezales de detección conectándolos con una sola cámara de ionización. La alimentación desde los cabezales de detección hasta una cámara de ionización común puede hacer-



se en serie, o en paralelo, según la constante de tiempo del sistema de detección y de los procedimientos de funcionamiento particulares de la instalación en funcionamiento. Si se utiliza una cámara de ionización común conjuntamente con varios cabezales de detección, puede conectarse una bomba de aspiración de aire central río abajo respecto a la cámara de ionización, eliminando así la necesidad de utilizar un ventilador individual en cada emplazamiento del cabezal de detección.

Por consiguiente puede verse que la utilización del método según el invento permite obtener un dispositivo rápido muy sensible y muy compacto para detectar la fuga del refrigerante metálico líquido de un reactor nuclear. El método descrito utiliza el tritio como marcador radioactivo preferido aunque se entiende que pueden también emplearse otros elementos o compuestos radioactivos tales como el clatrato de cripton. Además, el método puede aplicarse a otros sistemas nucleares y no nucleares cuando se necesita detectar diminutas cantidades de metales líquidos tales como sodio y potasio.

En resumen, la presente patente de invención que se solicita deberá recaer en las siguientes:

REIVINDICACIONES

1. Método y su correspondiente aparato para detectar la presencia de un vapor metálico en una atmósfera confinada mediante la utilización de una sustancia radioactivamente marcada, incluyendo dicho vapor metálico un metal elegido en el grupo que consiste en sodio, potasio y mezclas de estos metales, incluyendo dicho método las operaciones que consisten en hacer pasar una corriente de dicha atmósfera a través



de una columna de intercambio que contiene dicha sustancia radioactivamente marcada, hacer pasar dicha corriente a través de una cámara de ionización para la detección de la radioactividad con el objeto de obtener una indicación de la presencia de dicho vapor metálico, caracterizado el método porque dicha sustancia radioactivamente marcada es capaz de liberar tritio cuando está en contacto con dicho vapor metálico e incluye por lo menos un compuesto químico elegido en el grupo que consiste en XT, en el cual T es tritio y X se elige en el grupo consistiendo en -OH, OT, RCOO-, y RO- y mezclas de estas sustancias, siendo R $-C_nH_{2n+1}$ y variando n desde 1 aproximadamente hasta 20.

2. Método según la reivindicación 1, caracterizado porque incluye la operación que consiste en hacer pasar dicha corriente a través de un dispositivo de filtración y limpieza después de su paso a través de dicha columna y antes de su paso a través de dicha cámara de ionización.

3. Método según la reivindicación 2, caracterizado porque dicho dispositivo de filtración incluye por lo menos un filtro mecánico y una esponja metálica calentada.

4. Método según la reivindicación 1, caracterizado porque R. incluye por lo menos un ácido alifático, un alcohol alifático, un ácido aromático y un alcohol aromático y combinaciones de estos.

5. Aparato para llevar a cabo el método de las reivindicaciones 1-4, incluyendo dicho aparato una columna de intercambio conteniendo dicha sustancia radioactivamente marcada; un dispositivo para conducir una parte de dicha atmósfera a través de dicha columna de intercambio; un dispositivo de detección de radioactividad para facilitar una indica-



ción de la presencia de dicho vapor metálico; y un dispositivo para hacer pasar la porción conducida de dicha atmósfera cerca de dicho dispositivo de detección, caracteriz. , porque dicha sustancia radioactivamente marcada es capaz de liberar tritio cuando está en contacto con dicho vapor de sodio e incluye por lo menos un compuesto químico que tiene una fórmula elegida entre el grupo que consiste en XT, en la cual T es tritio y X se elige en el grupo que consiste en -OH, -OT, RCOO-, y RO-, así como mezclas de estos, siendo R -C_nH_{2n+1} y variando n de 1 a 20 aproximadamente.

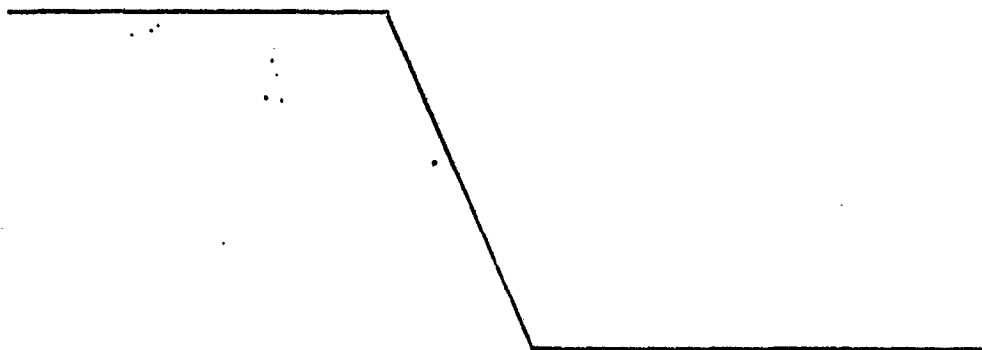
6. Aparato según la reivindicación 5, caracterizado porque se han previsto unos medios para filtrar dicha parte conducida de dicha atmósfera después de su paso a través de dicha columna.

7. Aparato según la reivindicación 5, caracterizado porque R incluye por lo menos un ácido alifático, un alcohol alifático, un ácido aromático, un alcohol aromático y combinaciones de estos.

8. Se reivindica por último como objeto sobre el que ha de recaer la Patente de Invención que se solicita: METODO Y SU CORRESPONDIENTE APARATO PARA DETECTAR LA PRESENCIA DE UN VAPOR METALICO EN UNA ATMOSFERA CONFINADA MEDIANTE LA UTILIZACION DE UNA SUSTANCIA RADIOACTIVAMENTE MARCADA.

25

30





Todo ello queda descrito y reivindicado en la presente memoria descriptiva que consta de dieciseis páginas mecanografiadas y dibujos adjuntos.

5

Madrid, 2 de Julio de 1.976

BERNARDO UNGRIA

P.P.

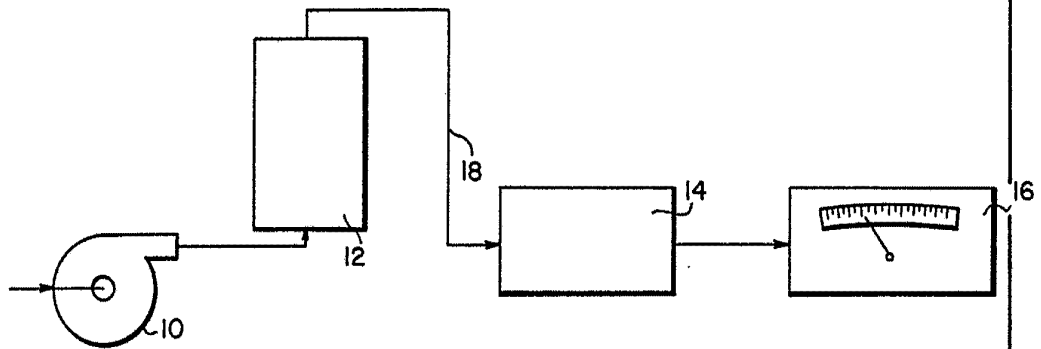
10

15

20

25

30



ESCALA VARIABLE
Madrid, 2 de Julio de 1.976
BERNARDO UNGRIA
P.P.