

2.84642.

PATENTE DE INVENCION
=====

Pats/24/1705/22.

29 EN



Memoria Descriptiva

sobre:

"Perfeccionamientos en los métodos de fabricación
de combustibles para reactores nucleares".

Solicitante:

UNITED KINGDOM ATOMIC ENERGY AUTHORITY, entidad in-
glesa, residente en 11-12, Charles II Street, Londres,
Inglaterra.

Este invento se refiere a combustible
para reactores nucleares y, en especial, a combus-
tibles para utilizarse en reactores de temperatu-
ra elevada.

5.

La tendencia actual, en relación con

284642

-2-



- los combustibles a utilizar en reactores de temperatura elevada, consiste en tratar de proporcionar un combustible inherentemente retentivo de los productos de fisión formados, y se han hecho muchas -
5. proposiciones relativas a los combustibles susceptibles de empleo. Es evidente que el combustible de uranio metálico no puede utilizarse cuando la temperatura en el interior del reactor sea demasiado alta. La solución, por tanto, consiste en em-
10. plear combustibles cerámicos o de óxido metálico sinterizado y, en la actualidad, parece ser conveniente el revestir o enfundar el verdadero combustible en un manguito o depósito exterior de material cerámico, dado que los únicos metales que parecen
15. ser posibles, el acero inoxidable y el berilio introducen otras dificultades. En el experimento realizado con un reactor de temperatura elevada, denominado Dragon, el combustible se encierra en grafito, pero parece ser también posible el encerrarlo
20. en materiales tales como alúmina o berilia. Sin embargo, se ha comprobado que es imposible, en el estado actual de la técnica, proporcionar un artefacto de grafito impermeable para los productos de fisión y, por tanto, la investigación más reciente
25. hace creer que es teóricamente imposible proporcionar un artículo de grafito impermeable a temperaturas elevadas, para el cesio, el estroncio y el bario, que se sabe son los productos de fisión más
30. abocados a causar dificultades a este respecto. Por otra parte, parece apuntarse la posibilidad de ob

284642



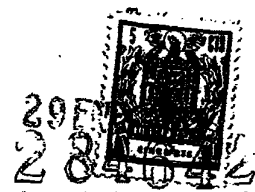
-3-

- tener capas de grafito o piro-carbono sobre artículos suficientemente impermeables para los productos de fisión tales como el cripton y el xenon, con objeto de impedir cualquier entrada apreciable de los mismos en la corriente de refrigerante.
- 5.
- De los combustibles cerámicos que se han propuesto, para los reactores de este tipo general, han merecido consideración el dióxido de uranio y el dicarburo de uranio, pero, en general, parece que existen dificultades en el empleo del primero, ya que a las temperaturas previstas puede reaccionar con el grafito y el carbono y, además, su conductibilidad térmica es tan reducida que el centro del elemento combustible puede alcanzar una temperatura tan elevada que de lugar a la fusión o al gran crecimiento de los cristales, y los experimentos han demostrado que estas elevadas temperaturas pueden producir el excesivo desprendimiento de productos de fisión. Así pues, hasta ahora ha parecido que los dicarburos, revestidos o protegidos con grafito o piro-carbono, son los combustibles preferidos y, en realidad, para el experimento Dragon se ha elegido, en estos momentos, un dicarburo de uranio-torio. Se han hecho muchas proposiciones para reducir el escape de productos de fisión de este combustible, pero, dado que se ha tropezado con muchas dificultades para llegar a una decisión final con respecto al combustible a emplear, puede decirse que ninguna de las propuestas anteriores resulta verdaderamente superior.
- 10.
- 15.
- 20.
- 25.
- 30.



Así pues, un objeto de este invento es proporcionar una composición distinta de combustible.

- 5. De acuerdo con este invento, una composición de combustible, destinada a usarse principalmente en un reactor de temperatura elevada, contiene nódulos de monocarburo de uranio, revestidos con un carburo metálico compatible con el monocarburo de uranio.
- 10. Los experimentos que la Entidad solicitante ha realizado, demuestran que, en cuanto a la difusión de los productos sólidos de fisión se refiere, por ejemplo de cesio o de bario, el monocarburo de uranio es considerablemente más retentivo que el dicarburo, y se ha calculado que un nódulo de combustible de 100 micrones de diámetro, proporcionará un retardo del orden de un año, o más, para el 90% del contenido de cesio del nódulo.
- 15. Debe indicarse que el monocarburo de uranio no es completamente compatible con los revestimientos de carbono o de grafito a elevada temperatura y, por tanto, el nódulo ha de dotarse de una capa o revestimiento compatible, y los experimentos han evidenciado que el carburo de silicio constituye una envoltura de esta naturaleza, por lo menos para temperaturas de hasta 1500°C. Además, los experimentos abonan la opinión de que el carburo de silicio es, por esencia, retentivo de los productos de fisión, en cierto grado. Hay que admitir también
- 20. la posibilidad de empleo del carburo de zirconio.
- 25.
- 30.



La capa de carburo de silicio puede proporcionararse al nódulo mediante técnicas conocidas - o, como variante, puede aplicarse por descomposición térmica de un gas o mezcla conveniente, que contenga silicio, tal como por ejemplo metil tricloro silano (CH_3SiCl_3), o tetracloruro de silicio mezclado con metano.

5.

Desgraciadamente, a las elevadas temperaturas que se desarrollan en estos reactores, la presión del vapor de carburo de silicio es elevada y, por tanto, existe el peligro evidente de que la capa pueda evaporarse o sublimarse con resultados perjudiciales.

10.

Así pues, de acuerdo con otra característica de este invento puede aplicarse una segunda capa a las partículas, y esta segunda capa, muy convenientemente es de piro-carbono susceptible de depositarse sobre la envoltura de carburo de silicio mediante la descomposición de un hidrocarburo gaseoso, a una temperatura adecuada. Las partículas preferidas de combustible, contienen pues un nódulo de monocarburo de uranio, por ejemplo de 100 micrones de diámetro, una capa envolvente de carburo de silicio de 30 micrones de espesor, por ejemplo y, posiblemente, una envoltura exterior de carbono pirolítico de un espesor de 50 micrones por ejemplo.

15.

20.

25.

Por una serie de razones, en parte relacionadas con la preparación de las partículas, puede también colocarse una delgada capa de piro-

30.

29 ENERO 2040 42

-carbono entre el nódulo de monocarburo y la capa protectora de carburo.

5. Las partículas compuestas, que deseablemente pueden llamarse "núcleos", encajarse en una pasta de, por ejemplo, carbono, grafito u otros materiales, para formar una briqueta de combustible y, si se desea, pueden reunirse varias de éstas entre sí y encerrarse dentro de un manguito exterior de carbono o grafito, para formar un elemento completo de combustible.
- 10.

Puede ser conveniente variar la composición de estos núcleos o nódulos de combustible, por ejemplo mezclándoles monocarburo de torio (ThC) con objeto de generar uranio-233 o por mezcla de una proporción de los carburos inferiores de plutonio (PuC o Pu_2C_3).

15.

Por vía de ejemplo, se facilitan datos de nódulos físis revestidos con SiC, del tipo indicado, utilizando primero una capa muy delgada de piro-carbono ($2-3 \mu$), luego otra de 40μ de SiC, después otra de 60μ de carbono pirolítico, y se comparan con capas de carbono pirolítico solamente.

20.

Después de irradiación neutrónica en un reactor de flujo elevado, los nódulos o núcleos se calentaron a 1500° durante 200 horas y se analizó la fracción desprendida de distintos productos de fisión. Los resultados figuran en la tabla siguiente, que aclara muy bien las ventajas de las capas de carburo.

25.

29
-7-
284642

Nódulos o núcleos	Fracciones desprendidas			
	Xe ¹³³	Cs ¹³⁷	Ba ¹⁴⁰	I ¹³¹
Revestimiento de carbono solamente	$<4 \times 10^{-5}$	$<10^{-4}$	0.3	0.03
Con capa de SiC	10^{-6}	$<4.10^{-4}$	3×10^{-5}	$<4.10^{-6}$

NOTA

Descrita suficientemente la naturaleza del invento, así como la manera de realizarlo en la práctica, debe hacerse constar que las disposiciones anteriormente indicadas son susceptibles de modificaciones de detalle en cuanto no alteren su principio fundamental. También se hace constar que este invento se refiere a una Solicitud de Patente presentada en Inglaterra con fecha 30 de enero de 1962 nº 3648/62 acogiéndose, por lo tanto, a los beneficios que conceden los Convenios Internacionales en vigor y siendo lo que constituye la esencia del referido invento y por lo que se solicita Patente de Invención por 20 años en España: "PERFECCIONAMIENTOS EN LOS METODOS DE FABRICACION DE COMBUSTIBLES PARA REACTORES NUCLEARES"; caracterizándose por lo siguiente:

1ª - "Perfeccionamientos en los métodos de fabricación de combustibles para reactores nucleares" caracterizados por comprender núcleos de monocarburo de uranio revestidos con un carburo

metálico compatible con el monocarburo de uranio.

2ª - Perfeccionamientos, según reivindicación 1ª, caracterizados porque el carburo metálico es carburo de silicio.

5. 3ª - Perfeccionamientos, según reivindicación 1ª o 2ª, caracterizados por disponerse - una capa muy delgada de piro-carbono, entre el monocarburo de uranio y el carburo metálico.

10. 4ª - Perfeccionamientos, según reivindicación 1ª, 2ª o 3ª, caracterizados por disponerse una capa exterior de piro-carbono sobre el carburo metálico.

15. 5ª - Perfeccionamientos, según cualquiera de las reivindicaciones anteriores, caracterizados porque el monocarburo de uranio se mezcla con monocarburo de torio o un carburo inferior de plutonio.

20. 6ª - Perfeccionamientos, según cualquiera de las reivindicaciones anteriores, caracterizados porque los nódulos revestidos se disponen en una pasta de carbono o grafito, para formar una briqueta de combustible.

25. 7ª - Perfeccionamientos, según reivindicación 6, caracterizados por colocarse varias briquetas de combustible dentro de una envoltura de carbono o grafito, para formar un elemento de combustible.

30. 8ª - Perfeccionamientos en los métodos de fabricación de combustibles para reactores nucleares, tal y como queda sustancialmente descrito

29 ENE



28-12

en la presente Memoria.

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

Madrid,

29 ENE 1963

UNITED KINGDOM ATOMIC ENERGY AUTHORITY,

J. GOMEZ ACEBO Y MODEP
P.P.