

31340

25 MAY. 1965

P - 29.187

B 1317-3



MEMORIA DESCRIPTIVA

para solicitar

PATENTE DE INVENCION

e n

E S P A Ñ A

por VEINTE años

a nombre de COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE, entidad francesa, establecida en 29, rue de la Fédération, Paris, Francia, por:

"MEJORAS INTRODUCIDAS EN LA FABRICACION DE FUNDAS DE ELEMENTOS COMBUSTIBLES NUCLEARES"

El invento tiene como objeto una funda de elemento combustible nuclear, así como un elemento combustible revestido con tal funda, utilizable especialmente en los reactores nucleares refrigerados por circulación de gas bajo presión.

5

El empleo de elementos combustibles a base de uranio metálico enfundado en una aleación magnesio-circonio está muy extendido en los reactores nucleares moderados con grafito y refrigerados por circulación de gas carbónico bajo

25 MAR 1955

presion.

Este tipo de elemento combustible se puede emplear a una temperatura de funda que puede llegar hasta las proximidades de 500°C, presentando la aleacion de magnesio-circonio una resistencia mecanica suficiente hasta estas temperaturas. No obstante, cuando a esta temperatura el grado de irradiación rebasa un umbral del orden de 1000 MWj/t, las fundas de aleacion de magnesio-circonio presentan una menor resistencia frente a determinados fenomenos fisicos y especialmente frente a la difusion del plutonio formado en la irradiacion del elemento combustible. Esta difusion del plutonio a través de las fundas entraña una contaminación molesta del canal correspondiente.

A fin de aumentar la resistencia de las fundas a la difusion del plutonio especialmente, el invento tiene como objeto una funda de elemento combustible nuclear destinada especialmente a los elementos que comprenden una barra de combustible a base de uranio y enfriados por circulacion de un gas bajo presion, cuya funda es realizada a base de aleación de magnesio-circonio con pequeño contenido en circonio, comprendido preferentemente entre 0,1 y 0,7% caracterizado por que lleva, al menos en su cara interior, una capa anti-difusora constituida por oxido de magnesio y/o carbonato de magnesio y por carbono libre, y cuyo espesor esta comprendido preferentemente entre 0,1 y 25 micras.

Segun las condiciones de temperatura y de presion, se forma una pelicula, bien de carbonato de magnesio $MgCO_3$, bien de oxido de magnesio MgO , bien de una mezcla de ambos y simultaneamente un ligero deposito de carbono segun las reacciones siguientes:

313403



5

el óxido de carbono formado puede reaccionar también con el magnesio según la reacción:

10

Temperaturas (°C)	Presión (kg/cm ²)		
	15	25	60
450	CO ₃ Mg+Vestigios MgO+C	CO ₃ Mg+C	CO ₃ Mg+C
500	MgO+Vestigios CO ₃ Mg+C	MgO+CO ₃ Mg+C	MgO+CO ₃ Mg+C
550	MgO+C	MgO+Vestigios CO ₃ Mg+C	MgO+CO ₃ Mg+C

15

20

Prácticamente se puede operar a temperaturas comprendidas entre la temperatura ambiente y 550°C, siendo no obstante el tiempo de tratamiento necesario tanto más largo cuanto más baja es la temperatura; por esta razón esta se escogera preferentemente superior a 300°C. Prácticamente, la duración del tratamiento está comprendida entre 10 y varios cientos de horas, el límite superior de la temperatura está impuesto por la preocupación de conservar la estabilidad estructural y dimensional de la aleación de magne-

30

313408



sio-circonio.

5 Por otra parte, interesa operar bajo una presion gaseosa bastante elevada, comprendida convenientemente entre 1 y 60 kg/cm², para acelerar la formacion de la capa anti-difusora; no obstante cuando la operacion se conduce a la presion atmosferica, la duracion del tratamiento es mas larga.

La tabla siguiente da la naturaleza de la capa formada en diferentes condiciones operatorias:

10

Temperaturas (°C)	Presion/(kg/cm ²)		
	15	25	60
450	CO ₃ Mg+Vestigios MgO+C	CO ₃ Mg+C	CO ₃ Mg+C
15 500	MgO+Vestigios CO ₃ Mg+C	MgO+CO ₃ Mg+C	MgO+CO ₃ Mg+C
550	MgO+C	MgO+Vestigios CO ₃ Mg+C	MgO+CO ₃ Mg+C

20

En todos los casos, la capa formada tiene carbono cuyo contenido puede llegar hasta algunos %, y es tanto mas importante cuanto mas elevado es el contenido del gas carbonico en oxido de carbono.

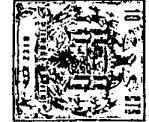
25

Los tres compuestos susceptibles de formarse (oxido de magnesio y/o carbonato de magnesio y carbono) presentan la misma eficacia como capa anti-difusora, en consecuencia la eleccion de las condiciones operatorias se efectuara para obtener una formacion bastante rapida de la pelicula anti-difusora.

30

El espesor de la capa obtenida varia entre 0,1 y 25

313



micras y un espesor de algunas micras es ya eficaz.

5 El gas carbonico utilizado para la conduccion de la operacion puede ser deshidratado hasta que el contenido en vapor de agua llegue a algunos vpm(volumenes por millon); no obstante esta operacion no es obligatoria. Ya no es necesaria una desoxigenacion inducida del gas carbonico e incluso se puede añadir voluntariamente un cierto porcentaje de oxigeno en el gas carbonico a fin de acelerar la oxidacion.

10 Se van a describir ahora dos ejemplos, dados a titulo no limitativo, de formacion de una capa anti-difusora sobre una funda de aleacion de magnesio-circonio.

15 Ejemplo 1: Una funda de aleacion magnesio-circonio al 0,5% en peso de circonio es expuesta a la accion de gas carbonico en un autoclave de acero. El gas carbonico es deshidratado por paso sobre alumina activada en forma de bolan antes de ser introducido en el autoclave. Este es vaciado primeramente de aire y llenado despues de gas carbonico purificado y es sometido a 3 purgas sucesivas. Finalmente, la atmosfera gaseosa contiene en regimen los siguientes contenidos en impurezas, teniendo en cuenta la desgasi-
20 ficacion de las paredes durante el caldeo:

25 Vapor de agua: 200 a 300 vpm.
Oxigeno : inferior a 10 vpm
Nitrogeno : inferior a 500 vpm.

30 La presion de gas carbonico en el interior del autoclave se mantiene en las proximidades de 25 kg/cm², bajo una temperatura de 400°C durante aproximadamente 300 horas.

313408



La capa antidifusora formada presenta un espesor de 10 micras.

5 Ejemplo 2: Una funda de aleacion de magnesio-circonio al 0,5% en peso de circonio es expuesta a la accion de gas carbonico en un autoclave de acero. El gas carbonico es purificado de la misma forma que en el ejemplo 1 y la atmosfera gaseosa contiene en regimen los mismos contenidos en impurezas que en este ejemplo 1. La presión de gas carbonico en el interior del autoclave se mantiene en las proximidades de 5 kg/cm² bajo una temperatura de 450°C, durante 10 30 horas. La capa antidifusora formada presenta un espesor de 5 micras.

Despues de estos tratamientos, la funda es recubierta sobre toda su superficie por una capa antidifusora pero solamente interesa la pelicula que se encuentra en la cara interior, y también la cara exterior de la funda puede ser 15 limpiada por un ligero decapado quimico.

La funda obtenida es utilizada seguidamente para fabricar un elemento combustible. Para ésto, la barra de combustible a base de uranio metalico es revestida con la funda por cualquier procedimiento de enfundado conocido, tal como, por ejemplo, un enfundado hidraulico o termoneumatico. 20

La presente solicitud que corresponde a la presentada en Francia, con fecha 26 de Mayo de 1.964, bajo el Número P.V. 975.890, se acoge a los beneficios del artículo 51 del vigente Estatuto sobre Propiedad Industrial. 25



N O T A

Los puntos de invención propia y nueva que se presentan para que sean objeto de la presente solicitud de Patente de Invención en España, por VEINTE años, son los siguientes:

10

1.- Mejoras introducidas en la fabricación de fundas de elementos combustibles nucleares realizadas a base de aleación de magnesio-circonio con pequeño contenido en circonio y que llevan en su cara interior al menos una capa anti-difusora constituida por óxido de magnesio y/o carbonato de magnesio y por carbono libre.

15

2.- Mejoras según la reivindicación 1 según las cuales la aleación de magnesio-circonio tiene un contenido en peso de circonio comprendido entre 0,1 y 0,7%.

20

3.- Mejoras según la reivindicación 1 ó 2, según las cuales el espesor de la capa anti-difusora está comprendido entre 0,1 y 25 micras.

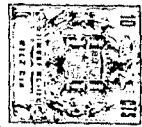
25

4.- Mejoras según cualquiera de las reivindicaciones precedentes, según las cuales la capa anti-difusora se obtiene por caldeo de la funda de aleación magnesio-circonio en una atmósfera de gas carbónico a una presión comprendida entre 1 y 60 kg/cm², a una temperatura comprendida entre la temperatura ambiente y 550°C durante un tiempo suficiente, comprendido entre 10 y varios cientos de horas, para que se forme óxido de magnesio y/o carbonato de magnesio.

30

5.- Mejoras introducidas en la fabricación de fundas de elementos combustibles nucleares.

313408



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

La presente Memoria consta de ocho hojas, escritas a máquina por una sola de sus caras.

Madrid,

P. A. 25 MAY. 1915

[Handwritten signature]

315-11