

19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 773 503**

51 Int. Cl.:

G21F 9/02 (2006.01)
B01J 20/18 (2006.01)
C01B 39/22 (2006.01)
G21C 9/00 (2006.01)
G21D 3/06 (2006.01)
B01J 20/28 (2006.01)
B01D 53/68 (2006.01)
B01D 53/82 (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

- 86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **22.08.2014 PCT/JP2014/072011**
- 87 Fecha y número de publicación internacional: **30.04.2015 WO15059994**
- 96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **22.08.2014 E 14855190 (6)**
- 97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **22.01.2020 EP 3062314**

54 Título: **Método de eliminación de yodo radiactivo**

30 Prioridad:

23.10.2013 JP 2013219867

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:

13.07.2020

73 Titular/es:

**RASA INDUSTRIES, LTD. (100.0%)
1-1 Kyobashi 1-chome, Chuo-ku
Tokyo 104-0031, JP**

72 Inventor/es:

**KOBAYASHI, TOSHIKI y
ENDO, KOJI**

74 Agente/Representante:

UNGRÍA LÓPEZ, Javier

ES 2 773 503 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

Método de eliminación de yodo radiactivo

5 Campo técnico

La presente invención se refiere a un método para el tratamiento de yodo radiactivo contenido en vapor descargado desde una instalación de energía nuclear

10 Técnica antecedente

Las instalaciones de energía nuclear, como puedan ser las centrales nucleares y similares, están equipadas convencionalmente con un filtro para eliminar el yodo radiactivo. Se pasa un flujo de vapor que contiene yodo radiactivo generado en una instalación de energía nuclear a través del filtro para que se adsorba el yodo radiactivo y se elimine antes de ser descargado desde la instalación de energía nuclear. Este proceso es muy importante y, por tanto, se ha dedicado y se sigue dedicando un gran esfuerzo de investigación y desarrollo para conseguir mejoras en el efecto de adsorción de yodo radiactivo del filtro. Entre estas mejoras se incluye un adsorbente que tiene una alta eficiencia de eliminación de yodo radiactivo incluso a alta humedad (véase por ejemplo el Documento de patente 1). El documento de patente 1 indica que la eficiencia de eliminación de yoduro de metileno, que es un compuesto de yodo radiactivo, se mejora mediante un adsorbente que incluye alúmina que tiene un gran número de poros que tienen un diámetro de poro promedio de 200-2000 Å, en el que está soportado un metal o un compuesto que contiene metal.

Se puede utilizar zeolita como soporte en un adsorbente de yodo radiactivo (véase, por ejemplo el Documento de patente 2). El documento de patente 2 describe un adsorbente de yodo radiactivo en el que está soportada plata sobre zeolita que tiene una relación molar de sílice-a-alúmina de 15 o más. El documento 2 indica que, en este adsorbente de yodo radiactivo, únicamente se requiere una pequeña cantidad de plata soportada para conseguir una eliminación de yodo radiactivo altamente eficiente.

30 Lista de citas**Literatura de patentes**

Documento de patente 1: Publicación de solicitud de patente sin examinar japonesa No. S54-4890
Documento de patente 2: EP 0 175 435 A1

El yodo y los compuestos de yodo orgánico que pueden ser radiactivos y que pueden encontrarse en los gases o vapores residuales de los reactores nucleares se pueden eliminar desde dichos gases o vapores haciendo pasar los gases o vapores que contienen yodo o compuestos de yodo orgánico a través de una capa de granulados de tamiz molecular intercambiados con plata sin aglutinante de tipo faujasita, de acuerdo con la patente estadounidense 4.913.850.

En la patente estadounidense 3.658.467 se muestra un método de absorción y retención de especies de yodo inorgánico y yodo orgánico transportadas por el aire haciendo pasar una corriente gaseosa que contiene dichos yodos a través de un lecho de filtro de zeolita sintética en una forma intercambiada con iones metálicos, siendo dicho metal reactivo con yodo.

De acuerdo con la patente estadounidense 4.088.737, se elimina el yodo del producto de fisión de la corriente de gas residual y se almacena haciendo pasar la corriente gaseosa a través de un lecho de zeolita intercambiada con plata hasta que se carga la zeolita con yodo, haciendo pasar gas hidrógeno seco a través del lecho para eliminar el yodo y regenerar el lecho y haciendo pasar la corriente de hidrógeno que contiene el yoduro de hidrógeno así formado a través de una zeolita intercambiada con plomo que adsorbe el yodo radiactivo de la corriente de gas, y almacenando permanentemente la zeolita intercambiada con plomo cargada con yodo radiactivo.

55 Sumario de la invención**Problema técnico**

En ambos adsorbentes descritos en los Documentos de patente 1 y 2, se utiliza la estructura cristalina de zeolita, que tiene un tamaño de poro tal como para proporcionar un efecto de tamiz molecular para adsorber selectivamente yodo radiactivo. Se considera que los adsorbentes descritos en ambos documentos tienen un éxito moderado para adsorber yodo radiactivo. Sin embargo, sigue existiendo la demanda de adsorbentes de yodo radiactivo de rendimiento superior para evitar de forma fiable las filtraciones de yodo radioactivo al exterior.

En una situación extraordinaria, como pueda ser que tenga lugar un accidente con el reactor nuclear o similar en una instalación de energía nuclear, se libera una gran cantidad de materiales radiactivos, incluyendo yodo radiactivo, en

una extensa área. Por lo tanto, debe evitarse los accidentes de reactores nucleares. Para este fin, está en vías de desarrollo un plan para proporcionar a un edificio de reactor nuclear una ventilación de filtro para reducir la presión en un reactor nuclear cuando se produce una situación extraordinaria en el reactor nuclear. Sin embargo, los adsorbentes de yodo radiactivo descritos en los Documentos 1 y 2 no tienen por objeto abordar situaciones extraordinarias donde se requiere una ventilación de filtro o similar. Por lo tanto, es necesario seguir dedicando esfuerzos de investigación y desarrollo para proporcionar un adsorbente de yodo radiactivo que se pueda utilizar cuando tiene lugar una situación extraordinaria, o un proceso en el que se utilice dicho adsorbente de yodo radiactivo. Se considera que el hidrógeno generado en un reactor nuclear es un factor de los accidentes del reactor nuclear. La reducción de dicho hidrógeno no se describe en absoluto en los Documentos de patente 1 o 2.

Teniendo en cuenta los problemas mencionados, se ha realizado la presente invención. Es un objeto de la presente invención eliminar, a través de un adsorbente de yodo radiactivo que puede adsorber yodo radiactivo eficazmente, hidrógeno, que es un factor en los accidentes de reactor nuclear, proporcionándose por tanto un método para tratar yodo radiactivo que se puede utilizar para abordar situaciones extraordinarias donde se requiere ventilación de filtro o similares.

Solución del problema

La invención se define en las reivindicaciones. Un yodo radiactivo es un adsorbente de yodo radiactivo granulado de zeolita X. Existen diversas zeolitas que tienen diferentes estructuras de cristal. Las zeolitas tienen el rasgo característico de que cada estructura cristalina tiene diámetros de poro considerablemente uniformes. Dicho diámetro de poro característico permite que se pueda utilizar zeolita para un tamiz molecular, adsorción selectiva de moléculas y similares.

En el adsorbente de yodo radiactivo granulado, se utiliza zeolita X, que es una zeolita que tiene un diámetro de poro relativamente grande, específicamente zeolita 13X. El sodio en los sitios de intercambio iónico de zeolita X se sustituye por plata. Como resultado, se puede adsorber el yodo radiactivo en forma de yoduro de plata. Por lo tanto, incluso si se produce una situación extraordinaria, como pueda ser que se produzca un accidente del reactor nuclear, se puede impedir que el yodo radiactivo se libere al exterior de un reactor nuclear.

Cuando se sustituye sodio de zeolita X por plata, de tal modo que el tamaño de los poros diminutos de la zeolita X se adapta al tamaño de una molécula de hidrógeno y el contenido en plata cuando se seca es 36 % en peso o más, el tamaño de partícula es malla 10 x 20, la dureza es 94 % o más, tal como se mide de acuerdo con JIS K 1474-4-7, y el contenido en agua cuando se seca a 150 °C durante 3 h y, por lo tanto se reduce en peso, es 12 % en peso o menos, y por lo tanto, la zeolita X tras la sustitución puede recoger eficientemente las moléculas de hidrógeno, incluso en una situación donde se genera hidrógeno debido a un accidente del reactor nuclear o similar, se puede utilizar el adsorbente de yodo radiactivo utilizado en la presente invención para eliminar hidrógeno de manera que se puede evitar accidentes del reactor nuclear.

En la presente invención, el 97 % o más de los sitios de intercambio iónico de la zeolita X están sustituidos por plata.

En el adsorbente de yodo radiactivo que tiene esta característica, el 97 % o más de los sitios de intercambio iónico, es decir, sodio de la zeolita X están sustituidos por plata y, por tanto, la zeolita X puede adsorber eficazmente el yodo radiactivo con una alta eficiencia. Además, se mejora la eficiencia de la eliminación de hidrógeno. Por lo tanto, es posible evitar una situación extraordinaria en un reactor nuclear.

En la presente invención, los sitios de intercambio iónico de la zeolita X no están sustituidos por ningún otro material que plata.

En el adsorbente de yodo radiactivo que tiene esta característica, los sitios de intercambio iónico, es decir, sodio de la zeolita, no están sustituidos por ningún otro material más que plata. Por lo tanto, la capacidad de adsorción de yodo radiactivo se sostiene a lo largo de un largo período de tiempo.

La presente invención definida en las reivindicaciones incluye: una etapa de llenado de un contenedor permeable al aire con el adsorbente de yodo radiactivo granulado mencionado, seguido de una etapa de paso de flujo de pasar un flujo del vapor descargado desde una instalación de energía nuclear a través del contenedor llenado con el adsorbente de yodo radiactivo granulado, de manera que pueden conseguirse la adsorción de yodo radiactivo eficaz y la eliminación de hidrógeno con una alta eficiencia llevando a cabo las dos etapas mencionadas.

El método de tratamiento de yodo radiactivo puede realizarse por ejemplo tras un tratamiento por ventilación de filtro. Ventilación de filtro se refiere a una operación de descarga de vapor a alta presión en un reactor nuclear desde un edificio de reactor nuclear para controlar o evitar accidentes de reactor nuclear o la filtración o liberación de yodo radiactivo que acompaña a dichos accidentes cuando tiene lugar una situación extraordinaria en el reactor nuclear. Al llevar a cabo el método de tratamiento de yodo radiactivo de acuerdo con la presente invención tras la ventilación de filtro, se puede adsorber el yodo radiactivo y el hidrógeno contenido en el vapor a alta presión descargado por ventilación de filtro y eliminarse de forma fiable. Como resultado, se puede evitar o controlar el riesgo de que se

libere yodo radiactivo o un accidente de reactor nuclear.

En el método para el tratamiento de yodo radiactivo de acuerdo con la presente invención, el vapor descargado desde la instalación de energía nuclear es preferentemente vapor supercalentado que tiene una temperatura de 100 °C o más.

Con esta característica, incluso si el vapor está a una temperatura considerablemente alta, tal como se ha descrito, entonces, cuando se utiliza el adsorbente de yodo radiactivo en la etapa de paso de flujo, se puede adsorber eficientemente el hidrógeno contenido en el vapor.

En el método para el tratamiento de yodo radiactivo de acuerdo con la presente invención, en la etapa de llenado, la densidad de llenado del adsorbente de yodo radiactivo se ajusta preferentemente a 1,0 g/ml o más.

Con esta característica, la densidad de llenado del adsorbente de yodo radiactivo se ajusta en 1,0 g/ml o más, lo cual permite una adsorción eficaz y eliminación de yodo radiactivo e hidrógeno con alta eficiencia.

En el método para el tratamiento de yodo radiactivo de acuerdo con la presente invención, en la etapa de paso de flujo, el período de tiempo durante el cual se retiene el vapor en el contenedor llenado con el adsorbente de yodo radiactivo se establece preferentemente en 0,06 s o más.

Con esta característica, incluso cuando el tiempo de retención es de tan solo 0,06 s o más, el adsorbente de yodo radiactivo puede recoger y eliminar eficazmente el yodo radiactivo y el hidrógeno con una alta eficiencia.

En el método para el tratamiento de yodo radiactivo de acuerdo con la presente invención, en la etapa de paso del flujo, el vapor tiene preferentemente una presión de 399 kPa o más.

Con esta característica, incluso cuando la presión del vapor es de hasta 399 kPa o más, el adsorbente de yodo radiactivo puede adsorber y eliminar eficazmente el yodo radiactivo y el hidrógeno con alta eficiencia en la etapa de paso de flujo.

En la etapa de paso de flujo, el contenedor llenado con el adsorbente de yodo radiactivo tiene preferentemente una humedad de 95 % o más.

Breve descripción de los dibujos

[FIG. 1] FIG. 1 es un diagrama para describir la zeolita X utilizada como adsorbente de yodo radiactivo.

[FIG. 2] FIG. 2 es un diagrama esquemático de una configuración de equipo de reactor nuclear.

[FIG. 3] FIG. 3 es un diagrama esquemático de una configuración, donde se proporciona un adsorbente de yodo radiactivo de acuerdo con una primera realización en un reactor de agua en ebullición.

[FIG. 4] FIG. 4 es un diagrama esquemático de una configuración donde se proporciona un adsorbente de yodo radiactivo de acuerdo con una segunda realización en un reactor de agua en ebullición.

[FIG. 5] FIG. 5 es un diagrama esquemático de una configuración donde se proporciona un adsorbente de yodo radiactivo de acuerdo con una tercera realización en un reactor de agua en ebullición.

[FIG. 6] FIG. 6 es un diagrama esquemático de una configuración donde se proporciona un adsorbente de yodo radiactivo de acuerdo con una cuarta realización en un reactor de agua presurizada.

[FIG. 7] FIG. 7 un gráfico en el que se muestran los aumentos o cambios de temperatura de un adsorbente de yodo radiactivo.

Descripción de realizaciones

A continuación, se describirán realizaciones de un adsorbente de yodo radiactivo no de acuerdo con la presente invención y las realizaciones de un método para el tratamiento de yodo radiactivo de acuerdo con la presente invención haciendo referencia a las Figuras 1-7. Debe advertirse que la presente invención se define en las reivindicaciones.

<Adsorbente de yodo radiactivo>

En primer lugar, se describirá la zeolita X utilizada en un adsorbente de yodo radiactivo. La FIG. 1 es un diagrama para describir una zeolita incluida en el adsorbente de yodo radiactivo. La FIG. 1(a) es un diagrama esquemático de la estructura cristalina de zeolitas. La FIG. 1(b) es un diagrama para describir una reacción en la que se sustituyen los sitios de sodio de zeolita 13X por plata. La FIG. 1(c) es un diagrama para describir la reducción de un tamaño de diámetro de poro como resultado de la sustitución de sitios de sodio de zeolita 13X por plata.

Tal como se muestra en la FIG. 1(a), las zeolitas, que son un tipo de silicato, tienen $(\text{SiO}_4)_4^-$ y $(\text{AlO}_4)_5^-$ que tienen una estructura tetraédrica como unidades de repetición que están unidas tridimensionalmente entre sí para formar una estructura cristalina. Las unidades de repetición están unidas de maneras diferentes para formar diferentes

estructuras de cristal. Cada estructura de cristal formada tiene un diámetro de poro uniforme específico. Este diámetro de poro uniforme permite que las zeolitas tengan propiedades como tamiz molecular, adsorción y capacidad de intercambio iónico.

5 El adsorbente de yodo radiactivo utilizado en la presente invención incluye zeolita 13X, que es un tipo de zeolita X. A nivel industrial está muy extendido el uso de zeolita 13X. La composición de zeolita 13X es $\text{Na}_{86}[(\text{AlO}_2)_{86}(\text{SiO}_2)_{106}] \cdot 276\text{H}_2\text{O}$. Tal como se muestra en la FIG. 1(b), el adsorbente de yodo radiactivo se formula mediante sitios de sodio de intercambio iónico de zeolita 13X con plata (los sitios de sodio son sitios de intercambio iónico). La relación de intercambio iónico con plata en el adsorbente de yodo radiactivo es 97 % o más, preferentemente 98 % o más. Además, los sitios de intercambio iónico en zeolita X no se intercambian iónicamente con ningún otro material que no sea plata, en el adsorbente de yodo radiactivo, sustancialmente todos los sitios de sodio in zeolita 13X se intercambian iónicamente con plata. Esta relación de intercambio iónico tan alta permite que el adsorbente de yodo radiactivo tenga una capacidad de adsorción considerablemente más alta que la de los adsorbentes de yodo radiactivo convencionales.

15 Ciertamente, cuando los sitios de sodio en la zeolita 13X se intercambian iónicamente con plata, la zeolita 13X resultante tiene un tamaño de diámetro de poro más pequeño que el de la zeolita 13X original. La zeolita 13X que se adapta para tener un tamaño de diámetro de poro más pequeño es eficaz para adsorber hidrógeno y como adsorbente de yodo radiactivo. Específicamente, tal como se muestra en la FIG. 1(c), el diámetro de poro (aproximadamente 0,4 nm) de zeolita 13X que tiene sitios de sodio antes de intercambiarse iónicamente con plata es demasiado grande como para retener una molécula de hidrógeno (diámetro de molécula: aproximadamente 0,29 nm). Al mismo tiempo, los autores de la presente invención han observado que zeolita 13X, cuyos sitios de sodio han sido intercambiados iónicamente con plata, tiene un diámetro de poro óptimo (aproximadamente 0,29 nm) de tal modo que una molécula de hidrógeno encaja en el poro y como resultado la zeolita 13X que tiene plata obtenida por intercambio iónico puede adsorber con una alta eficiencia, no solo el yodo radiactivo, sino también moléculas de hidrógeno.

El adsorbente de yodo radiactivo se formula preferentemente de tal modo que, además de la característica de conseguirse la relación de intercambio iónico mencionada, la proporción del componente de plata (contenido en plata) en el adsorbente cuando se seca es 16 % en peso o más, el tamaño de partícula es de malla 10 x 20 (JIS K 1474-4-6), la dureza es 94 % o más (JIS K 1474-4-7) y el contenido en agua del adsorbente cuando se seca a 150 °C durante 3 h, reduciéndose así el peso, es 12 % en peso o menos. Tal como se utiliza en el presente documento, la expresión "malla 10 x 20" con respecto al tamaño de una partícula significa que la partícula puede pasar a través de un tamiz de malla 10, pero no a través de un tamiz de malla 20, es decir, que el tamaño de partícula es malla 10-20. Si se formula un adsorbente de yodo radiactivo para que tenga dichas propiedades, el adsorbente de yodo radiactivo puede presentar más eficazmente la alta capacidad de adsorción de molécula de hidrógeno. Los adsorbentes de yodo radiactivo están expuestos a entornos severos (alta temperatura, alta presión, alta humedad) y por lo tanto, es necesario que tengan cierta alta resistencia de partícula. Teniendo esto en cuenta, el adsorbente de yodo radiactivo utilizado en la presente invención se adapta para tener una pérdida por atrición de 3 % o menos (ASTM D-4058). Como resultado, incluso aunque se coloque el adsorbente de yodo radiactivo en condiciones severas como ventilación de filtro o similares, el adsorbente de yodo radiactivo puede mantener su forma de partícula y por lo tanto puede seguir presentando una alta capacidad de adsorción de molécula de hidrógeno.

45 <Método de tratamiento de yodo radiactivo >

Antes de describir un método para el tratamiento de yodo radiactivo utilizando el adsorbente de yodo radiactivo formulado tal como se ha descrito, se describirá una central nuclear típica haciendo referencia a la FIG. 2. La FIG. 2 es un diagrama esquemático de la configuración del equipo de reactor nuclear. La FIG. 2(a) es un diagrama esquemático de la configuración de un reactor de agua en ebullición (BWR) 100, la FIG. 2(b) es un diagrama esquemático de la configuración de un reactor de agua a presión (PWR) 200. En Japón, se utilizan dos tipos de reactores nucleares en las instalaciones de reactor nuclear, es decir, reactores de agua en ebullición (BWR) y reactores de agua a presión (PWR). El equipo de reactor nuclear incluye principalmente un edificio de reactor nuclear, un edificio de contención de reactor nuclear, un vaso de presión de reactor nuclear, una turbina y un generador. Tal como se muestra en la FIG. 2(a), el reactor de agua en ebullición 100 incluye un edificio de reactor nuclear 10, un edificio de contención de reactor nuclear 11, un vaso de presión de reactor nuclear 12, una turbina 13, y un generador 14. En el reactor de agua en ebullición 100, el agua está en ebullición en el vaso de presión de reactor nuclear 12, el vapor así producido es enviado a la turbina 13, tal como se indica con la flecha en línea continua que se muestra en la FIG. 2, y se hace recircular el agua del reactor nuclear tal como se indica con la flecha en línea discontinua. El vapor impulsa directamente la turbina 13 haciéndola girar, lo cual hace que el generador 14 produzca electricidad. Al mismo tiempo, tal como se muestra en la FIG. 2(b), en el reactor de agua a presión 200, un edificio de contención de reactor nuclear 20 incluye un vaso de presión de reactor nuclear 21, un presurizador 22, y un generador de vapor 23. El presurizador 22 se utiliza para controlar el agua en el edificio de contención de reactor nuclear 20 de manera que el agua se mantiene siempre a alta presión y se impide así que entre en ebullición incluso a alta temperatura. El generador de vapor 23 se utiliza para generar vapor (se indica mediante una flecha en línea continua en la FIG. 2(b)) desde el agua separada del agua que fluye dentro del reactor

nuclear (se indica con una flecha en línea discontinua en la FIG. 2(b)). Este vapor impulsa una turbina 24 para que gire, lo cual hace que un generador 25 produzca electricidad. En una primera realización a continuación, se describirá un método para tratar yodo radiactivo utilizando un adsorbente de yodo radiactivo en relación con el reactor de agua en ebullición de la FIG. 2(a).

5

[Primera Realización]

(Etapa de llenado)

10 La FIG. 3 es un diagrama esquemático de una configuración donde se proporciona una unidad de tratamiento de yodo radiactivo 1 que contiene un adsorbente de yodo radiactivo K de acuerdo con una primera realización en el reactor de agua en ebullición 100. En la primera realización, se describirá un método para tratar yodo radiactivo
 15 asumiendo que se produce una situación extraordinaria debido a un accidente o similar en un reactor nuclear. Se proporciona una ventilación de filtro 15 fuera del edificio de reactor nuclear 10 en caso de que se dañe el edificio de contención de reactor nuclear 11 debido a que tiene lugar un accidente en el reactor nuclear. La ventilación de filtro 15 es una pieza del equipo que se proporciona para que cuando, por ejemplo, se daña el edificio de contención de reactor nuclear 11 debido a un accidente, se envía vapor desde el edificio de contención de reactor nuclear 11 a la ventilación de filtro 15 a través de un tubo 16 tal como se indica mediante una flecha en línea continua en la FIG. 3 para reducir la presión externa y el ventilador de filtro 15 recoge yodo radiactivo en el vapor para reducir la cantidad
 20 de yodo radiactivo antes de descargar el vapor en el exterior del edificio de reactor nuclear 10. Tal como se muestra en la FIG. 3, la unidad de tratamiento de yodo radiactivo 1, que incluye un contenedor 2 para contener el adsorbente de yodo radiactivo K, está dispuesta y acoplada al ventilador de filtro 15. Tal como se describe más adelante, el contenedor 2 está formado preferentemente de un material resistente al calor y resistente a la corrosión, ya que el vapor que se hace pasar a través del edificio de contención de reactor nuclear 11 o el ventilador de filtro 15 fluye a través de él. Dicho material para el contenedor 2 es por ejemplo acero inoxidable y puede ser una aleación de aluminio o similar. El contenedor 2 debe tener permeabilidad al aire de modo que se permita que el vapor o el gas fluya a través del adsorbente de yodo radiactivo K. Para este fin, el contenedor 2 está provisto de una pluralidad de poros diminutos. Se llena el contenedor 2 con el adsorbente de yodo radiactivo K, donde la densidad de llenado se ajusta en 1,0 g/ml o más, preferentemente 1,2 g/ml o más (etapa de llenado). Dicha densidad de llenado permite que
 25 el adsorbente de yodo radiactivo K presente un efecto de adsorción óptimo. Es deseable que los operarios trabajen de la forma lo más cómoda y rápida posible en la instalación del reactor nuclear para prestar el máximo nivel de atención a la seguridad. A este respecto la unidad de tratamiento de yodo radiactivo 1 tiene una configuración sencilla, tal como se ha descrito anteriormente y, por tanto, cuando el efecto de adsorción del adsorbente de yodo radiactivo K se debilita, basta con extraer el adsorbente de yodo radiactivo K del contenedor 2 y reemplazarlo con otro nuevo adsorbente de yodo radiactivo K, es decir, es solo es necesaria una operación sencilla. Por lo tanto, es posible reducir la mano de obra, de manera que se puede asegurar la seguridad de los trabajadores.

(Etapa de paso de flujo)

40 Si bien, tal como se ha descrito, se puede utilizar el ventilador de filtro 15 para reducir la cantidad de yodo radiactivo, es necesario eliminar de forma sustancialmente completa el yodo radiactivo antes de descargar el vapor o gas del edificio de reactor nuclear 10 ya que el yodo radiactivo tiene unos graves efectos nocivos contra el cuerpo humano y el entorno. Por lo tanto, el adsorbente de yodo radiactivo K de la presente divulgación se utiliza para eliminar de forma sustancialmente completa el yodo radiactivo. Tal como se muestra en la FIG. 3, el vapor tratado mediante el
 45 ventilador de filtro 15 es enviado a la unidad de tratamiento de yodo radiactivo 1 a través del tubo 16 tal como se indica mediante la flecha en línea continua de la FIG. 3. A continuación, un flujo de vapor pasa a través del adsorbente de yodo radiactivo K con el cual se llena el contenedor 2 de la unidad de tratamiento de yodo radiactivo 1 (etapa de paso de flujo). Tal como se ha descrito, el adsorbente de yodo radiactivo K tiene un tamaño de poro adecuado para una molécula de hidrógeno y está contenido en el contenedor 2 que tiene permeabilidad al aire y por lo tanto, elimina eficazmente el hidrógeno contenido en el vapor que pasa a través de la unidad de tratamiento de yodo radiactivo 1. A continuación, se descarga el vapor tras la adsorción de yodo radiactivo y la eliminación de hidrógeno desde la instalación del reactor nuclear a través de un tubo de descarga. En este punto, el vapor que fluye a la unidad de tratamiento de yodo radiactivo 1 es vapor supercalentado que tiene una temperatura de 100 °C o más y una presión de 399 kPa o más. Además, la humedad en el contenedor 2 es 95 % o más. En tales condiciones
 50 severas, el adsorbente de yodo radiactivo K puede eliminar yodo radiactivo e hidrógeno. Además, en el método para tratar yodo radiactivo de acuerdo con la presente invención, el tiempo de retención durante el cual se retiene el vapor que fluye a la unidad de tratamiento de yodo radiactivo 1 en el contenedor se establece en 0,06 s o más. Si se daña el edificio de contención de reactor nuclear 11, es necesario tomar medidas contra ello lo más rápidamente posible para evitar o controlar las filtraciones o la liberación de yodo radiactivo o accidentes del reactor nuclear. Para este fin, es necesario completar el tratamiento mediante el ventilador de filtro 15 y el tratamiento de yodo radiactivo lo más rápidamente posible. En este punto, en la presente invención, tal como se ha descrito, el tiempo de retención de vapor en el contenedor 2 es considerablemente corto y, por tanto, en situaciones de emergencia, la absorción de yodo radiactivo y la eliminación de hidrógeno pueden completarse más rápidamente que cuando se utilizan los métodos de tratamiento de yodo radiactivo convencionales. Por tanto, la presente invención proporciona un método
 60 considerablemente eficaz para asegurar la seguridad.

65

[Segunda Realización]

En la primera realización, el reactor de agua en ebullición 100 está provisto de la unidad de tratamiento de yodo radiactivo 1 que no está dispuesta directamente adyacente al edificio de contención de reactor nuclear 11. Por el contrario, en la segunda realización, tal como se muestra en la FIG. 4, la unidad de tratamiento de yodo radiactivo 1 está dispuesta entre el ventilador de filtro 15 y el edificio de contención de reactor nuclear 11. En este caso, tal como se indica mediante una flecha en línea continua en la FIG. 4, el vapor descargado desde el edificio de contención de reactor nuclear es enviado a la unidad de tratamiento de yodo radiactivo 1 a través de tubo 16. Es decir, el yodo radiactivo y el hidrógeno son adsorbidos por la unidad de tratamiento de yodo radiactivo 1 antes de su tratamiento a través del ventilador de filtro 15. El adsorbente de yodo radiactivo K de la presente divulgación puede adsorber y eliminar eficazmente el yodo radiactivo y el hidrógeno incluso cuando un vapor grave fluye al contenedor 2, como pueda ser el vapor supercalentado que tiene una temperatura de 100 °C o más, o similar. Por lo tanto, el vapor descargado del edificio de contención de reactor nuclear 11 puede ser enviado directamente a la unidad de tratamiento de yodo radiactivo 1, que puede tratar eficazmente el vapor. De este modo, se adsorbe el yodo radiactivo y se elimina el hidrógeno mediante la unidad de tratamiento de yodo radiactivo 1 antes de que el vapor sea enviado al ventilador de filtro 15 y, por lo tanto, se puede reducir la carga en el siguiente ventilador de filtro 15 y el tratamiento puede llevarse a cabo suavemente mediante el ventilador de filtro 15. El coste de la construcción del ventilador de filtro 15 es alto y un fuerte uso del ventilador de filtro 15 puede acelerar su deterioro. Por lo tanto, si se lleva a cabo el método para el tratamiento de yodo radiactivo de acuerdo con la presente invención con antelación (corriente arriba) del ventilador de filtro 15, es posible extender la vida útil del ventilador de filtro 15 de modo que el ventilador de filtro 15 puede seguir trabajando durante un largo período de tiempo.

[Tercera realización]

En las realizaciones primera y segunda, se asume que se produce una situación de emergencia debida a un accidente o similar en la instalación del reactor nuclear (el reactor de agua en ebullición 100). El adsorbente de yodo radiactivo K y el método para tratar yodo radiactivo de acuerdo con la presente invención puede aplicarse no solamente en situaciones de emergencia, sino también en otras situaciones. En particular, en el reactor de agua en ebullición 100, se envía el vapor directamente desde el vaso de presión de reactor nuclear 12 a la turbina 13 tal como se ha descrito y, por tanto, es necesario gestionar estrictamente las cantidades de yodo radiactivo e hidrógeno para asegurar la seguridad. Para este fin, tal como se muestra en la FIG. 5, se puede proporcionar la unidad de tratamiento de yodo radiactivo 1 entre el vaso de presión de reactor nuclear 12 y la turbina 13 de modo que se pueda adsorber el yodo radiactivo y se pueda eliminar el hidrógeno mediante el adsorbente de yodo radiactivo K antes de que se envíe el vapor a la turbina 13. Con dicha disposición, se puede impulsar la turbina 13 para que gire utilizando vapor seguro y, por tanto, se pueden evitar los riesgos causados por el yodo radiactivo y el hidrógeno.

[Cuarta Realización]

Las realizaciones primera a tercera se refieren todas ellas a reactores de agua en ebullición. El adsorbente de yodo radiactivo K y el método para tratar yodo radiactivo de acuerdo con la presente invención también son aplicables a reactores de agua a presión (PWR). Tal como se muestra en la FIG. 2(b), en el reactor de agua a presión 200, el agua que contiene materiales radiactivos no se envía directamente a la turbina 24. Por tanto, los reactores de agua a presión son más seguros y fáciles de mantener que los reactores de agua en ebullición. Sin embargo, los reactores nucleares constituyen una pieza del equipo que gestiona el combustible nuclear, que es un material considerablemente peligroso y, por tanto, se requiere una gestión de riesgos estricta. Para este fin, en los reactores de agua a presión, se puede utilizar el adsorbente de yodo radiactivo K para abordar las situaciones de emergencia. Cuando se aplica el adsorbente de yodo radiactivo K al reactor de agua a presión 200, se puede proporcionar la unidad de tratamiento de yodo radiactivo 1 en algún punto en la ruta del vapor enviado desde el generador de vapor 23 a la turbina 24 tal como se muestra en la FIG. 6, por ejemplo. En cuanto a los reactores de agua en ebullición, para tomar medidas cuando se daña un reactor nuclear debido a un accidente o similar, se puede proporcionar la unidad de tratamiento de yodo radiactivo adyacente únicamente al ventilador de filtro, o entre el edificio de contención de reactor nuclear y el ventilador de filtro (no se muestra).

Ejemplos

[Ejemplo 1]

En el Ejemplo 1, se llevó a cabo una prueba de la adsorción de yodo radiactivo utilizando el método para tratar yodo radiactivo de acuerdo con la presente invención.

Inicialmente, se intercambiaron iónicamente con plata el 97 % de los sitios de sodio de zeolita 13X seguido de la granulación, de modo que el componente de plata fue 36 % en peso, el tamaño de partícula fue malla 10 x 20 (JIS K 1474-4-6) y el contenido de agua en seco a 150 °C durante 3 h fue 12 % en peso. Se llenó un contenedor permeable al agua con la zeolita 13X resultante, donde la densidad de llenado fue 1,0 g/ml. De este modo, se formuló un adsorbente de yodo radiactivo. El adsorbente de yodo radiactivo así formulado tenía una dureza de 94 % (JIS K 1474-4-7). A continuación, se midieron varios adsorbentes de yodo radiactivo que tenían diferentes espesores

por lo que respecta al tiempo de retención de vapor en el contenedor y el efecto de adsorción de yoduro de metilo, en relación con el vapor, donde el vapor tenía una humedad de 95 %, una temperatura de 130 °C y una presión de 399 kPa, y contenía 1,75 mg/m³ de yoduro de metilo (CH₃I¹³¹) y tenía una velocidad lineal de 20 cm/s y 41 cm/s. El resultado de la medición se muestra en la Tabla 1.

5

[Tabla 1]

20 cm/s			41 cm/s		
Espesor (cm)	Tiempo de retención (s)	Tasa de adsorción (%)	Espesor (cm)	Tiempo de retención (s)	Tasa de adsorción (%)
2,5	0,123	99,032	2,5	0,061	97,989
5,0	0,246	99,967	5,0	0,123	99,673
7,5	0,369	> 99,999	7,5	0,184	99,843
10,0	0,492	> 99,999	10,0	0,246	99,974

Tal como se puede observar de los resultados de la Tabla 1, incluso cuando se estableció la velocidad lineal en 41 cm/s, la tasa de adsorción de yoduro de metilo fue alta. En particular, incluso cuando el tiempo de retención fue tan corto como 0,061 s, la tasa de adsorción de yoduro de metilo fue 97,989 %, que es un buen resultado.

10

[Ejemplo 2]

En el Ejemplo 2, se midió el adsorbente de yodo radiactivo formulado en el Ejemplo 1, que tenía un espesor de 5,0 cm, por lo que respecta al efecto de adsorción de yoduro de metilo a varias temperaturas, en relación con el vapor, donde el vapor tenía una presión de 101 kPa y contenía 17 mg/m³ de yoduro de metilo (CH₃I) y tenía una velocidad lineal de 46 cm/s. Los resultados de la medición se muestran en la Tabla 2.

15

[Tabla 2]

Temperatura (°C)	110	125	150
Tasa de adsorción (%)	99,90	99,95	99,95

20

Tal como se puede observar de los resultados de la Tabla 2, incluso cuando el vapor tuvo una temperatura de hasta 100 °C o más, la tasa de adsorción del yoduro de metilo fue de hasta 99 % o más.

[Ejemplo 3]

En el Ejemplo 3, se midió un filtro (100 cm x 83 cm) formado del adsorbente de yodo radiactivo formulado en el Ejemplo 1, que tenía un espesor de adsorbente de yodo radiactivo de 26 mm y una masa de 26 kg, por lo que respecta al efecto de adsorción de yoduro de metilo a varias temperaturas, en relación con el vapor, donde el vapor tenía una presión de 101 kPa y contenía 0,608 mg/m³ de yoduro de metilo (CH₃I) y tenía una velocidad lineal de 20 cm/s. Los resultados de la medición se muestran en la Tabla 3.

25

30

[Tabla 3]

Temperatura (°C)	30	40	70	150
Tasa de adsorción (%)	99,77	99,85	99,91	99,98

En el Ejemplo 3, a diferencia de los Ejemplos 1 y 2, se midió el adsorbente de yodo radiactivo por lo que respecta a la tasa de adsorción, donde el adsorbente de yodo radiactivo tenía un tamaño y una masa similares a las del uso real. Tal como se puede observar de los resultados de la Tabla 3, en este caso, incluso cuando aumentó la temperatura del vapor hasta 150 °C, la tasa de adsorción del yoduro de metilo siguió siendo alta. Por lo tanto, se demostró que el adsorbente de yodo radiactivo de la presente divulgación tenía utilidad práctica.

35

[Ejemplo 4]

En el Ejemplo 4, se midió el adsorbente de yodo radiactivo formulado en el Ejemplo 1 por lo que respecta al efecto de adsorción de yoduro de metilo para varios espesores de adsorbente de yodo radiactivo, en relación con el vapor, donde el vapor tenía una presión de 103 kPa, una temperatura de 66°C y una velocidad lineal de 20,3 cm/s, y contenía 1,75 mg/m³ de yoduro de metilo (CH₃I¹³¹) y la humedad fue 70 %. Los resultados de la medición se muestran en la Tabla 4.

45

[Tabla 4]

Espesor (mm)	Tiempo de retención (s)	Tasa de adsorción (%)
50,8	0,250	> 99,999
76,2	0,375	> 99,999
101,6	0,500	> 99,999

50 [Ejemplo 5]

En el Ejemplo 5, se midió el adsorbente de yodo radiactivo formulado en el Ejemplo 1 por lo que respecta al efecto de adsorción de yoduro de metilo en relación con el espesor y temperatura del adsorbente de yodo radiactivo, en relación con el vapor, donde el vapor tenía una presión de 103 kPa y una velocidad lineal de 20,3 cm/s y contenía 1,75 mg/m³ de yoduro de metilo (CH₃ I¹³¹) y la humedad fue 95 %. Los resultados de la medición se muestran en la Tabla 5.

[Tabla 5]

Espesor (mm)	Tiempo de retención (s)	Tasa de adsorción (%)		
		30 °C	60 °C	90 °C
50,8	0,250	98,738	99,685	99,970
76,2	0,375	99,850	99,950	99,983
101,6	0,500	99,960	99,987	99,995

Tal como se puede observar de los resultados de la Tabla 4, cuando la humedad fue 70 %, la tasa de adsorción del yoduro de metilo fue de hasta 99,999 % o más en todos los casos. Mientras que, el resultado de la Tabla 5 muestra que incluso cuando la humedad fue de hasta 95 %, la tasa de adsorción del yoduro de metilo siguió siendo alta. Por lo tanto, queda demostrado que el adsorbente de yodo radiactivo de la presente divulgación tiene un alto efecto de adsorción incluso con alta humedad.

[Ejemplo 6]

En el Ejemplo 6, se midió el adsorbente de yodo radiactivo formulado en el Ejemplo 1 por lo que respecta al efecto de adsorción de yoduro de metilo a varias temperaturas en estado seco, en relación con el vapor, donde el vapor tenía una presión de 101 kPa y una velocidad lineal de 20 cm/s, el adsorbente de yodo radiactivo tenía un espesor de 5,0 cm, el tiempo de retención fue 0,25 s y el vapor contenía 1,75 mg/m³ de yoduro de metilo (CH₃ I¹³¹). Los resultados de la medición se muestran en la Tabla 6.

[Tabla 6]

Temperatura (°C)	30	80	150
Tasa de adsorción (%)	99,9	99,9	99,9

Tal como se puede observar de los resultados de la Tabla 6, incluso cuando la temperatura fue de hasta 150 °C, la tasa de adsorción del yoduro de metilo fue alta.

[Ejemplo 7]

En el Ejemplo 7, se midió el adsorbente de yodo radiactivo formulado en el Ejemplo 1 por lo que respecta al efecto de adsorción de yoduro de metilo a distintas condiciones de humedad a una temperatura de 80 °C, en relación con el vapor, donde el vapor tenía una presión de 101 kPa y una velocidad lineal de 20 cm/s, el adsorbente de yodo radiactivo tenía un espesor de 5,0 cm, el tiempo de retención fue 0,25 s y el vapor contenido 1,75 mg/m³ de yoduro de metilo (CH₃ I¹³¹). Los resultados de la medición se muestran en la Tabla 7.

[Tabla 7]

Humedad (%)	0	70	90
Tasa de adsorción (%)	99,9	99,9	99,9

Tal como se puede observar de los resultados de la Tabla 7, incluso cuando la humedad fue de hasta 90 % a una temperatura de 80 °C, la tasa de adsorción del yoduro de metilo fue alta.

[Ejemplo 8]

En el Ejemplo 8, se midió el adsorbente de yodo radiactivo formulado en el Ejemplo 1 por lo que respecta al efecto de adsorción de yoduro de metilo en relación con el espesor y la temperatura del adsorbente de yodo radiactivo en un estado seco a presión atmosférica, en relación con el vapor, donde tenía una presión de 104 kPa y una velocidad lineal de 20 cm/s y contenía 75 mg/m³ de yodo (I¹³¹). Los resultados de la medición se muestran en la Tabla 8.

[Tabla 8]

Espesor (cm)	Tiempo de retención (s)	Tasa de adsorción (%)
2,5	0,123	100
5,0	0,246	100
10,0	0,492	100

Tal como se puede observar de los resultados de la Tabla 8, la tasa de adsorción de yodo fue 100 % en estado seco

a presión atmosférica en todos los casos. Se demostró que el adsorbente de yodo radiactivo tuvo un rendimiento considerablemente alto.

[Ejemplo 9]

5 En el Ejemplo 9, se midió el adsorbente de yodo radiactivo formulado en el Ejemplo 1 por lo que respecta al efecto de adsorción de hidrógeno, donde el adsorbente de yodo radiactivo tenía un espesor de 5 cm. Los resultados de la medición se muestran en la Tabla 9.

10 [Tabla 9]

Caudal de aire humidificado (ml/min)	Caudal de hidrógeno (ml/min)	Tiempo de retención (s)	Contenido en hidrógeno antes del paso del flujo (%)	Temperatura (°C)	Aumento de temperatura (°C)	Contenido en hidrógeno tras el paso del flujo (%)
2200	45	2,62	2,0	54	-	1,2
				62	-	0,8
				79	-	0,5
2200	68	2,60	3,0	77	-	1,0
				117	2	< 0,5
				137	15	< 0,5
6600	205	0,87	3,0	75	1	> 1,5
				120	15	< 0,5
				136	17	< 0,5

15 Tal como se puede observar de los resultados de la Tabla 9, cuando la temperatura es de hasta 100 °C o más, el contenido en hidrógeno después de haber pasado el flujo de vapor a través del adsorbente de yodo radiactivo fue 0,5 % o menos, es decir, aproximadamente 83 % o más de hidrógeno no fue adsorbido. Se puede observar también que cuando la temperatura fue 137 °C o 136 °C, la temperatura aumentó en 15°C y 17°C, respectivamente. Incluso en este caso, el contenido en hidrógeno después de haber pasado el flujo de vapor a través del adsorbente de yodo radiactivo fue 0,5 % o menos. Esto demuestra que el adsorbente de yodo radiactivo de la presente invención es un adsorbente de alto rendimiento que puede adsorber hidrógeno de manera estable a alta temperatura.

20 [Ejemplo 10]

25 En el Ejemplo 10, se midió el adsorbente de yodo radiactivo formulado en el Ejemplo 1 por lo que respecta a un aumento de la temperatura, en el relación con el vapor que tenía un contenido en hidrógeno de 3 %, donde el flujo del vapor se pasó a través del adsorbente de yodo radiactivo que tenía una temperatura de 136 °C y el contenido en hidrógeno después de haber pasado el flujo de vapor a través del adsorbente de yodo radiactivo fue 0,5 % o menos. El resultado de la medición se indica mediante el gráfico que se muestra en la FIG. 7.

30 Tal como se puede observar del gráfico de la FIG. 7, la temperatura del adsorbente de yodo radiactivo no aumentó significativamente y el adsorbente de yodo radiactivo adsorbió hidrógeno de manera estable.

35 Los resultados de los Ejemplos 1-8 demuestran que el adsorbente de yodo radiactivo utilizado en la presente invención y el método para tratar yodo radiactivo utilizándolo tienen un efecto de adsorción considerablemente excelente en el vapor que tiene alta temperatura, alta presión y alta humedad y, además, un rápido y eficiente efecto de adsorción. Por otra parte, los resultados de los Ejemplos 9 y 10 demuestran que el adsorbente de yodo radiactivo utilizado en la presente invención adsorbe eficazmente hidrógeno, así como yodo radiactivo con una alta eficiencia.

Susceptibilidad de aplicación industrial

40 El método para tratar yodo radiactivo de acuerdo con la presente invención es eficaz en evitar o controlar los riesgos de la filtración o liberación de yodo radiactivo, accidentes de reactor nuclear, y similares en una instalación de reactor nuclear.

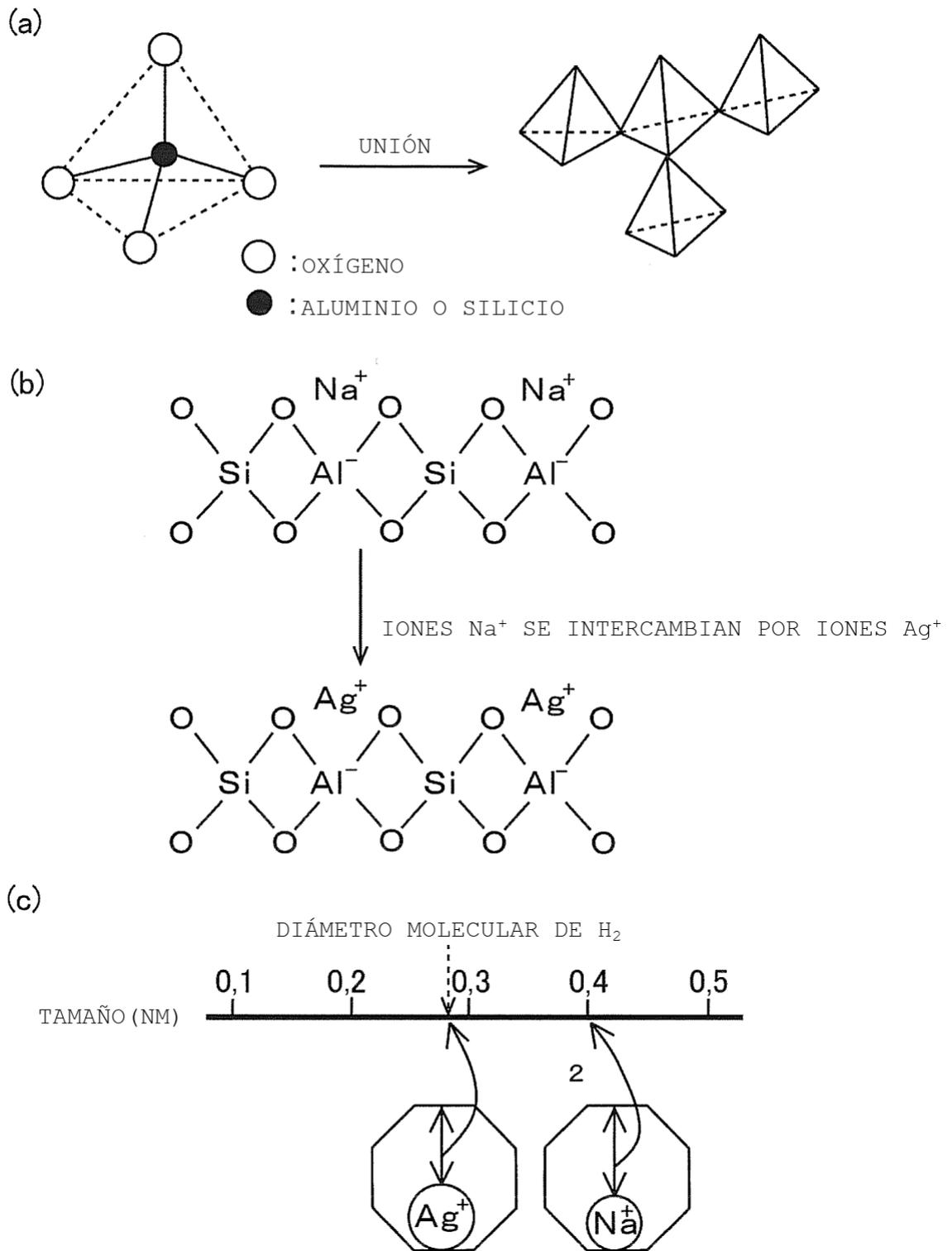
Lista de signos de referencia

- 45 1 UNIDAD DE TRATAMIENTO DE YODO RADIACTIVO
 2 CONTENEDOR
 10 EDIFICIO DE REACTOR NUCLEAR
 11, 20 EDIFICIO DE CONTENCIÓN DE REACTOR NUCLEAR
 12, 21 VASO DE PRESIÓN DE REACTOR NUCLEAR
 50 100 REACTOR DE AGUA EN EBULLICIÓN
 200 REACTOR DE AGUA A PRESIÓN
 K ADSORBENTE DE YODO RADIACTIVO

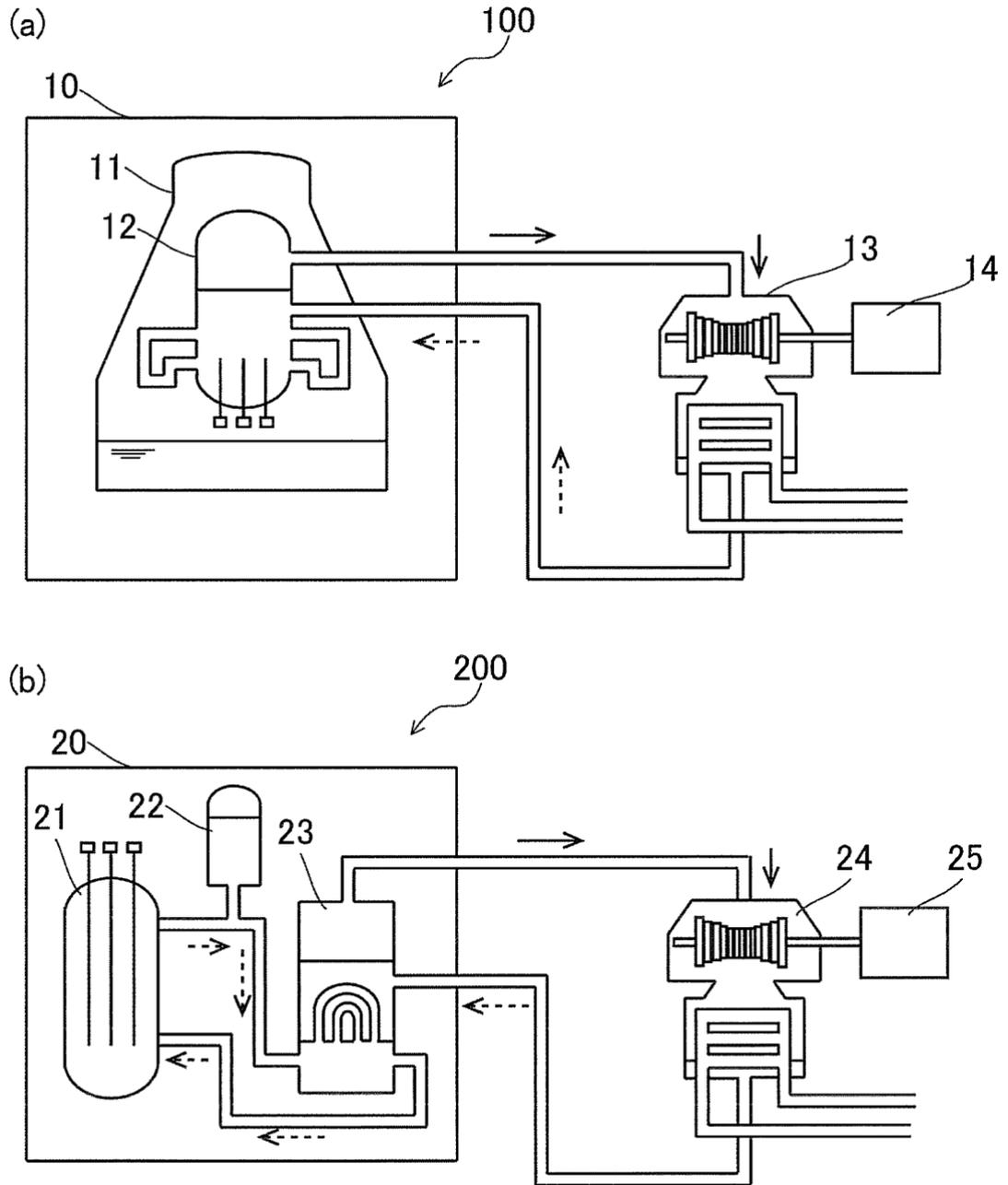
REIVINDICACIONES

1. Un método para tratar yodo radiactivo contenido en vapor descargado desde una instalación de energía nuclear (100, 200), método que comprende:
- 5 una etapa de llenado de un contenedor permeable al aire (2) con adsorbente de yodo radiactivo granulado (K);
una etapa de paso de flujo de pasar un flujo del vapor descargado desde la instalación de energía nuclear (100, 200), a través del contenedor (2) llenado con el adsorbente de yodo radiactivo granulado (K);
- 10 una etapa de eliminación del hidrógeno y el yodo del vapor descargado desde la instalación de energía nuclear (100, 200) cuando genera moléculas de hidrógeno donde el adsorbente de yodo radiactivo granulado (K) es de zeolita 13X, que tiene 97 % o más de los sitios de intercambio iónico sustituidos con plata y no sustituidos por ningún otro material que plata y que tiene un contenido en plata de 36 % en peso o más cuando seca, un tamaño de partícula de malla 10 x 20, una dureza de 94 % o más, tal como se mide de acuerdo con JIS K 1474-4-7 y un contenido en agua de 12 % en peso o menos cuando se seca a 150 °C durante 3 h y por tanto de peso reducido.
- 15
2. El método de la reivindicación 1, **caracterizado por que** el vapor descargado desde la instalación de energía nuclear (100, 200) es vapor supercalentado que tiene una temperatura de 100 °C o más.
- 20
3. El método de la reivindicación 1 o 2, **caracterizado por que** en la etapa de llenado, la densidad de llenado del adsorbente de yodo radiactivo (K) se ajusta en 1,0 g/ml o más.
- 25
4. El método de una cualquiera de las reivindicaciones 1-3, **caracterizado por que** en la etapa de paso de flujo, un periodo de tiempo durante el cual se retiene el vapor en el contenedor (2) llenado con el adsorbente de yodo radiactivo (K) es establece en 0,06 s o más.
- 30
5. El método de una cualquiera de las reivindicaciones 1-4, **caracterizado por que** en la etapa de paso de flujo, el vapor tiene una presión de 399 kPa o más.
6. El método de una cualquiera de las reivindicaciones 1-5, **caracterizado por que** en la etapa de paso de flujo, el contenedor (2) llenado con el adsorbente de yodo radiactivo (K) tiene una humedad de 95 % o más.

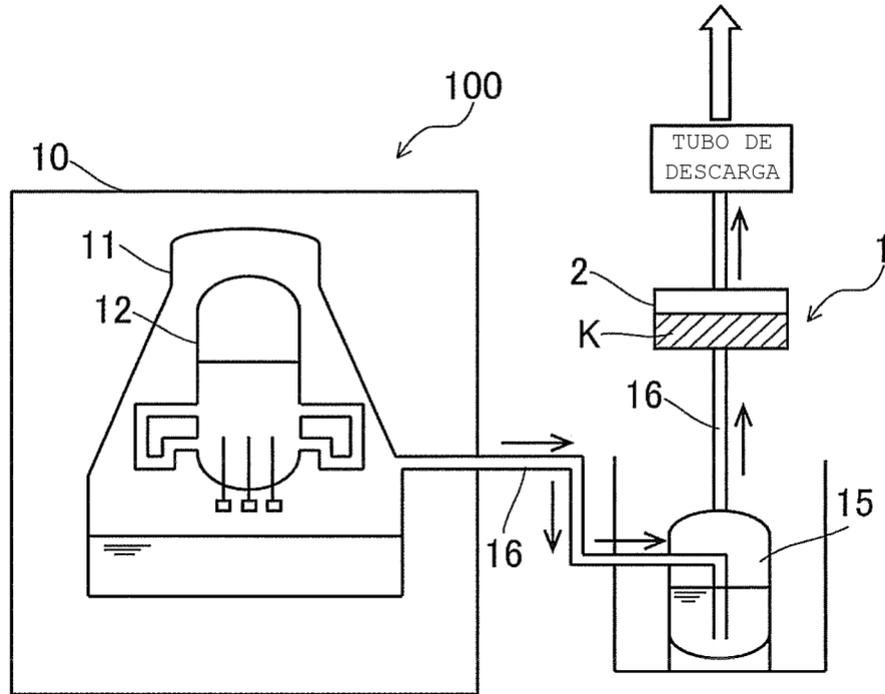
[Figura 1]



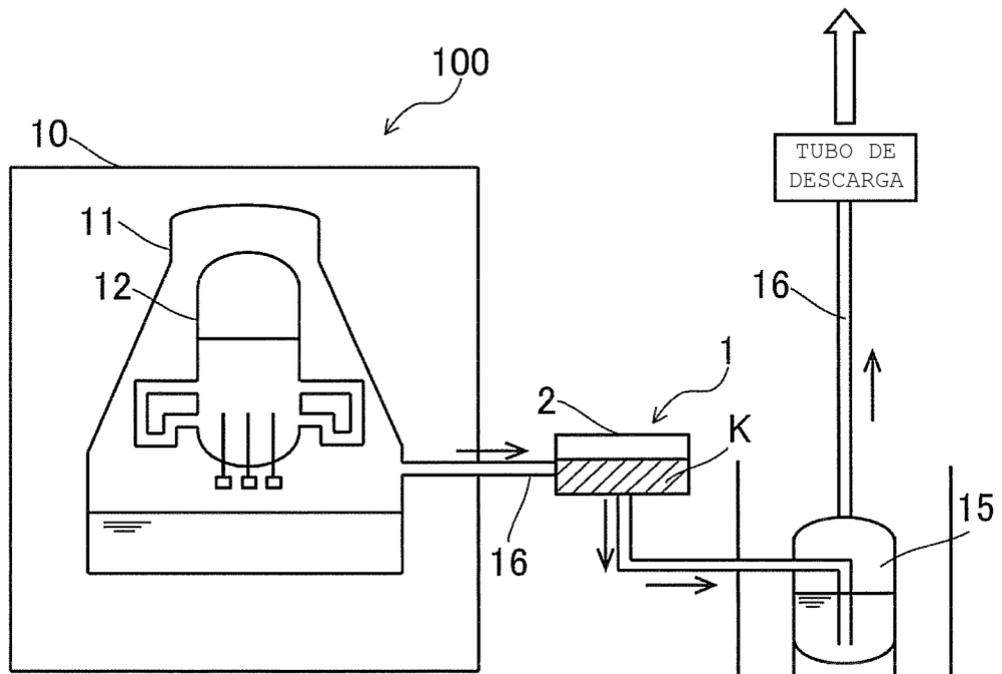
[Figura 2]



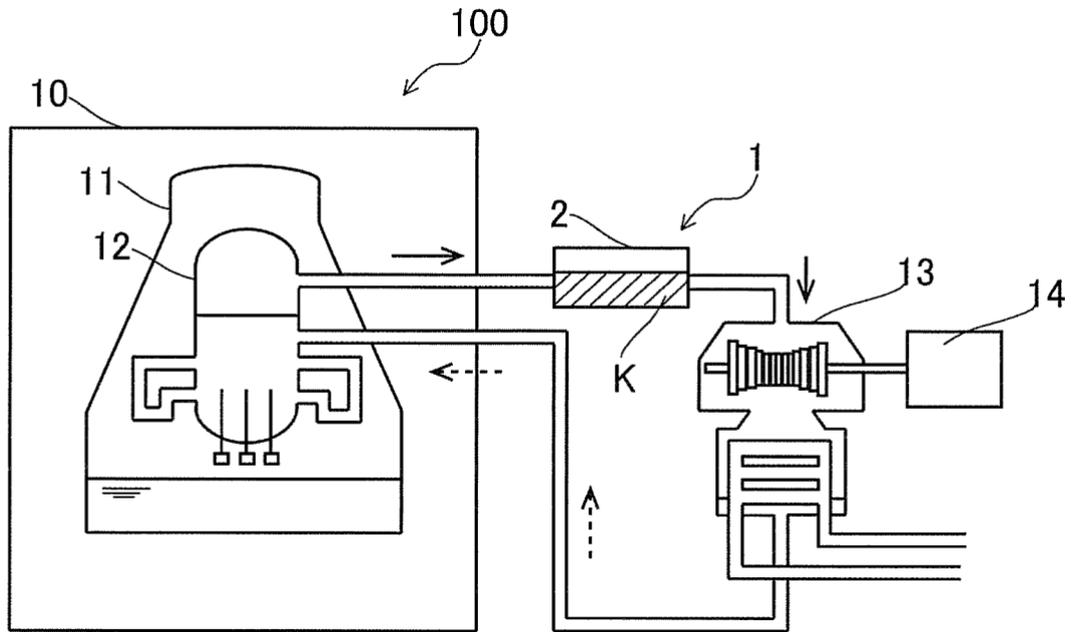
[Figura 3]



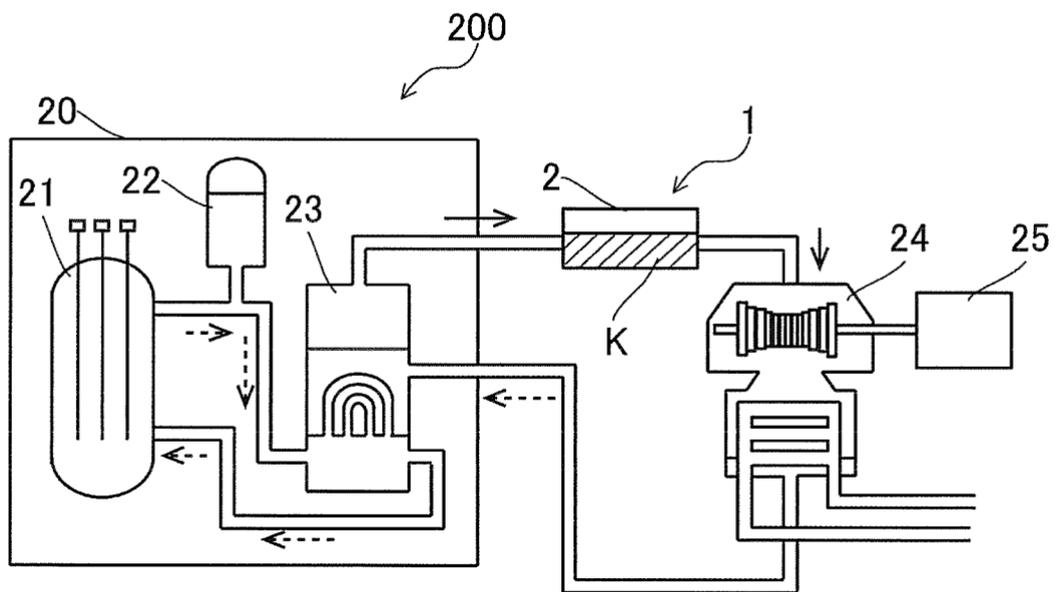
[Figura 4]



[Figura 5]



[Figura 6]



[Figura 7]

