

338574

MEMORIA DESCRIPTIVA

correspondiente a la solicitud de concesión de un

PATENTE DE INVENCION

SOLICITANTE: THE BABCOCK & WILCOX COMPANY

RESIDENCIA: 161 East 42nd Street, NEW YORK 17, N.Y.
ESTADOS UNIDOS.-

ENUNCIADO: "UN PROCEDIMIENTO PARA LA PREPARACION
DE UN MATERIAL DE MEZCLA DE OXIDOS PARA
COMBUSTIBLES NUCLEARES".

Prioridad: Patentes estadounidenses n.º 539.278 del 1-4-66 y
539.279 " " " " "

MS.-

338574

1 Este invento se refiere a procedimientos de producción
de materiales cerámicos de mezcla de óxidos para combustibles
nucleares, cuyos procedimientos están caracterizados por la
operación de poner en contacto un gel de un material nuclear
fértil con un material fisionable en fase líquida, para im-
pregnar directamente el gel con el material fisionable.

Actualmente se conoce un procedimiento, denominado "pro-
ceso sol-gel", para la producción de partículas refractarias
de mezcla de óxidos de torio (toria) y uranio (urania), ade-
cuadas para uso en la fabricación de elementos combustibles
nucleares por compactación vibratoria o compresión. En este
procedimiento, el nitrato de torio cristalino se desnitra en
atmósfera de vapor para producir polvo de toria finamente di-
vidido que, cuando se mezcla con ácido nítrico diluido, for-
ma un sol acuoso de toria (coloide). Se añade al sol el mate-
rial fisionable, en forma de nitrato de uranio, y, en condi-
ciones que se mantienen adecuadamente constantes, el uranio
se asocia con los productos de toria coloidales. Para asegu-
rar la homogeneidad del sol así preparado, la mezcla se agi-
ta fuertemente y se calienta a unos 80°C durante una hora o
más. A continuación el sol terminado se vuelca en bandejas
evaporadoras y se evapora lentamente hasta sequedad, siendo
el residuo seco un gel de toria constituido por partículas
de formas y tamaños distribuidos al azar o "shards". El ta-
maño de estas partículas oscila entre un polvo extremadamen-
te fino hasta gránulos de 1/4" (6,3 mm) aproximadamente. La
operación siguiente en el proceso es la conversión del gel
seco en un óxido denso. Esto se lleva a cabo calcinando el
gel a unos 1150°C durante unas cuatro horas, en atmósfera ga-
seosa de argón-hidrógeno. El producto resultante tiene una

338574

1 densidad extremadamente alta, por ejemplo 99+ % del valor teó-
rico, que le hace particularmente conveniente para el uso en
elementos combustibles. Después de clasificar las partículas
5 (la clasificación puede hacerse antes o después de la calci-
nación) para conseguir una distribución óptima de tamaños de
partícula, la siguiente operación en el proceso es la compac-
tación vibratoria o compresión de las partículas selecciona-
das en la configuración y forma deseada, para el elemento com-
bustible.

10 Este procedimiento se ha mejorado después diseñando un
método para producir partículas de gel de forma esferoidal,
cuyo método mejorado es denominado corrientemente "proceso
sol-gel modificado". El procedimiento modificado es similar
al proceso original hasta la adición del nitrato de uranilo
15 al sol de toria y agitación de la mezcla para asegurar la ho-
mogeneidad, inclusive. En lugar de secarlo en la forma habi-
tual, el sol completamente preparado se convierte en esferas
de gel inyectando una corriente de un tamaño previamente de-
terminado del sol fluído en un disolvente orgánico deshidra-
20 tante. Las gotitas de sol experimentan una caída libre a tra-
vés del disolvente orgánico y, disponiendo adecuadamente el
equipo para conseguir un tiempo suficiente de retención del
sol en el disolvente, las gotitas de sol salen en forma de
esferas de gel con poco tendencia a adherirse entre sí. Por
25 lo tanto, la deshidratación del sol se produce por extracción
del agua del sol por el disolvente orgánico en lugar de por
evaporación. A continuación se calcinan las esferas de gel
en la misma forma que los "shards" del proceso original. Ma-
nifiestamente las partículas esferoidales son más fácilmente
30 adaptables a una clasificación de tamaños y a una compacta-

338574

1 ción más precisas que los "shards" de formas variadas del
"proceso sol-gel" original.

5
10
15
20
25
30
Cualquiera de las formas del "proceso sol-gel" produce partículas de gran densidad, mezcladas más uniformemente que por cualquiera de las otras técnicas conocidas antes de ahora empleando una temperatura de calcinación tan baja (las técnicas anteriores requerían unas temperaturas de calcinación del orden de 1800°C). No obstante, ambas formas del proceso tienen inconvenientes comunes que hace que la realización del procedimiento sea costosa y tediosa. En cualquiera de las dos formas del procedimiento, el material fisionable, extraordinariamente caro, se hace actuar en una etapa temprana, esto es, en la etapa de sol. Como durante la preparación y evaporación del sol se encuentran presentes el material fisionable (nitrato de uranilo) y un moderador (agua), es un requisito absoluto el control de criticidad y limita no solamente el tamaño y la configuración del equipo del proceso, sino también el tamaño de las tandas que pueden producirse. Además, la clasificación del tamaño de partículas en una distribución apropiada, adecuada para la compactación, debe realizarse necesariamente después de haber introducido en el proceso el material fisionable. De ello se deduce que una porción de las partículas producidas serán eliminadas en la clasificación de tamaños y deben ser reprocesadas a efectos de la eliminación de residuos y/o recuperación del valioso material fisionable con considerables gastos anejos.

Por consiguiente, un objeto del presente invento es proporcionar un método mejorado, al que nos referiremos en adelante como "proceso de adición-gel", para la producción de combustibles nucleares cerámicos de mezcla de óxidos, siendo

338574

1 adaptable la mejora al "proceso sol-gel" y al "proceso sol-gel modificado" antes descritos. Más específicamente, es un objeto del presente invento conseguir economías importantes en la eliminación de residuos y utilización del material fisionable relativamente costoso y reducir considerablemente los problemas de criticidad que acompañan a estos procesos.

Estos y otros objetos se consiguen de acuerdo con el método de la presente invención para la producción de materia
les cerámicos de óxidos mixtos para combustibles nucleares,
10 cuyo método comprende la etapa de poner en contacto un gel de un material fértil inorgánico con un material fisionable en fase líquida para impregnar directamente el gel con el material fisionable. La invención también abarca las etapas precedentes de preparación de un coloide de un material fértil inorgánico y el secado del coloide para formar el gel. La operación de secado puede llevarse a cabo en cualquiera de las formas antes descritas para producir "shards" o partículas esferoidales del material fértil. Más aún, la invención incluye la etapa siguiente de calcinar el gel impregnado de material fisionable para de esta forma aumentar la densidad del gel para hacerlo adecuado para la compactación en forma de elemento combustible. El proceso puede ser utilizado para producir cualquier combustible nuclear de mezcla de óxidos en el que el material fértil es toria o urania y el material fisionable es urania o plutonia (óxido de plutonio).

Al poner en contacto las partículas de gel con la solución que contiene el material fisionable en el "proceso de adición-gel", existen tres variables que controlan la absorción o concentración de material fisionable, a saber, tamaño de partícula, composición de la solución que contiene el ma-

338574

1 terial fisionable, comprendidas tanto la concentración de ma-
terial fisionable como la concentración de otros componentes
añadidos para controlar factores como el pH, y el tiempo de
contacto. Necesariamente deben ser controlados cuidadosamente
5 los tres factores si los resultados del proceso han de ser
reproducibles. Como se ha discutido antes, se prefieren las
esferas a las partículas de tamaños y formas al azar ("shards")
puesto que es probable que se consiga una impregnación más
uniforme de las esferas. Además, clasificando por tamaños las
10 esferas de gel antes de ponerlas en contacto con la solución
que contiene el material fisionable, puede seleccionarse un
espectro exactamente definido de tamaños de partículas para
la impregnación. De esta forma es controlable el tamaño de
partícula. La segunda variable, es decir, la composición del
15 material fisionable en la solución que entra en contacto tam-
bién se puede determinar y puede ser medida y controlada por
métodos conocidos.

Las experiencias iniciales con el "proceso de absor-
ción-gel" indican que la velocidad de absorción del material
20 fisionable en las partículas de gel es de hecho bastante rá-
pida, requiriendo por tanto un control preciso del tiempo to-
tal de exposición o contacto. Para controlar adecuadamente es-
te periodo de tiempo y para proporcionar un proceso y un pro-
ducto verdaderamente normalizados, es necesario asegurar un
25 contacto preciso de las partículas de gel con la solución que
contiene el material fisionable, una interrupción del contac-
to o separación precisa entre el gel y la solución y una for-
ma de exposición durante el intervalo de tiempo del contacto
previamente determinada.

30 Hasta el presente, las experiencias se han dirigido a

338574

1 poner en contacto las partículas de gel con la solución que
contiene el material fisionable en un equipo a escala de labo
ratorio, es decir, colocando las esferas de gel en un vaso de
precipitados con la solución que contiene el material fisio-
5 nable y agitando la solución o percolando la solución que con-
tiene el material fisionable por una columna rellena con las
partículas de gel. En las experiencias en vaso de precipita-
dos, la principal dificultad está en conseguir una separación
precisa entre las partículas de gel y la solución que contie-
10 ne el material fisionable. Al mismo tiempo, como la solución
que contiene el material fisionable es normalmente una solu-
ción acuosa de nitrato de uranilo por ejemplo, las partículas
de gel tienen tendencia a extraer agua de la solución diluida
y regresar a la forma coloidal en la que tienen tendencia a
15 adherirse entre sí. Además, como consecuencia de la regresión
de las partículas de gel a la forma coloidal, tienden a for-
marse compuestos del material fértil en la solución que con-
tiene el material fisionable, siendo necesario realizar el
gasto de sustituir y posiblemente purificar la solución. Las
20 experiencias de contacto en columna de relleno están también
llenas de problemas de adhesión de las partículas; además, a
medida que la solución que contiene el material fisionable se
mueve hacia abajo a través de la columna rellena, la solución
experimenta un considerable cambio de composición, tanto en
25 contenido en material fisionable como en acidez, de forma que
las partículas de gel superiores están expuestas a, y absorben,
cantidades de material fisionable distintas a las de las par-
tículas inferiores, lo que da lugar a faltas de uniformidad
en la concentración de material fisionable en el producto fi-
30 nal.

338574

1 Por consiguiente, es un objeto más del presente inven-
to proporcionar un procedimiento mejorado de poner en contac-
to las partículas de gel de material fértil y la solución que
contiene el material fisiónable en el "proceso de adición-gel".
5 Este procedimiento proporciona una puesta en contacto y una
separación precisa, de las partículas de gel y la solución que
contiene el material fisiónable, así como una forma de contac-
to previsible, controlable y uniforme, de manera que pueden
10 producirse partículas de gel uniformemente cargadas.

15 El procedimiento preferido para producir un material
cerámico de mezcla de óxidos para combustibles nucleares por
el método aquí descrito comienza con la preparación de par-
tículas de gel esféricas de material fértil, secando adecua-
damente un coloide de dicho material fértil. Para impregnar
directamente las partículas de gel con el material fisiónable,
se hace pasar a través de la solución que contiene el material
fisiónable un espectro o distribución previamente selecciona-
dos de tamaños de partículas. Las partículas así impregnadas
se pasan después directamente de la solución que contiene el
20 material fisiónable a un fluido de separación para separar de
forma brusca y controlada las esferas de gel del contacto con
el material fisiónable. A continuación se aumenta la densidad
de las partículas por calcinación para producir el material
cerámico denso de óxidos mixtos en forma útil para la produc-
ción de elementos combustibles nucleares por compactación.
25

30 El paso de las partículas de gel a través de la solu-
ción que contiene el material fisiónable y por la solución se-
paradora se realiza de preferencia sin mezclar las partículas
de gel y preferiblemente se efectúa por caída libre de las es-
feras de gel hacia abajo, a través de una columna líquida de

338574

1 etapas múltiples, que contiene en su porción superior la solu-
ción que contiene el material fisionable y en su porción infe-
rior el fluido separador, siendo los dos fluidos inmiscibles
entre sí. El fluido separador puede ser un disolvente deshi-
5 dratante que absorbe de las partículas impregnadas de material
fisionable el agua que hayan podido recoger durante la impreg-
nación de las partículas con una solución acuosa que contiene
el material fisionable. Puede utilizarse un líquido interme-
dio, que separa la solución que contiene el material fisiona-
ble y el disolvente deshidratante e inmiscible con ambos, pa-
10 ra reducir al mínimo la extracción de agua de la solución acu-
sa que contiene el material fisionable por el disolvente deshi-
dratante. Otra solución consiste en hacer mínima la superfi-
cie de la interfase entre la solución que contiene el material
15 fisionable y el disolvente deshidratante reduciendo la sec-
ción transversal de la columna de fluido en la interfase de
la solución que contiene el material fisionable y el disol-
vente.

El procedimiento aquí descrito es adaptable al uso en
20 la producción de diversos materiales cerámicos de mezcla de
óxidos para combustibles nucleares, tales como toria/urania,
urania/urania y urania/plutonia.

Para una mejor comprensión del invento, su alcance,
sus ventajas de operación y de los objetos específicos conse-
25 guidos mediante su uso, se hace referencia a la siguiente des-
cripción.

Este método inventivo y el procedimiento para el mis-
mo se describirán a continuación refiriéndose a la producción
de un material particular de mezcla de óxidos para combusti-
30 bles nucleares, a saber, toria/urania; no obstante, no es in-

338574

1 tención del solicitante que la invención se limite a este combustible nuclear particular.

El "proceso de adición-gel" del solicitante para la producción de combustibles nucleares es una variación del conocido "proceso sol-gel" y del "proceso sol-gel modificado" y análogamente comienza con la preparación de un sol o coloide de toria. De preferencia, el material de partida es nitrato de torio cristalino, que se somete a desnitración en atmósfera de vapor a temperaturas próximas a 500°C para producir con ello polvo de toria finamente dividido. A continuación, el polvo se mezcla con agua y algún ácido adecuado, preferiblemente ácido nítrico, para formar un sol de toria, es decir un coloide acuoso. Hasta este momento el procedimiento es similar al del conocido "proceso sol-gel". En el proceso mejorado, sin embargo, el material fisionable no se añade al coloide de toria como tal; sino que el coloide se seca para producir la forma gel de toria. Este proceso de secado puede llevarse a cabo mediante un dispositivo convencional de secado por evaporación para producir "shards" de gel configurado al azar o, como alternativa y de preferencia, el secado puede realizarse haciendo pasar las gotitas de sol a través de un disolvente secante o deshidratante para producir con ello esferas de gel secas. Debe observarse que el tamaño de estas esferas puede ser controlado, por lo menos hasta cierto punto, calibrando adecuadamente una boquilla de inyección a través de la cual se introduce en el disolvente secante un chorro del sol de toria. Después de que las esferas de gel se han secado lo suficiente para que no tengan tendencia a adherirse entre sí y por lo tanto puedan ser manipuladas fácilmente, se clasifican en diversos grupos de tamaños de partícula y se seleccionan

338574

1 Las cantidades adecuadas de esferas de cada grupo de tamaños para producir una distribución para su posterior procesado, estando determinada la selección de tamaños por las condiciones particulares de compactación densa dictadas por los conocidos procedimientos de compactación de elementos combustibles. Las partículas o esferas no seleccionadas se separan del proceso en este punto y pueden ser almacenadas para subsiguiente utilización o eliminación.

10 Debe observarse en este punto que el material requerido para preparar las partículas de gel de toria es relativamente barato comparado con el material fisiónable y como las partículas no seleccionadas de gel de toria pueden requerir cierto reprocesado para hacerlas aceptables para su uso, la eliminación de tal material no resultará particularmente onerosa en lo que concierne al precio de costo de preparación del combustible. Además, la recuperación y el reciclado del material fértil es un asunto sencillo y barato comparado con la recuperación y el reciclado del material fisiónable. Hasta este punto del proceso no se ha introducido material fisiónable. Por consiguiente, el proceso puede llevarse a cabo hasta la etapa de gel y a través de la etapa de clasificación de tamaños sin ningún problema de criticidad del material que se está preparando, reduciendo con ello considerablemente la laboriosidad del procedimiento y los gastos de diseño del equipo para la manipulación del material. Además, como se elimina el problema de la criticidad, no existe limitación sobre el tamaño de la tanda de partículas de gel que puede ser producida e incluso es concebible que el proceso pueda llevarse a cabo en forma continua hasta este punto.

25
30 Una vez seleccionadas las partículas particulares de

338574

1 gel de toria que se van a tratar, la etapa siguiente y más im-
portante es la puesta en contacto de las partículas de gel con
un material fisionable en fase líquida, para impregnar direc-
tamente las partículas de gel con el material fisionable. De
preferencia, el material fisionable se encuentra en solución
en un líquido e, incluso más específicamente, se prefiere una
solución acuosa de nitrato de uranilo como solución conteniendo
el material fisionable. Respecto a la operación de poner
en contacto el gel con el material fisionable, debe observarse
10 se que este último se encuentra en forma hexavalente en el mo-
mento en que se pone en contacto con el gel. El contacto puede
realizarse en un equipo convencional utilizando procedimientos
corrientes, por ejemplo puede hacerse pasar la solución de uranio
por una columna estacionaria de gel de toria
15 o puede colocarse la solución de uranio en una bandeja o cual-
quier vasija que contenga el gel de toria y agitar la mezcla;
no obstante, a continuación se discute un procedimiento especial
preferido. Manteniendo la solución que contiene el material
fisionable a una concentración previamente determinada
20 y manteniendo esta solución en contacto con las partículas de
gel de toria durante un periodo de tiempo previamente deter-
minado, puede controlarse el grado de impregnación o infusión
del material fisionable en las partículas de toria. En este
momento se encuentran presentes en el proceso el material fi-
sionable y un moderador, de forma que deben emplearse proce-
25 dimientos de trabajo y normas de diseño de criticidad. Des-
pués de haber separado las partículas de gel impregnadas del
contacto con la solución que contiene el material fisionable,
se calcinan las partículas por cocción a una temperatura su-
30 perior a 1100°C durante un periodo prolongado de tiempo, en

338574

1 atmósfera de argon-hidrógeno gaseosos, para aumentar con ello la densidad del producto resultante. Debe observarse que durante el proceso de calcinación, el uranio (estado hexavalente) se convierte en óxido tetravalente (UO_2). Después de la cocción, el material combustible de óxidos mixtos más denso puede compactarse en la forma y configuración deseadas de elemento combustible por cualquiera de los procedimientos conocidos, tales como compactación vibratoria o compresión.

10 Las características físicas del material producido en el método mejorado descrito son similares a las características del material producido en el "proceso sol-gel" original o modificado. Las partículas ("shards" o esferas) producidas por calcinación de las partículas de gel tienen una densidad de 99+ % de la teórica, son extraordinariamente duras y presentan unas características de resistencia a desmenuzarse extremadamente elevadas. Utilizando una distribución de tamaños de partícula previamente calculada y los métodos conocidos de compactación de las partículas en las formas deseadas de elementos combustibles, el material puede compactarse hasta una densidad aparente ligeramente superior al 85 % de la teórica en el elemento combustible final producido.

15 Debe observarse que el proceso antes descrito es aplicable cuando las partículas producidas son "shards" o esferas; no obstante, por razones de reproducibilidad y uniformidad, se prefieren en general las partículas esferoidales.

25 Debe tomarse nota especialmente en el proceso descrito del momento en que entra en juego el valioso material fisiónable. En el proceso mejorado, este material no se adiciona hasta que no se ha seleccionado la distribución de tamaños adecuada de partículas de gel entre la tanda total producida

30

338574

1 de partículas de gel. Puesto que, a excepción de una pérdida despreciable debida a la rotura de partículas, las partículas seleccionadas se convierten en el producto final, prácticamente no se rechaza ninguna partícula a la que se haya adicionado el material fisionable. Por consiguiente, tampoco existe necesidad de eliminar residuos y/o reprocesar el material fisionable rechazado y con ello se eliminan los gastos de equipo y tiempo para realizar estas tediosas operaciones.

10 En el "proceso sol-gel" conocido, en el que el material fisionable se añade al sol o forma coloidal del material fértil, la concentración máxima de material fisionable en el producto calcinado terminado es alrededor de 6 átomos por ciento (material fisionable/material fisionable y material fértil).

15 En el "proceso de adición-gel" aquí descrito, al parecer no prevalece este límite superior. Por ejemplo, en una experiencia de laboratorio, se produjo un material combustible de toria/uranio con una concentración de 15 átomos por ciento de uranio; además, no existe evidencia de que ni siquiera esta cifra represente el límite superior de la concentración de material fisionable. El "proceso de adición-gel" aquí descrito
20 puede ser utilizado para producir combustibles con una concentración de material fisionable mayor que las que pueden obtenerse por el "proceso sol-gel" conocido. La posibilidad de lograr mayores concentraciones de material fisionable convertir
25 al método aquí descrito en potencialmente útil para la producción de combustibles nucleares para los llamados reactores reproductores rápidos.

30 La etapa de poner en contacto las esferas de gel de toria con la solución que contiene el material fisionable es la más crucial y es a la que se refiere directamente el proce

338574

1 imiento preferido. Además de utilizar tamaños de partículas
previamente seleccionados y concentraciones de material fisio
noble controladas y previamente seleccionadas, es necesario
que el intervalo de tiempo de la etapa de contacto, es decir
5 el periodo de tiempo que transcurre entre la puesta en contac
to y la separación de las esferas de gel y la solución que
contiene el material fisionable, sea exactamente controlado
para obtener la absorción específica deseada de material fisio
noble por las partículas de gel en condiciones reproducibles.
10 De acuerdo con el procedimiento preferido, el contacto se con
trola dejando caer libremente las esferas de gel a través de
una columna fluída de múltiples pisos, en la que el fluído su
perior es una solución que contiene material fisionable, tal
como nitrato de uranilo y el fluído inmediatamente subyacente
15 es un líquido separador no miscible con el nitrato de uranilo.
Conociendo el tamaño y el peso de una partícula esférica da
da de gel y la densidad del nitrato de uranilo, puede calcu
larse, aplicando la ley de Stokes, el tiempo de caída libre
de la partícula a través de una altura dada de nitrato de ura
20 nilo. Con esta información, puede establecerse previamente la
altura del nitrato de uranilo en la columna fluída para lo
grar el tiempo de contacto deseado y, por lo tanto, la absor
ción total de uranio. Cuando la partícula pasa por la interfa
se entre el nitrato de uranilo y el líquido separador, se des
25 prende bruscamente del contacto con el nitrato de uranilo,
proporcionando de esta forma una terminación precisa y prede
cible del periodo de contacto. Mediante este dispositivo, la
operación de puesta en contacto se hace controlable y muy re
producible.

30 Como la partícula que se va a impregnar con el mate-

338574

1 rial fisionable está en forma de gel, cuando la solución que
contiene el material fisionable, por ejemplo nitrato de ura-
nilo, es una solución acuosa, al descender a través del ni-
trato de uranilo, la partícula de gel puede absorber agua y
5 con ello tener tendencia a regresar a la forma coloidal. Por
lo tanto, cuando la esfera de gel impregnada de uranio sale
del nitrato de uranilo, puede tener tendencia a adherirse a
otras partículas o al equipo en el que se está realizando el
proceso. Por lo tanto es aconsejable que las partículas de
10 gel atraviesen la solución acuosa de nitrato de uranilo y,
por lo menos, el fluido separador, sin que las partículas se
mezclen entre sí de forma importante. Además es muy convenien-
te disponer un disolvente deshidratante en la columna fluida
debajo del nitrato de uranilo, cuyo disolvente puede servir
15 adicionalmente como fluido separador. Por ejemplo, los disol-
ventes líquidos tetracloruro de carbono o tricloroetileno
(ambos conteniendo acetona) serían fluidos deshidratantes ade-
cuados, puesto que no son miscibles con el nitrato de urani-
lo y pueden estar constituidos de forma que tengan una mayor
20 densidad que éste. Así pues, haciendo descender individual-
mente las partículas de gel de toria a través de una columna
de dos pisos que contenga nitrato de uranilo y una masa sub-
yacente de disolvente deshidratante, las partículas de gel
se recogerían en la base de la columna sin que aparecieran
25 problemas de adhesión entre partículas cuando son recogidas.

En la interfase que separa el nitrato de uranilo acuo-
so del disolvente deshidratante, existe la tendencia por par-
te del disolvente a extraer agua de la solución de nitrato
de uranilo. Por consiguiente, para reducir al mínimo la ex-
30 tensión de la extracción de agua entre los fluidos de la co-

338574

1 -lumna, las paredes que definen la columna presentan de preferencia un estrechamiento en la interfase para reducir al mínimo la superficie de dicha interfase.

Aunque en la actualidad no se conoce ningún líquido que tenga las características exactamente requeridas, también es concebible que, para evitar que el disolvente deshidratante extraiga agua de la solución acuosa que contiene el material fisionable, se utilizara un líquido intermedio con una densidad menor que la densidad de la solución que contiene el material fisionable y no reactivo con la misma y mayor que la densidad del disolvente deshidratante y no reactivo con el mismo e inmisible con ambos.

15 Después de recoger las partículas de gel impregnadas y secas, se calcinan para producir un material combustible nuclear, cuya densidad se ha aumentado mucho, adecuado para la compactación en las configuraciones de elementos combustibles deseadas, por métodos conocidos en la técnica.

20 El invento ha sido descrito anteriormente por referencia a un método y procedimiento para la producción de combustible nuclear de toria/urania; no obstante, también comprende la producción de otros materiales de mezclas de óxidos para combustibles nucleares, por ejemplo urania/urania y urania/plutonia.

25 En el material para combustible nuclear de urania/urania, el material fértil es uranio U-238, mientras que el material fisionable es uranio U-233 o U-235, preferiblemente este último. El proceso para la preparación del material de urania/urania para combustible comienza con una solución acuosa de nitrato de uranilo en la que el uranio se encuentra presente en estado hexavalente. La primera etapa del proceso

30

338574

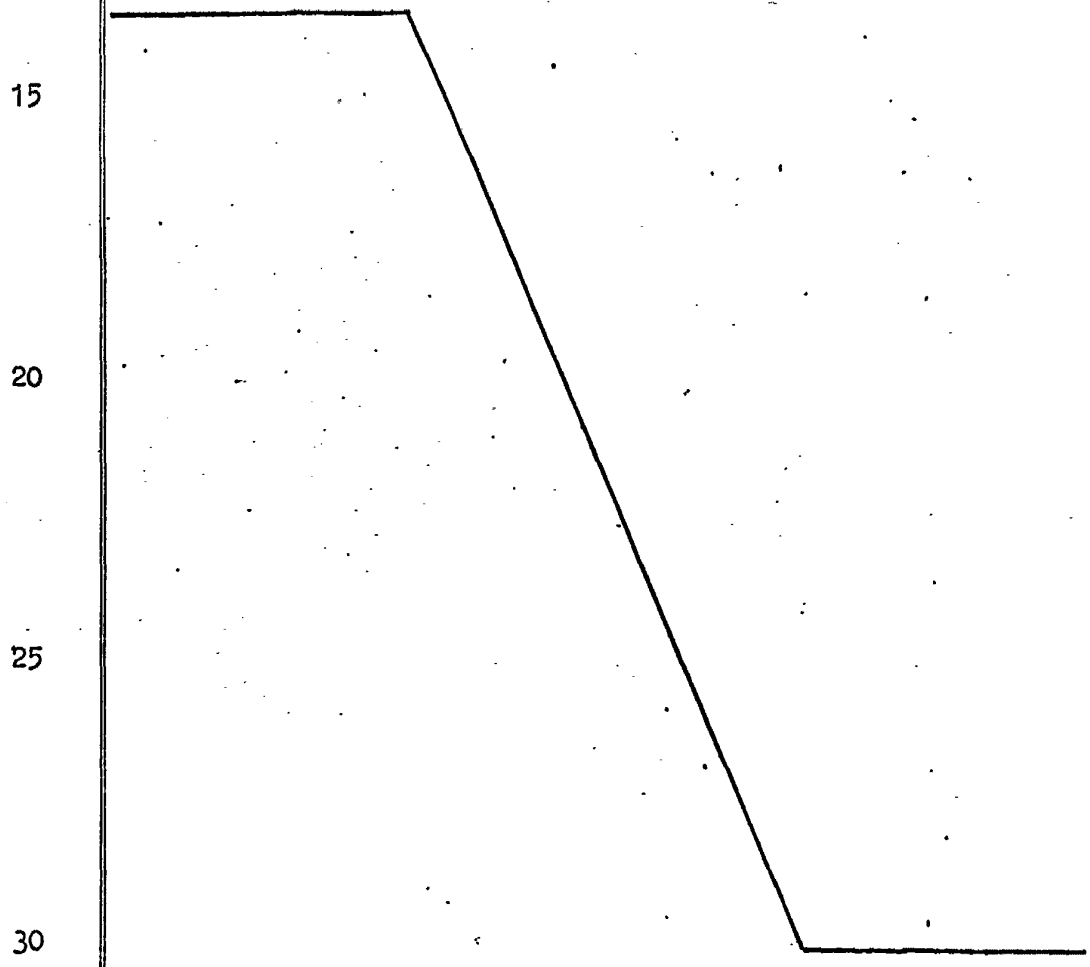
1 es la reducción del uranio al estado tetravalente por un pro-
cedimiento conocido, teniendo lugar la reducción sobre un ca-
talizador de platino en un autoclave presurizado con hidróge-
5 no. El nitrato de uranio tetravalente resultante es química-
mente inestable y el uranio debe ser separado del nitrato o
volvería a ser oxidado rápidamente a la forma hexavalente.
La necesaria separación se realiza precipitando el uranio con
solución acuosa de amoniaco para producir $U(OH)_4$, material
que se separa de la solución por filtración y se lava. La
10 torta del filtro lavada se convierte después en un coloide o
sol hirviendo en ácido nítrico diluido. El sol así obtenido
se seca mediante un dispositivo convencional de calefacción
lenta para producir "shards" o haciéndolo pasar a través de
un disolvente secante para producir partículas esferoidales
15 como se ha descrito más arriba. Las partículas así produci-
das se clasifican por tamaños y se selecciona un grupo de
distribuciones de partículas que presentan la clasificación
por tamaños deseada. Las partículas de gel seleccionadas, que
contienen uranio U-238 tetravalente, se ponen en contacto a
20 continuación con el material fisiónable en forma hexavalente
(preferiblemente U-235) para con ello infundir directamente
las partículas de gel con el material fisiónable. La etapa
de puesta en contacto se realiza preferiblemente encontrando
se el material fisiónable en forma de nitrato de uranio U-
25 235. Las partículas de gel así impregnadas se calcinan des-
pués para formar el material refractario denso antes descri-
to, adecuado para la compactación en configuraciones de ele-
mentos combustibles.

30 En la producción de material de urania/plutonia para
combustibles nucleares, las esferas de gel de urania U-238

338574

1 se preparan en la forma descrita antes en relación con la pro
ducción de material combustible de urania/urania. El sol de
5 urania se seca para formar "shards" o esferas de gel y se lle
van a cabo la clasificación de tamaños y la selección neces-
arias. Las esferas de gel seleccionadas se ponen en contacto
a continuación con plutonio en forma hexavalente, preferible-
mente como nitrato de plutonio, para impregnar directamente
10 el gel con el material fisionable. Las partículas de gel así
impregnadas se cuecen después como operación preparatoria de
la compactación, como se ha descrito anteriormente.

En resumen, la Patente de Invención que se solicita
recaerá sobre las siguientes:



338574

REIVINDICACIONES

1
1
2
3
4
5
6
7
8
9
10
11
12
13
14
15
16
17
18
19
20
21
22
23
24
25
26
27
28
29
30
31
32
33
34
35
36
37
38
39
40
41
42
43
44
45
46
47
48
49
50
51
52
53
54
55
56
57
58
59
60
61
62
63
64
65
66
67
68
69
70
71
72
73
74
75
76
77
78
79
80
81
82
83
84
85
86
87
88
89
90
91
92
93
94
95
96
97
98
99
100
101
102
103
104
105
106
107
108
109
110
111
112
113
114
115
116
117
118
119
120
121
122
123
124
125
126
127
128
129
130
131
132
133
134
135
136
137
138
139
140
141
142
143
144
145
146
147
148
149
150
151
152
153
154
155
156
157
158
159
160
161
162
163
164
165
166
167
168
169
170
171
172
173
174
175
176
177
178
179
180
181
182
183
184
185
186
187
188
189
190
191
192
193
194
195
196
197
198
199
200
201
202
203
204
205
206
207
208
209
210
211
212
213
214
215
216
217
218
219
220
221
222
223
224
225
226
227
228
229
230
231
232
233
234
235
236
237
238
239
240
241
242
243
244
245
246
247
248
249
250
251
252
253
254
255
256
257
258
259
260
261
262
263
264
265
266
267
268
269
270
271
272
273
274
275
276
277
278
279
280
281
282
283
284
285
286
287
288
289
290
291
292
293
294
295
296
297
298
299
300
301
302
303
304
305
306
307
308
309
310
311
312
313
314
315
316
317
318
319
320
321
322
323
324
325
326
327
328
329
330
331
332
333
334
335
336
337
338
339
340
341
342
343
344
345
346
347
348
349
350
351
352
353
354
355
356
357
358
359
360
361
362
363
364
365
366
367
368
369
370
371
372
373
374
375
376
377
378
379
380
381
382
383
384
385
386
387
388
389
390
391
392
393
394
395
396
397
398
399
400
401
402
403
404
405
406
407
408
409
410
411
412
413
414
415
416
417
418
419
420
421
422
423
424
425
426
427
428
429
430
431
432
433
434
435
436
437
438
439
440
441
442
443
444
445
446
447
448
449
450
451
452
453
454
455
456
457
458
459
460
461
462
463
464
465
466
467
468
469
470
471
472
473
474
475
476
477
478
479
480
481
482
483
484
485
486
487
488
489
490
491
492
493
494
495
496
497
498
499
500
501
502
503
504
505
506
507
508
509
510
511
512
513
514
515
516
517
518
519
520
521
522
523
524
525
526
527
528
529
530
531
532
533
534
535
536
537
538
539
540
541
542
543
544
545
546
547
548
549
550
551
552
553
554
555
556
557
558
559
560
561
562
563
564
565
566
567
568
569
570
571
572
573
574
575
576
577
578
579
580
581
582
583
584
585
586
587
588
589
590
591
592
593
594
595
596
597
598
599
600
601
602
603
604
605
606
607
608
609
610
611
612
613
614
615
616
617
618
619
620
621
622
623
624
625
626
627
628
629
630
631
632
633
634
635
636
637
638
639
640
641
642
643
644
645
646
647
648
649
650
651
652
653
654
655
656
657
658
659
660
661
662
663
664
665
666
667
668
669
670
671
672
673
674
675
676
677
678
679
680
681
682
683
684
685
686
687
688
689
690
691
692
693
694
695
696
697
698
699
700
701
702
703
704
705
706
707
708
709
710
711
712
713
714
715
716
717
718
719
720
721
722
723
724
725
726
727
728
729
730
731
732
733
734
735
736
737
738
739
740
741
742
743
744
745
746
747
748
749
750
751
752
753
754
755
756
757
758
759
760
761
762
763
764
765
766
767
768
769
770
771
772
773
774
775
776
777
778
779
780
781
782
783
784
785
786
787
788
789
790
791
792
793
794
795
796
797
798
799
800
801
802
803
804
805
806
807
808
809
810
811
812
813
814
815
816
817
818
819
820
821
822
823
824
825
826
827
828
829
830
831
832
833
834
835
836
837
838
839
840
841
842
843
844
845
846
847
848
849
850
851
852
853
854
855
856
857
858
859
860
861
862
863
864
865
866
867
868
869
870
871
872
873
874
875
876
877
878
879
880
881
882
883
884
885
886
887
888
889
890
891
892
893
894
895
896
897
898
899
900
901
902
903
904
905
906
907
908
909
910
911
912
913
914
915
916
917
918
919
920
921
922
923
924
925
926
927
928
929
930
931
932
933
934
935
936
937
938
939
940
941
942
943
944
945
946
947
948
949
950
951
952
953
954
955
956
957
958
959
960
961
962
963
964
965
966
967
968
969
970
971
972
973
974
975
976
977
978
979
980
981
982
983
984
985
986
987
988
989
990
991
992
993
994
995
996
997
998
999
1000

1. Un procedimiento para la preparación de un material de mezcla de óxidos para combustibles nucleares que comprende la operación de poner en contacto un gel de un material fértil nuclear con un material fisiónable en fase líquida, para impregnar directamente dicho gel con dicho material fisiónable.

2. Un procedimiento según la Reivindicación 1 que incluye además las operaciones de la técnica precedente de preparación de un coloide de un material fértil nuclear y secado de dicho coloide para formar un gel y además incluye la operación posterior de aumentar la densidad del gel impregnado por calcinación.

3. Un procedimiento según cualquiera de las precedentes reivindicaciones en el que la combinación de material fértil y fisiónable es toria y urania, urania y urania o urania y plutonia.

4. Un procedimiento según cualquiera de las precedentes reivindicaciones en el que el material fisiónable se encuentra en forma hexavalente en el momento de la operación de puesta en contacto.

5. Un procedimiento según cualquiera de las precedentes reivindicaciones en el que el material fisiónable en fase líquida es nitrato de uranilo o nitrato de plutonilo.

6. Un procedimiento según cualquiera de las precedentes reivindicaciones en el que la concentración de material fisiónable tiene un valor previamente determinado en el momento de la operación de puesta en contacto y esta operación se lleva a cabo durante un período de tiempo finito, previamente determinado.

338574

1 7. Un procedimiento según cualquiera de las preceden-
tes reivindicaciones en el que la operación de secado compren-
de el paso de gotitas de material fértil coloidal a través
de un disolvente secante, con lo que las partículas salen
5 esencialmente en estado de gel como partículas esferoidales
en general.

10 8. Un procedimiento según cualquiera de las preceden-
tes reivindicaciones en el que el gel comprende una multipli-
cidad de partículas en forma de gel y además comprende las
operaciones de seleccionar entre dicha multiplicidad de par-
tículas en forma de gel un grupo de partículas con una dis-
tribución de tamaños previamente determinada y someter sola-
mente las partículas seleccionadas a la operación de puesta
en contacto del proceso.

15 9. Un procedimiento según cualquiera de las preceden-
tes reivindicaciones en el que el material fisiónable se en-
cuentra en solución en un líquido durante la operación de puestas
en contacto, cuya solución líquida es preferiblemente una
solución acuosa y en el que el coloide se prepara preferible-
mente en forma de coloide acuoso.

20 10. Un procedimiento según cualquiera de las prece-
dentes reivindicaciones en el que la operación de puesta en
contacto se realiza haciendo pasar las partículas de gel del
material fértil nuclear a través del material fisiónable en
25 fase líquida y la puesta en contacto se concluye haciendo pa-
sar el gel así impregnado directamente desde el material fi-
sionable a un fluido separador para terminar bruscamente y
de forma controlada la impregnación del gel por el material
fisiónable.

30 11. Un procedimiento según la Reivindicación 10 en

338574

1 -el que la puesta en contacto se realiza sin que prácticamen-
te las partículas de gel se mezclen al descender a través de
una columna líquida de múltiples pisos, cuya porción superior
contiene el material fisionable y cuya porción inferior con-
tiene el fluido separador, siendo todos los fluidos no mis-
cibles con los fluidos inmediatamente adyacentes a ellos.

5
10
15
12. Un procedimiento según la Reivindicación 11 en
el que las dimensiones de la masa fluída de material fisio-
nable se calculan previamente para conseguir un tiempo de
descenso de las partículas a través de la misma previamente
calculado y controlado, el fluido separador es un disolvente
secante para impedir la adherencia entre las partículas im-
pregnadas y la columna fluída se estrecha en el menisco de
los fluidos para reducir la superficie de la interfase en-
tre ellos.

13. Se reivindica por último como objeto sobre el
que ha de recaer la Patente de Invención que se solicita:
"UN PROCEDIMIENTO PARA LA PREPARACION DE UN MATERIAL DE MEZ
CLA DE OXIDOS PARA COMBUSTIBLES NUCLEARES".

20
Todo tal como queda descrito y reivindicado en la -
presente Memoria descriptiva que consta de veintidós páginas
mecanografiadas.

Madrid, 28 Marzo, 1967

BERNARDO UNGRIA

p.p.

25


30