



(12) CERERE DE BREVET DE INVENȚIE

(21) Nr. cerere: a 2021 00029

(22) Data de depozit: 03/02/2021

(41) Data publicării cererii:
30/08/2022 BOPI nr. 8/2022

(71) Solicitant:
• VÎRZOB VLADIMIR ȘTEFAN,
STR.MIHAIL EMINESCU, NR.44, BL.E10,
SC.2, AP.14, DROBETA TURNU SEVERIN,
MH, RO

(72) Inventatori:
• VÎRZOB VLADIMIR ȘTEFAN,
STR.MIHAIL EMINESCU, NR.44, BL.E10,
SC.2, AP.14, DROBETA TURNU SEVERIN,
MH, RO

(54) MODERATOR NUCLEAR CHR-X

(57) Rezumat:

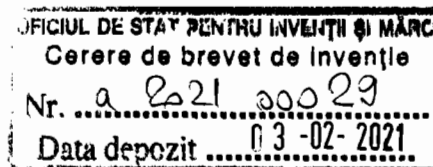
Invenția se referă la un moderator nuclear destinat a fi utilizat în reactoare nucleare sau la decontaminarea suprafețelor slab, mediu și puternic active. Moderatorul, conform invenției, poate fi un moderator nuclear primar constituit din peste 33 de substanțe dispuse molecular prin structuri secundare și care izolează radionuclizii în nucleele moleculare deuterice, iar particulele rezultate în urma dezintegrării radioactive în interiorul nucleelor sunt absorbite de către stratul primar carbonic sau sunt

reflectate de stratul secundar de compuși magnetici și sunt redirecționate către nuclee de către agentul reactant care, în contact cu agentul alcalinizat, produce un flux constant de compus spongios, sau poate fi un moderator polimeric format din moderatorul primar și un lanț de polimeri alăturați unor agenți catalizatori.

Revendicări: 5



Descriere



Invenția se referă la un amestec de compuși destinat:

- absorbției integrale a fasciculului de radiație ionizantă,
- decontaminării suprafețelor slab, mediu și puternic active
- neutralizării a peste 93% dintre radionuclizii sintetici ori naturali.

Soluția constructivă propusă înlocuiește multiplii moderatori nucleari, precum oxidul deuteriu ce are o rată inferioară de termalizare a neutronilor rapizi în reactoarele HWR și care reprezintă un ecran de protecție mai puțin eficient decât invenția propusă. De asemenea, agenții de decontaminare folosiți în prezent sunt considerați deșeuri radiologice de acitivitate slabă-medie în urma operațiunilor de decontaminare și nu pot neutraliza sau izola integral izotopii contaminanți, dezavantaje soluționate de proprietățile invenției Moderator Nuclear CHR-X.

Scopul invenției constă în substituirea materialelor de moderare folosite în prezent în reactoarele nucleare, avantajul fiind termalizarea neutronilor rapizi la o rată superioară și implicit creșterea nivelului de energie rezultantă.

Un alt obiectiv al invenției este decontaminarea integrală a suprafețelor slab, mediu și puternic active, izolând și neutralizând radioizotopii contaminanți. Implicit, în urma operațiunilor de decontaminare realizate folosind Moderator Nuclear CHR-X nu rezultă deșeuri radiologice secundare.

Moderatorul CHR-X are 2 modulații principale, respectiv moderatorul CHR-X *primar*, destinat moderării reactoarelor nucleare *CANDU, PWR, BWR, SCWR, RBMK, MKER* și *substituirii integrale a ansamblului de agenți de răcire* din reactoarele ce folosesc agenți de racire lichizi și moderatorul CHR-X *polimeric* destinat multiplelor operațiuni de decontaminare, compușii polimerici integrați reacționând în 2h cu O₂, izolând și neutralizând concomitent agentul contaminant.

Moderatorul CHR-X primar are în compoziția sa peste 33 de substanțe dispuse molecular prin structuri secundare. Moderatorul CHR-X izolează radionuclizii în nucleii moleculari deuterici, iar particulele rezultate în urma dezintegrării radioactive în interiorul nucleilor sunt fie absorbite de către stratul primar carbonic, fie sunt reflectate de stratul secundar de compuși magnetici și sunt redirecționate către nucleii de către agentul reactant ce în contact cu agentul alcalinizant produce un flux constant de compus spongios.

Cele 5 *structuri secundare* de agenți de reacție specializați, 7 *structuri secundare* de substanțe cu caracter metalic, peste 4 compuși magnetici, precum și peste 13 substanțe destinate activării agenților de reacție, formării nanostraturilor se atașează pe straturile denumite (x,y,z,n,t,h) constituite din elementele-cheie ale soluției. Straturile de substanțe se împart în două mari categorii: stratul primar, din imediata apropiere a nucleului și stratul secundar, ce are rolul de redirecționare a radionuclizilor și a particulelor rezultate din dezintegrării în nucleu.

Compușii ce intră în componența moderatorului CHR-X primar sunt: oxid deuteriu, iodură de plumb, polyvinylpirrolidona, clorură de zinc, carbonat de nichel, sesquioxid de neodim, magnetită, sulfat de cupru(reactant), carbon activat, clorură stanoasă, oxid de wolfram, azotat de bismut, diclorometan, tetraclorodibenzodioxină, trifosfat de potasiu(reactant), carbonat de sodiu, agent alcalinizant(hidroxid de potasiu sol.30%), acid azotic 65%(reactant), dioxid de siliciu, structură cicloalcanică hidrofobă, apă regală(reactant), etanol (solvent), nonoxinol-9, fosfat disodic, hidroxid de sodiu, alcool izopropilic (solvent), acid clorhidric 30%(reactant), acid sulfuric 95% (reactant), acid metansulfonic.

Procedeele pentru obținerea Moderatorului Nuclear CHR-X primar se bazează pe 37 de etape:

- Se va dizolva iod în etanol distilat într-o proporție 1:3 într-un pahar borosilicat Berzelius sau echivalent . Pentru a omogeniza soluția, nu se folosesc procedee termice, ci doar se agită constant pentru aproximativ 3 minute.
- Se reacționează clorură de zinc cu acid azotic conc. 60% 1:2 în condiții de temperatură și presiune normale într-un pahar borosilicat Berzelius sau echivalent.
- Se reacționează acetatul de plumb cu acid sulfuric 95% 1:1 în condiții de temperatură și presiune normale, într-un pahar borosilicat Berzelius sau echivalent.
- Se reacționează carbonatul de zinc cu acid clorhidric conc. 30% 1:2 în condiții de temperatură și presiune normale, într-un pahar borosilicat Berzelius sau echivalent.
- Se reacționează clorură stanoasă cu acid metansulfonic 5% 1:1 în condiții de temperatură și presiune normale într-un pahar borosilicat Erlenmeyer sau echivalent.
- Se reacționează wolfram metalic 98% cu acid azotic conc. 60% /> 1:3 , apoi se concentrează soluția prin evaporare termalizată, reacție desfășurată într-un balon de sticlă cu fund plat, atașat pe o sită cu azbest și, implicit, pe un trepied. Sursa de căldură este reprezentată de un bec Bunsen sau echivalent.
- Se amestecă treptat produșii de reacție descriși anterior în ordinea preparării acestora într-un pahar borosilicat Berzelius de volum > 350 ml sau echivalent, măsurându-se

temperatura soluției ce manifestă o reacție cu caracter puternic exoterm folosind un termometru de laborator.

- Se determină PH-ul amestecului rezultat folosind o soluție alcoolică de fenoftaleină și se neutralizează soluția cu un caracter acid (PH~2) folosind o soluție de 30% NaOH.
- Se filtrează soluția rezultată folosind o pâlnie cu gât lung, un filtru sintetic și un pahar Erlenmeyer sau echivalent. Filtratul se amestecă cu oxidul deuteriu (D_2O) 1:7 într-un recipient din sticlă borosilică, ulterior fiind încălzit la o temperatură de $80^{\circ}C$ pentru aproximativ 15 minute.
- Se distilează soluția folosind un set de distilare cu refrigerent răcit sau echivalent, pentru a separa impuritățile metalice excesive de amestecul-moderator.
- Se adaugă treptat carbon activat în soluție și se amestecă constant cu o baghetă de sticlă.
- Se adaugă agenții persistenți ce au fost în prealabil dizolvați într-o soluție de acid azotic 60% .
- După o perioadă de circa 7 minute se elimină carbonul neintegrat, prin filtrare folosind o pâlnie cu gât lung, un filtru sintetic și un vas Erlenmeyer sau echivalent.
- Se integrează agentul reactant foarte lent, existând riscul de a iniția o reacție violentă exotermă cu emanare de vapori toxici.
- Se concentrează soluția prin evaporare termalizată, reacție desfășurată într-un balon de sticlă cu fund plat, atașat pe o sită cu azbest și ,implicit, pe un trepied sau echivalent.
- Se vor efectua o serie succesivă de filtrări folosind o pâlnie de separare și un vas Erlenmeyer sau echivalent.
- Se va adăuga o soluție de trifosfat de potasiu și alcool izopropilic 1:4 în soluția de moderare.
- Se va adăuga carbonat de sodiu în soluție, iar apoi aceasta se va încălzi la $60^{\circ}C$ pentru a integra carbonatul de sodiu la o rată accelerată.
- Soluția ce a căpătat un PH alcalin se va neutraliza treptat cu acid azotic diluat, monitorizându-se atent temperatura reacției cu caracter exoterm, folosind un termometru de laborator.
- Se reacționează acetat de bismut cu acid sulfuric 95% 1:2 și se integrează în soluția de moderare.

- Se extrage reziduul insolubil prin filtrare folosind o pâlnie cu gât lung, un filtru sintetic și un vas Erlenmeyer sau echivalent, apoi se concentrează soluția până la 1/3-2/3 din volumul inițial al acesteia.
- Se testează PH-ul folosind o soluție alcoolică de fenoftaleină. Substanța cu caracter acid se neutralizează după caz folosind agenți alcalinizanți.
- Se prepară o soluție sesquioxid de neodim, magnetită și acid clorhidric.1:2:5 într-un pahar borosilicat Berzelius sau echivalent, apoi aceasta se va integra în soluția de moderator.
- Se vor amesteca în prealabil diclorometan și polyvinylpyrrolindonă în proporții egale, apoi soluția rezultată se va integra în soluția principală.
- Se va expune soluția la o sursă UV-C de spectru 498 nm pentru 3 minute.
- Se adaugă o soluție de CuSO₄ și apă distilată 2:1 peste soluția principală.
- Soluția rezultată se transferă într-un vas cu pereți largi, unde se introduc electrozi inoxidabili ce se cuplează prin circuit la instalația electrică și se așteaptă separarea carbonului neintegrat de metal. Procesul se poate considera terminat atunci când va exista un strat vizibil de carbon precipitat pe pereții vasului și pe suprafața soluției.
- Carbonul excesiv se va elimina fie prin filtrare fie prin colectare cu un sistem-sită sau echivalent.
- Se adaugă o soluție de 5% hipoclorit de sodiu ca și catalizator de reacție.
- În soluția rezultată se va adăuga dioxid de siliciu în stare pură. Integrarea se poate realiza prin proces termic sau prin agitare manuală.
- Se reacționează EDTA și alcool izopropilic 1:3 într-un balon de sticlă cu fund plat sau echivalent, apoi soluția se integrează în soluția-moderator.
- Într-un vas Erlenmeyer sau echivalent, se amestecă agentul reactant și soluția, pentru a crea efectul de "burete", ce va ajuta la redirecționarea particulelor încărcate electric în nucleu.
- Se va pregăti agentul despărțitor într-un vas Erlenmeyer sau echivalent prin reacționarea acestuia cu soluția cicloalcanică hidrofobă și se va transfera imediat peste soluția moderatoare. Acest proces poate elimina vapori cu posibile încărcături iodice sau metalice. Pentru a evita eventualele incidente se vor purta echipamentele PPE cu mască-respirator inclusă.
- Se reacționează carbonul cu agentul său reducător într-un pahar borosilicat Berzelius sau echivalent și apoi produsul rezultat se integrează în soluție prin amestecare.
- Se omogenizează mecanic soluția, prin centrifugare sau echivalent.

- După ce s-a obținut o soluție de agent reactant și agent alcalinizant 7:1, aceasta se va integra termic în soluția-moderator.
- După reacțiile efectuate, majoritatea elementelor neintegrate se vor fi oxidat. Cele neintegrate se vor elimina pentru a diminua contaminarea.

Moderatorul CHR-X polimeric este format din moderatorul primar și un lanț de polimeri, alăturați unor agenți catalizatori. Acesta își are existența în trei faze, respectiv: faza 1, în care moderatorul este lichid și are o inerție termică ridicată, dar reacționează rapid cu oxigenul în spații deschise sau ventilate, rezultatul fiind o peliculă polimerică cu textură solidă și omogenă, reprezentând moderatorul CHR-X polimeric în faza 2. Acesta poate fi utilizat ca moderator nuclear uscat, poate fi lichefiat și folosit în operațiuni specializate de decontaminare sau poate fi utilizat ca și material component al diverselor ecrane de protecție solide. Pentru a efectua tranziția în faza 3, se va aplica principiul termoplasticității, astfel prin prelucrarea termică a moderatului CHR-X polimeric în faza 2 în domeniul 170-210°C va rezulta un material solid, poros, închis la culoare. Acesta reprezintă moderatorul polimeric în faza 3. Moderatorul CHR-X polimeric în faza 3 poate fi refolosit prin dizolvare și reintegrare în moderatorul CHR-X polimeric din faza 1 ca o sursă polimerică suplimentară de concentrare.

Astfel că, moderatorul dezvoltat este reciclabil și poate fi produs prin descompunerea polietilenei tereftalate din deșeurile PET, soluționând concomitent și problema poluării cu deșeuri plastice.

Moderatorul CHR-X polimeric în faza 1 conține: moderador CHR-X primar, etilbenzen, poloxamer 407, 1,3,5-trimetilbenzen, propanonă, 1- (ciclohexilcarbonil) vinil ester, dodecilbenzosulfonat de sodium, dimercaptonol, EDTA, dimetilformamidă, xilen sulfonat de sodiu, stiren, diclorometan.

Procedeul pentru obținerea Moderatului Nuclear CHR-X polimeric se bazează pe 9 etape:

- Se amestecă propanonă și 1- (ciclohexilcarbonil) vinil ester 1:1 într-un pahar borosilicat Berzelius.
- Se dizolvă poloxamer 407 în propanonă, reacție desfășurată într-un pahar borosilicat Berzelius, la temperatura constantă de 30°C.
- Soluția de poloxamer-407 și propanonă se va reacționa cu 1,3,5-trimetilbenzen
- Se dizolvă EDTA în alcool izopropilic 95% și se reacționează 1:2 cu dimetilcaptonol

- Se dizolvă stiren 1:2 în amestec diclorometan și dimetilformamidă 1:5
- Se combină soluția de propanonă și 1- (ciclohexilcarbonil) vinil ester și soluția de poloxamer 407, 1,3,5-trimetilbenzen și propanonă, apoi aceasta se transferă într-un pahar Berzelius ce conține moderator CHR-X primar încălzit la 40 °C.
- În paharul Berzelius se transferă și soluția de stiren, diclorometan și dimetilformamidă.
- În continuare, soluția de EDTA, alcool izopropilic și dimetilcaptonol se reacționează cu o soluție de dodecilbenzosulfonat de sodiu, xilen sulfonat de sodiu și apă distilată 1:1:3.
- Se filtrează soluția de moderare ce a fost încălzită la 40 °C folosind un filtru sintetic, apoi filtratul se amestecă cu soluția de agenți chelanți și surfactanți.

Invenția propusă, atât în forma Moderatorului CHR-X primar cât și cel polimeric, prezintă următoarele avantaje:

- termalizarea neutronilor rapizi la o rată superioară și creșterea nivelului de energie rezultantă prin moderarea reactoarelor *CANDU*, *PWR*, *BWR*, *SCWR*, *RMBK*, *MKER* și substituirea integrală a ansamblului de agenți de răcire din reactoarele ce folosesc agenți de răcire lichizi.
- decontaminarea integrală a suprafețelor slab, mediu și puternic active, izolând și neutralizând radioizotopii contaminanți.
- Eliminarea deșeurilor radiologice secundare în urma operațiunilor de decontaminare folosind Moderator Nuclear CHR-X.

Materialele radioactive precum ^{238}Pu , ^{235}U , ^{226}Ra , ^{90}Sr , ^{60}Co , ^{210}Po , ^{241}Am etc. impun probleme multiple în timpul procedurilor rudimentare de tratare și stocare, fiind plasate în depozite geologice subterane, unde din cauza umidității containerele de plumb devin ineficiente, umiditatea prezentă infiltrându-se în containere și dizolvând parțial substanțele radioactive, rezultând contaminanți lichizi ce penetrează stratul calcaros și contaminatează rezervoare subterane de apă. Pentru o eficiență crescută, se va folosi moderator CHR-X primar concentrat cu sub-structuri de decontaminare, chelare și neutralizare, soluție ce se va pulveriza repetitiv peste materialele nucleare. Apoi, după aproximativ 2h, acestea au fost neutralizate integral și pot fi plasate în containere din oțel inoxidabil, în care se va adăuga moderator CHR-X polimeric în faza II lichefiat, ce se va solidifica și va împiedica factorii externi să afecteze conținutul. Chiar și în cazul în care containerele de depozitare ar fi deteriorate, conținutul nu ar reprezenta dificultăți din punct de vedere radiologic.

Moderatorul CHR-X neutralizează radioizotopii aplicând un principiu propriu, denumit „Principiul dezintegrării stabilizate”. Acesta funcționează astfel:

Dezintegrarea stabilizată reprezintă procedeul de dezintegrare radioactivă într-un mediu molecular cu proprietăți izolatoare, care să inducă radioizotopul într-o stare permanentă de stabilitate artificială. Astfel radioizotopul este izolat în nucleul molecular și prin caracteristicile substanței de izolare nucleică, ritmul de dezintegrare este atenuat considerabil. Apoi, particulele rezultate din dezintegrarea atenuată sunt preluate și absorbite de către compușii moleculari aflați pe straturile exterioare. Dacă va rezulta un fascicul remanent de radiații gama sau X, acesta va fi reflectat de o serie de straturi exterioare alcătuite din compuși magnetici, astfel se realizează o difuzie prin crearea unui câmp magnetic permanent, fapt ce confinește mediul molecular de izolare. Acest principiu definește integral modul de funcționare al moderatorului nuclear CHR-X, acesta stabilizând artificial radioizotopii prin procedeele descrise.

Acest fapt reprezintă izolarea integrală a radioizotopului într-un mediu închis și astfel stabilizarea acestuia în mod artificial. Stabilizarea artificială este definită prin modificarea structurală a radioizotopului și integrarea acestuia într-un mediu izolator permanent, în exteriorul căruia să nu existe parametrii detectabili rezultanți ai activității radioizotopului. Astfel radioizotopul este considerat inactiv.

Pentru a induce radioizotopul într-o stare permanentă de stabilitate, trebuie ca mai întâi radioizotopul să fie izolat în mediul special, ritmul de dezintegrare să fie încetinit, apoi să fie intervenit asupra fasciculului rezultat în urma dezintegrării atenuate. Astfel că, mediul izolator trebuie să izoleze radioizotopul în nucleul său. Acest procedeu impune prezența unui lanț superior de agenți chelanți, precum și unei structurări moleculare a compușilor componenți ai mediului de izolare, în funcție de caracteristici precum compatibilitate, reactivitate, electronegativitate, etc. Apoi, în urma izolării inițiale, radioizotopul nu se va afla în nucleul molecular, ci pe straturile intermediare. Astfel trebuie intervenit asupra acestuia cu o serie de agenți de reacție, care să producă un flux spongios, care să se deplaseze spre nucleu și care să redirecționeze radioizotopul către nucleu. Pentru a evita eliberarea acestuia din nucleu se va interveni cu o serie de copolimeri bloc hidrofilii, care să reacționeze în mediul ionic cu agentul reactant și să izoleze nucleul molecular. Astfel radioizotopul nu poate fi eliberat în afara nucleului, implicit în afara mediului, chiar dacă asupra substanței de izolare se intervine cu diferiți agenți chimici ori cu temperaturi extreme, întrucât mediul de izolare prezintă un șir de agenți persistenți non-genotoxici care să împiedice intervenția agenților

chimici asupra mediului. Șirul de agenți persistenți non-genotoxici este caracterizat ca fiind hidrofob, rezistent la agenți chimici. Dacă acesta este dizolvat folosind un solvent specializat, radioizotopul nu este eliberat, regăsindu-se numeroase nano-straturi constituite dintr-un aliaj carbonic, ce sunt inerte și nu reacționează cu astfel de agenți. În continuare se află multiple straturi ce pot avea același rol, de a împiedica eliberarea radioizotopului, spre exemplu agentul reactant, agentul alcalinizant ori agentul reducător, ce pot neutraliza majoritatea bazelor și acizilor tari, solvenților rudimentari ori specializați. Dacă totuși agentul chimic folosit are capacitatea de a penetra prin straturile caracterizate anterior, nucleul este izolat de către copolimerii bloc ce împiedică eliberarea radioizotopului. Seria de copolimeri va reacționa cu agenții chimici, rezultând noi polimeri/copolimeri ce vor izola în continuare nucleul. Astfel se va produce un ciclu constant de reacție, ce va avea ca produși de reacție polimeri/copolimeri similari, ce se vor atașa pe suprafața nucleului.

În urma izolării radioizotopului în nucleul mediului specializat, se va interveni asupra fasciculului de radiație ionizantă provenită din dezintegrarea atenuată. După cum este precizat anterior, în exteriorul mediului izolator nu există parametridetectabili care să confirme prezența radioizotopului, deci fasciculul de radiație ionizantă provenită din dezintegrarea atenuată va fi absorbit sau confinit prin următoarele metode și compuși chimici.

În primul rând, pe suprafața nucleului se află un lanț de copolimeri hidrofilii non-genotoxici, ce vor absorbi până la 10% din energia fasciculului de radiație ionizantă. Apoi va interveni stratul de aliaj derivat carbonic, ce va absorbi până la 60% din energia fasciculului remanent. În continuare, se va absorbi până la 15% prin intermediul lanțurilor de agenți de reacție, agenți alcalinizanți, agenți reducători, etc., iar fasciculul remanent cu o intensitate de cca. 15% va fi reflectat prin difuzie de către straturile de compuși magnetici și va fi redirecționat către nucleu de către fluxul de compus spongios rezultat în urma reacției dintre agenții reactanți și cei alcalinizanți.

Moderatorul CHR-X are un potențial economic major prin eficiența ridicată, costurile reduse de producere și unicitatea sa, în urma constatărilor teoretice și practice, moderatorul nuclear CHR-X putând fi folosit pentru:

- Moderarea reactoarelor nucleare CANDU, PWR, BWR, SCWR, RMBK, MKER
- Înlocuirea agenților de răcire convenționali din reactoarele nucleare
- Ecologizarea reactoarelor nucleare avariate
- Stocarea și neutralizarea materialelor nucleare puternic active, reactive, ori toxice

- Neutralizarea surselor radioactive conținute de iradiatoarele profesionale
- Neutralizarea aliajelor nucleare complexe
- Neutralizarea deșeurilor gazoase
- Neutralizarea deșeurilor lichide
- Decontaminarea suprafețelor contaminate cu radioizotopi de activitate ridicată
- Decontaminarea spațiilor nepopulate
- Decontaminarea internă a clădirilor
- Decontaminarea spațiilor forestiere
- Decontaminarea materialelor textile
- Decontaminarea rețelelor de apă
- Decontaminarea materialelor poroase
- Decontaminarea depozitelor geologice folosite la depozitarea materialelor mediu + puternic active
- Decontaminarea echipamentelor electronice avansate
- Decontaminarea echipamentelor standard de măsurare a radioactivității
- Decontaminarea spațiilor în medii de temperatură ridicată
- Prelucrarea focoaselor nucleare dezafectate
- Prelucrarea în siguranță a pulberilor și a materialelor pulverulente radioactive prin amplasarea sistemelor automate de nebulizatoare cu soluție CHR-X primar.

Revendicări

1. Moderator Nuclear CHR-X primar, caracterizat prin termalizarea neutronilor rapizi la o rată superioară materialelor moderatoare folosite în prezent, precum și prin capabilitatea acestuia de a neutraliza izotopi radioactivi.
2. Moderator Nuclear CHR-X polimeric, caracterizat prin proprietatea sa de a decontamina suprafețe slab, mediu și puternic active
3. Tehnologie obținere Moderator Nuclear CHR-X primar
4. Tehnologie obținere Moderator Nuclear CHR-X polimeric
5. Tehnologie de neutralizare izotopică.