

329.458

O.G.13.836/ms.

PATENTE DE INVENCION

MEMORIA DESCRIPTIVA

Sobre:

**"PROCEDIMIENTO DE PREPARACION DE UN PRECIPITADO
FILTRABLE DE PLUTONIO Y URANIO".**

**Solicitante: UNITED STATES ATOMIC ENERGY COMMISSION,
entidad norteamericana, con domicilio en
GERMANTOWN, MARYLAND. (U.S.A.)**

Inventor: Mr. Ward L. LYON.

**POOR
QUALITY**

La presente invención se refiere a un método mejorado en el cual se coprecipitan uranio y plutonio a partir de soluciones acuosas en una forma rápidamente sedimentable y fácilmente filtrable, y más particularmente a la -
5. preparación de elementos de combustible de uranio-plutonio para reactores nucleares.

Las mezclas sólidas de uranio-plutonio son de importancia considerable en la tecnología de los reactores nucleares. Por ejemplo, se utilizan mezclas de plutonio 239 y de uranio 238 como material fértil de combustible -
10. en la fabricación de elementos de combustible para núcleos de reactor de producción nuclear. El uranio 238 se convierte a plutonio 239, mediante la captura de electrones a partir de la fisión de combustible de plutonio y debilitamiento de rayos beta subsecuente. El uranio se introduce
15. en el núcleo en la forma de elementos de combustible constituidos de un cuerpo de cerámica homogéneo, de plutonio y uranio en solución sólida, en donde el contenido de plutonio del elemento de combustible es generalmente menor que
20. 20% en peso. Se han preparado anteriormente mezclas de uranio-plutonio, especialmente tales como aquellas requeridas para los elementos de combustible de reactor de producción mencionados anteriormente, coprecipitando uranio y plutonio a partir de una solución acuosa ácida conteniendo
25. uranio y plutonio. Las concentraciones de uranio y de plutonio se ajustan para precipitar simultáneamente el uranio y el plutonio en la relación deseada mediante la adición de un precipitante, v.gr., amoníaco, que produce una mezcla de óxido hidratado que se asienta y se filtra
30. a partir de la solución y se convierte mediante compacta-

ción y calcinación para proveer el cuerpo de combustible de cerámica deseado.

5. La preparación de mezclas de uranio-plutonio que tienen un contenido bajo, v.gr., menor que aproximadamente 40% de plutonio mediante coprecipitación, establece varios problemas. El precipitado es de forma coloidal y --
tiende a permanecer suspendido durante un periodo prolongado. Aún después de asentamiento, es difícil de filtrar debido al estado finamente dividido y a la naturaleza inherente del precipitado. Además, la torta del filtro mantiene agua muy tenazmente y se seca sólo muy lentamente. Acumulativamente, la lentitud de los procedimientos de --
asentamiento, filtración y secado, utilizados generalmente en los procedimientos para producir las mezclas coprecipitadas, requiere una capacidad grande y costosa que debe acumularse en los medios de procesamiento de elementos de combustible.
- 10.
- 15.

20. Se ha descubierto ahora que si los contenidos de uranio y de plutonio en la solución acuosa se proveen o se ajustan a aproximadamente relaciones equimolares, el uranio y el plutonio se coprecipitan en una forma que se asienta más rápidamente y pueden filtrarse fácilmente. --
Se requiere sólo aproximadamente la quinta parte del tiempo total para coprecipitar, filtrar y secar mezclas de --
uranio y de plutonio mediante el procedimiento de la presente, en comparación con aquéllos utilizados en la práctica convencional. La torta del filtro puede secarse en aire cuatro veces más rápidamente que los precipitados --
finamente divididos del arte anterior. La mezcla de un coprecipitado equimolar de uranio y plutonio es un polvo
- 25.
- 30.

muy activo que teóricamente dicho forma una solución sólida con la adición de dióxido de uranio por concrecionado.

5. Se establece teóricamente que la diferencia notable en el comportamiento de los precipitados de plutonio y uranio de la presente, de una relación de concentración molar cercana a la unidad, se debe a la formación de un compuesto distinto, equimolar, de uranio y plutonio, - que promueve la coagulación y al tamaño incrementado de partícula del precipitado.

10. Para propósitos de reactores de producción, la relación de concentración óptima de uranio a plutonio es de aproximadamente 4:1. Es deseable proveer otras relaciones sobre escalas amplias de composición para varios propósitos. El tiempo requerido para hacer una mezcla de dicha composición, o cualquier otra composición que tenga una relación de uranio-plutonio diferente a la unidad, se acorta en gran medida, ya que se ha encontrado que la mezcla equimolar coprecipitada de uranio y plutonio puede mezclarse con cantidades seleccionadas de uranio o plutonio para producir las relaciones deseadas. La invención provee de tal modo procedimientos que eliminan en un grado notable estas limitaciones sobre la velocidad de producción en la manufactura de elementos de combustible de uranio-plutonio y, además, una mayor flexibilidad en las relaciones de composición utilizando el procedimiento de la presente invención.

25. Consecuentemente, es un objeto principal de la presente invención proveer un método para coprecipitar mezclas de uranio-plutonio para formar precipitados que se asienten rápidamente y que se filtren fácilmente.

30.

Es un objeto adicional de la presente invención proveer un precipitado que contenga plutonio-uranio, que se filtre fácilmente y se seque de manera sencilla.

5. Es aún otro objeto de la presente invención proveer un método para la rápida manufactura de cuerpos de elemento de combustible de plutonio-uranio que provean flexibilidad considerable en la selección de la relación de uranio-plutonio en los mismos.

10. Otros objetos y ventajas de la presente invención se harán aparentes mediante una consideración de la siguiente descripción.

15. En general, el procedimiento de la presente para producir cuerpos de combustible de uranio-plutonio o similares, incluye la preparación de una solución acuosa de alimentación, que, para obtener los resultados mejorados, se ajusta a manera de contener sales solubles de uranio y plutonio en una relación de concentración molar cercana a la unidad. Las soluciones se producen por medios convencionales. Usualmente, el uranio está en el estado de uranio y el plutonio en un estado iónico de plutonio IV en una solución de nitrato. Se agrega amoníaco a la solución para precipitar simultáneamente una mezcla íntima de diuranato de uranio y óxidos hidratados de plutonio en una relación cercana a la unidad. El coprecipitado se deja secar y se filtra en un aparato filtrante convencional. La torta del filtro se lava con varias porciones de agua y se seca. Finalmente, el material secado se reduce en una atmósfera de hidrógeno a una temperatura comprendida entre aproximadamente 600 y 900°C, después de lo cual el contenido de uranio y de plutonio se ha reducido, bajo las condi-
- 20.
- 25.
- 30.

ciones apropiadas, al estado de uranio-plutonio.

- En este punto, la mezcla pulverizada y reducida, equimolar, de uranio-plutonio, puede incorporarse mediante mezclado con una cantidad adicional de uranio o plutonio, según se requiera para ajustar la relación de uranio-plutonio a un valor deseado. Por ejemplo, para la manufactura de elementos de combustible de reactor de producción, la composición equimolar de uranio-plutonio puede mezclarse con una cantidad de uranio de calidad de reactor para ajustar la relación de uranio-plutonio a aproximadamente 4:1, es decir, 80% en peso de uranio a 20% en peso de plutonio, que es una relación óptima para ciertas aplicaciones de reactores de producción. Sin embargo, mediante el procedimiento presente puede prepararse substancialmente cualquier relación de uranio o plutonio, por lo menos de 5 a 95% en peso de mezclas combustibles de uranio a plutonio. Posteriormente, la mezcla queda lista para pastillarse de la manera convencional para la manufactura de cuerpos de cerámica. Alternativamente, la mezcla puede densificarse y subsecuentemente estamparse o compactarse vibratoriamente.
- 5.
- 10.
- 15.
- 20.

- El primer paso del procedimiento de la presente es la preparación de una solución de alimentación que contenga el uranio y el plutonio, mediante la mezcla de una solución de plutonio y una solución de uranio preparadas por disolución de nitrato de uranio cristalino en agua. Las sales preferidas para la solución son nitrato de uranio y nitrato de plutonio, con lo cual el uranio puede tener cualquier relación deseada de isótopo de uranio específicos en la mezcla de combustible. El solvente es pre-
- 25.
- 30.

5. feriblemente ácido nítrico que tenga una concentración comprendida entre aproximadamente 1 a 4 molar. La concentración de las sales de uranio y de plutonio puede variar considerablemente, pero una concentración combinada práctica está en la escala de aproximadamente 80 a 200 y óptimamente de aproximadamente 100 g/litro. El aspecto esencial de la presente invención es que el uranio y el plutonio están presentes en una relación de concentración molar aproximadamente igual a la unidad, a fin de -

10. asegurar la formación de un precipitado rápidamente asentable y fácilmente filtrable, según se mencionó anteriormente.

15. La solución de alimentación se agita continuamente y se mantiene a una temperatura que va de la temperatura ambiente a una temperatura moderada, y el uranio y el plutonio se coprecipitan a partir de la solución de alimentación añadiendo lentamente hidróxido de amonio hasta que alcance un pH de aproximadamente 9. El precipitado floculento se agita rápidamente y después se filtra.

20. El precipitado se recoge cuantitativamente sobre un papel filtro, frita de vidrio o de metal, y el procedimiento se logra generalmente en menos de la mitad del tiempo requerido para la filtración de coprecipitados de plutonio-uranio de relaciones de U-pu diferentes al valor que se acerca a la unidad, v.gr., una mezcla que contiene menos de -

25. 30% en peso de plutonio, 70% en peso de uranio ó 30% en peso de uranio y 70% en peso de plutonio. Se obtienen mejoras significativas dentro de la escala de 45% en peso: 55% en peso, predominando ya sea el plutonio, o el uranio.

30. Típicamente, la filtración de una carga de 5 litros requiere sólo aproximadamente 1 hora.

El precipitado se lava después con agua y acetona y se seca. El paso de secado puede realizarse en aire y se ha encontrado que requiere sólo aproximadamente la cuarta parte del tiempo normalmente requerido para el secado de precipitados convencionales.

5.

Los precipitados secados se reducen en una atmósfera de nitrógeno-helio a una temperatura de 600° - 900°C. para producir un material pulverizado fácilmente concrecionable. Si se desea una composición de menor --

10.

contenido de plutonio, la mezcla de uranio y de plutonio se diluye en el siguiente paso mediante mezclado con una cantidad de uranio finamente dividida, según sea necesario para obtener el contenido proporcional deseado de plutonio de la mezcla final. El uranio utilizado para una

15.

mezcla debe ser de calidad de cerámica y de la composición isotópica apropiada para lograr la composición isotópica final deseada a partir del punto de vista de la neutronics del combustible del reactor.

20.

El material secado o la mezcla diluida se revuelven y se muelen en un molino de bolas para mejorar la dispersión, y se tamizan a través de un tamiz de 325 mallas. Subsecuentemente, la mezcla se compacta bajo alta presión y se concreciona para fabricación de pastillas. Alternativamente, el material pulverizado puede también --

25.

procesarse por densificación seguida mediante carga en tubos y estampado. En los procedimientos de estampado y fabricación de pastillas son bien conocidos en el arte y se describen con detalle en USAEC Report GEAP 3486, Partes I y II Fast Oxide Breeder Project I, Fuel Fabrication, Jesse

30.

M. Cleveland y otros.

En el siguiente ejemplo ilustrativo se dan detalles adicionales del procedimiento de la presente invención.

EJEMPLO

- Para la fabricación de un material de elemento
5. de combustible que tiene la composición deseada de 13% de óxido de plutonio y 87% de óxido de uranio, se disolvió en ácido nítrico una solución de plutonio y uranio en concentración igual y equivalente a 500 g de óxido de plutonio y óxido de uranio combinados. El plutonio y el uranio se precipitaron después mediante la adición de hidróxido de amonio hasta que se estableció un pH de 9. Subsecuentemente, el precipitado se filtró, se lavó, y se secó.
 10. Después de secado, el material se redujo en hidrógeno a -750°C. El polvo reducido se mezcló después con 1420 g de óxido de uranio de calidad de cerámica y se resolvió mediante molienda en un molino de bolas, dando como resultado una cantidad total de 1920 g de una mezcla de 13% en peso de óxido de plutonio y 87% en peso de óxido de uranio. La carga se procesó ulteriormente y se transformó a pastillas.
 15. La operación total requiere un periodo de aproximadamente 48 horas en total. Así, la mezcla de combustible se produjo a una velocidad de 960 g por día, con base en un procedimiento continuo. Si el material de combustible fuera procesado mediante el procedimiento convencional de un paso, con base en las mismas soluciones de alimentación y equipos idénticos, el requerimiento de tiempo sería por lo menos de dos días para los pasos de precipitación, filtración, lavado y secado, y además otro periodo de 24 horas para reducción y molienda en un molino de bolas.
 20. Así para producir una cantidad igual de la
 - 25.
 - 30.

mezcla de 13% de óxido de plutonio y 87% de óxido de uranio en equipos que tengan la misma capacidad, es necesario procesar cuatro cargas, lo que requiere un periodo total de por lo menos 10 días. Por lo tanto, la velocidad de producción es únicamente de 192 g por día.

5.

Se observa fácilmente que la producción de cualquier equipo puede incrementarse por un factor de 5 si se emplea el procedimiento de coprecipitación y mezclado presente.

10.

Aunque el ejemplo y descripción anteriores se refieren específicamente a la fabricación de elementos de combustible para el reactor de producción rápida, debe hacerse hincapié en que el procedimiento de la presente es aplicable con la misma ventaja a la manufactura de mezclas

15.

de uranio-plutonio en general. En particular, el procedimiento de la presente puede emplearse en la precipitación de polvos de óxidos mixtos para carga en incrementos con óxido de uranio de alta densidad, mediante compactación vibratoria; para la preparación de polvos mixtos de plutonio-uranio para revolverse con uranio de calidad de cerámica en la manufactura de combustible de reactor térmicos o pastillados rápidos, y en la preparación de materiales

20.

de alimentación de óxidos mixtos para densificación. Una característica que tiene la mezcla de óxidos así obtenida,

25.

es poderse mezclar, en todas proporciones con óxidos de uranio, a fin de obtener la composición adecuada para determinados elementos combustibles. Consecuentemente, se pretende limitar la invención sólo por el alcance de las cláusulas anexas.

30.

NOTA

La Patente de Invención, que se solicita para España, por veinte años, de acuerdo con la vigente Legislación, deberá recaer sobre: "PROCEDIMIENTO DE PREPARACION DE UN PRECIPITADO FILTRABLE DE PLUTONIO Y URANIO", con Prioridad de la demanda de Patente, en U.S.A. Serial nº. 479.019, de fecha 11 de agosto de 1963, según las características esenciales de las siguientes:

REIVINDICACIONES

10. 1ª.- Procedimiento de preparación de un precipitado filtrable de plutonio y uranio, en el cual una solución acídica que contiene plutonio y uranio en relación molar 1:1, se convierte en alcalina para precipitar una mezcla de óxido hidratado de plutonio y uranio, la cual es más fácilmente filtrable y secable que los precipitados obtenidos cuando se parte de soluciones cuyas relaciones de uranio-plutonio son diferentes a la indicada anteriormente.

20. 2ª.- Procedimiento de preparación de un precipitado filtrable de plutonio y uranio, según la reivindicación 1ª, caracterizado porque el óxido de uranio de grado reactor es mezclado con dicho precipitado uranio-plutonio para ajustar la relación plutonio-uranio de la composición material combustible a un valor deseado y adecuado para el uso en elementos combustibles de un reactor nuclear.

25. 3ª.- "PROCEDIMIENTO DE PREPARACION DE UN PRECIPITADO FILTRABLE DE PLUTONIO Y URANIO".

Según queda sustancialmente descrito en la prg

30.

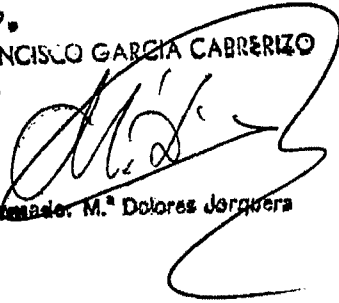
***/**

sesta Memoria Descriptiva, que consta de doce hojas, es-
critas a máquina por una sola cara.

Madrid, a 23 de Julio de 1966.

UNITED STATES ATOMIC ENERGY
COMMISSION.

P.P.
FRANCISCO GARCIA CABRERIZO
P. P.



Firmado: M.ª Dolores Jorquera