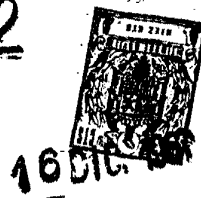


348342



PATENTE DE INVENCION

B. 2165.3.

Memoria Descriptiva

sobre:

"PROCEDIMIENTO DE FABRICACION DE UN
ELEMENTO COMBUSTIBLE NUCLEAR"

Solicitante: COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE , entidad francesa , residen-
te en 29 , rue de la Fédération , Paris 15e , Francia.

El invento tiene por objeto un elemento com-
bustible revestido de una envoltura , utilizable en parti-
cular en los reactores nucleares que funcionan con uranio
natural y refrigerados mediante circulación de gas a pre-
sión.

5.



16 DIC. 1951

5. El empleo de elementos combustibles a base de uranio puro o debilmente revestido de una envoltura metálica de aleación a base de magnesio con una pequeña proporción de circonio se halla muy extendido en los reactores nucleares moderados con grafito y refrigerados por circulación de gas carbónico a presión : Este tipo de elementos combustibles puede utilizarse hasta temperaturas de revestimiento del orden de 50°C , presentando la aleación de magnesio una resistencia mecánica suficiente hasta estas temperaturas .

10. No obstante , si a estas temperaturas sobrepasa el grado de irradiación un valor del orden de 1000mWj/t para los elementos corrientemente utilizados , se observa una difusión a través de la envoltura de plutonio formada por la irradiación del uranio . Este plutonio sufre la fisión y los productos de fisión formados no retenidos por la envoltura dan lugar a la contaminación del canal correspondiente , lo cual resulta nefasto extremadamente .

15. Por consiguiente , el presente invento tiene por objeto aumentar la resistencia de los revestimientos de aleación a base de magnesio a la difusión del plutonio en el curso de la irradiación en reactor sin dejar de conservar la aleación obtenida propiedades mecánicas satisfactorias .

20. Con tal fin propone el presente invento un elemento que posee una envoltura de revestimiento de la cual al menos la parte que descansa sobre el material combustible está constituida por una aleación al menos ternaria a base de magnesio , contentiva de circonio y plomo , estando comprendido el porcentaje en plomo entre 1% y 5% en

25.

30.



peso y estando comprendido el porcentaje en circonio entre 0,15 y 0,8% .

5. Para el porcentaje en plomo de la aleación de be tenerse en cuenta dos necesidades ; parar casi por completo la difusión del plutonio y conservar características mecánicas al menos tan satisfactorias como las de las aleaciones binarias clásicas magnesio-circonio .

10. Como quiera que la aptitud para fijar el plutonio depende del porcentaje en plomo de la solución , la primera condición solo se cumple si no se sobrepasa una - proporción mínima de plomo en aleación , que corresponde a un porcentaje de plomo en solución suficiente . Pruebas comparativas efectuadas revistiendo muestras de aleaciones U - Pu - Mo (con 2000 ppm de Pu) y de aleación Mg Pu (con 15. 60% en peso de Pu) por ternarias Mg - Zr - Pb de proporción variable en Pb han conducido a fijar el mínimo en 1% en peso ; exámenes con sonda electrónica sobre aleaciones ternarias Mg - Zr - Pb con 0,5% de circonio y 1% de plomo efectuadas después de un tratamiento de puesta en solución 20. del plomo , constituido por un mantenimiento de 100 horas a 500°C en atmósfera de CO₂ , han mostrado que esta proporción correspondo en tal caso a un porcentaje de plomo en solución sólida de 0,65% en peso .

25. A título de ejemplo , se han observado unas difusiones notables del plutonio en la ternaria Mg - Zr - Pb de 0,2% de plomo y una ausencia completa de difusión en la aleación con 1,35% de plomo , previamente sometida a un mantenimiento de 500 horas a 475°C .

30. La proporción de plomo está limitada principalmente por la conservación de las principales caracterís



16 DIC. 1954

ticas (estabilidad a la corrosión , resistencia mecánica al calor , conservación estructural tras mantenimientos a elevadas temperaturas) .

- 5. La misión afinante del circonio , en proporción comprendida entre 0,15 y 0,8% en peso , se mantiene en las aleaciones según asegura al invento , asegurado un a excelente estabilidad estructural a elevada temperatura . La adición de plomo en pequeñas proporciones aumenta aún más la estabilidad de la talla de grano de la aleación . -
- 10. Este efecto se ilustra en la tabla I que agrupa los resultados de observaciones efectuadas sobre aleaciones ternarias Mg - Zr - Pb de 1 , 1,45 y 3% en peso de plomo tras un mantenimiento de 500 horas a 500°C en atmósfera de CO₂. A titulo comparativo , se indican los valores relativos -
- 15. a la aleación binaria Mg - Zr de 0,45% de circonio en peso.

T A B L A I

Contenido en Pb (%)	Aleación Mg/Zr de referencia		
	1	1,45	3
dimensión			
20. media de los granos	50-100/u	50-200/u	50-1000/u
			150 -250/u

- 25. Se observa que la aleación de 3% de plomo aparece una fuerte dispersión ; además un contenido tan elevado en plomo se traduce por inclusiones ricas en plomo - de grandes dimensiones : La mejor homogeneidad del material parece corresponder a un porcentaje comprendido entre 1 y 2% , lo que lleva a considerar como ventajoso un porcentaje del orden de 1,5% ± 0,2% .

30. Ensayos de tracción y de deformación en trac



5. ción efectuadas sobre probetas cilindricas de 4mm de diametro y de 20mm de longitud util , para estudiar las propiedades me
canicas a elevada temperatura han conducido a los resultados agrupados en la tabla II , que facilita las caractesisticas
obtenidas a 20°C , 250°C , 450°C y 500°C con una velocidad de
formación de 1% / minuto de tracción . La tabla II proporci-
ona igualmente , a título de comparación , los valores obteni-
dos con una aleación binaria magnesio- circonio con 0,5% de
circonio en peso en las mismas condiciones de ensayo . El con-
tenido en circonio de las aleaciones ternarias es también del
orden de 0,5% , valor que corresponde sensiblemente a un opti-
mo .

T A B L A II

(aleaciones que comprenden 100 a 200 ppm de manganeso)

15.	Temperatura de prueba	Contenido en plomo (% peso)	Resistencia a ruptura (kg/mm ²)	Limite elastí a 0,2% (kg/mm ²)	Alargamiento total (%)	Alargamiento (%)
20,	20 ° C.	0,2	22,6	18,8	26 - 30	10 - 11
		1	21,5	15,5	12 - 18	8 - 10
		1,35	21,1	15,8	18 - 20	9 - 11
		3,12	21	14,5	16 - 23	12 - 14
Mg - Zr	0	21	14	12 - 17	7 - 10	
25.	250 ° C	0,2	5	4,35	38 - 45	7 - 14
		1	3,7	3,3	45 - 70	2,5- 6
		1,35	3,5	3	55 - 75	5 - 6
		3,12	2,55	2,2	70 - 80	10 - 15
Mg - Zr	0	2,95	2,4	60 - 80	6 - 10	



16 Dic. 95

		0,2	0,44	0,4	100 -120	5
		1	0,64	0,57	100 -120	3 - 4
	450 ° C	1,35	0,75	0,7	100 -120	4 - 8
		3,12	0,35	0,25	100 -120	8 -10
5.	Mg - Zr	0	0,5	0,47	100 -120	2 - 3
		0,2	0,32	0,3	100 -120	4
		1	0,3	0,28	100 -140	5
	500 ° C:	1,35	0,52	0,5	100 -180	2,5
10.		3,12	0,22	0,22	110 -150	8 - 10
	Mg - Zr	0	0,32	0,31	90 -100	1,5- 2,5

15. Se observa que la ductilidad permanece siempre muy elevada , sea cual fuere el contenido en plomo de la aleación ternaria : por ejemplo , a 450 y 500°C la ductilidad a la ruptura , siempre superior a 100% , alcanza incluso a veces 150 a 180% . Pruebas efectuadas para medir la velocidad de deformación secundaria en función de la tensión , a 250 , 450 y 500°C , han mostrado la resistencia menos buena a la deformación de la aleación con 3% de plomo . La toma en consideración simultánea de las características de deformación y de la de los ensayos de tracción , muestra el interés particular de un contenido en plomo de la aleación ternaria próximo a 1,5% en peso y la necesidad de no sobrepasar 5% en peso .

20. La resistencia a la deformación de la aleación ternaria puede mejorarse añadiendo aditivos suplementarios sin dejar de conservar un nivel de ductilidad suficiente . En particular puede utilizarse una adición de cinc (0 a 0,5% en peso) o de cerio (0 a 0,5% en peso) .

25. Por otra parte , se ha estudiado la misión del

30.



5. manganeso : Si se comparan los resultados ofrecidos en la -
 tabla II , relativos a una aleación cuyo contenido en manga
 neso está comprendido entre 100 y 120 ppm , con los resulta
 dos agrupados en la tabla III y relativos a las aleaciones -
 ternarias (porcentaje en plomo del orden de 1 y 1,5%) cu
 yo contenido en manganeso no excede de 30 ppm , se observa
 que la reducción del contenido en manganeso conduce a una -
 disminución de la carga de ruptura R y del límite elástico
 $E_{0,2\%}$

10.

T A B L A III

(contenido en manganeso inferior a 30ppm)

Temperatura de prueba	Contenido en plomo %	R kg/mm2	$E_{0,2\%}$ kg/mm2	Alargamiento total (%)
15.	0,95	19	14	20 - 22
	20 ° C: 1,45	19,2	12,6	25 - 30
250 ° C:	0,95	2,7	2,15	70 - 80
	1,45	2,8	2,2	70 - 80
20.	450 ° C 0,95	0,05	0,04	90 -100
	1,45	0,4	0,4	100 -120
500 ° C	0,95	0,25	0,23	80 -100
	25. 1,45	0,24	0,20	100 -120

La diferencia , del orden de 5 a 10% a la tempe
 ratura ambiente , alcanza 30% a 450 y 500°C : Un contenido
 en manganeso comprendido entre 100 y 200 ppm valor compati
 ble con la necesidad de limitar las perdidas de reactivi-
 dad es por tanto preferible .

30.



5. La eficacia del plomo con respecto a la difusión del plutonio se acentúa todavía más cuando las aleaciones definidas anteriormente se utilizan en forma hidru-
rada . Esto es debido a que la precipitación del circonio -
en forma de hidruro favorece la solución completa del plomo
incluso en los mayores porcentajes de este ultimo . Los re-
sultados mecánicos se ilustran en la tabla IV que agrupa algu-
nos resultados de ensayos de tracción relativos a la alea-
ción de 0,46% ZR y 1,4% Pb , hidruzado .

10.

T A B L A I V

Temperatura prueba (°C)	Contenido en Pb (%)	R (kg/mm ²)	E _{0,2%} (kg/mm ²)	Alargamiento total%	Alargamiento repartido%
20	1,4	19,6	15	10 - 15	7 - 8
15. 250	1,4	2,65	1,95	70 - 80	10 -18
450	1,4	0,45	0,33	100 - 120	7 -15
500	1,4	0,25	0,2	80 - 110	2 - 5

20. La comparación de las tablas II y IV muestra que la hidruración lleva implícita una disminución de la -
resistencia mecánica de la aleación . Por el contrario , la ductilidad permanece muy satisfactoria , como muestran los ensayos de deformación .

25. La preparación de los revestimientos constitui-
dos por una de las aleaciones definidas anteriormente puede efectuarse de la manera clásica : se prepara la aleación en paquetes para laminar ya fundidos ; a partir de estos paque-
tes se preparan , generalmente por extrusión , piezas en -
bruto en las cuales se fabrican las envolturas de revesti-
miento . Si se utiliza la aleación en forma hidruzada , --
30. puede efectuarse el tratamiento de hidruración anteso des-



pues de la extrusión ó afinado del mismo.

- Las aleaciones según el invento - hidruradas ó no - pueden utilizarse para construir una parte de una envoltura de revestimiento compuesta : en este caso la --
5. aleación es colaminada ó perfilada con la binaria Mg Zr - clásica , utilizada hasta ahora en los reactores refrigerados por gas carbonico . La disposición de los dos materiales de revestimiento es evidentemente tal que , después de formada , la aleación reivindicada por el presente invento está en contacto directo con el combustible.
- 10.

N O T A

- Descrita suficientemente la naturaleza del invento , así como la manera de realizarlo en la práctica , debe hacerse constar que las disposiciones anteriormente -
15. indicadas son susceptibles de modificaciones de detalle en cuanto no alteren su principio fundamental. Tambien se hace constar que el invento corresponde a una solicitud de - patente presentada en Francia con fecha y números siguientes : 20 de diciembre de 1.966 , nº PV.88.206 , acogiendo-
20. se por lo tanto a los beneficios que conceden los Convenios Internacionales en vigor y siendo lo que constituye la -- esencia del refinado invento y por lo que se solicita Patente de Invención por 20 años en España sobre : "Procedimiento de fabricación de un elemento combustible nuclear" caracterizandose por lo siguiente:
- 25.

- 1.- Procedimiento de fabricación de un elemento combustible nuclear , que incluye una envoltura de revestimiento de aleación a base de magnesio y una barra cilíndrica de material combustible recubierta con la envoltura , susceptible de emplearse , en especial , para reac
- 30.



- tor nuclear de neutrones térmicos que reacciona con el uranio natural y es refrigerado por circulación de CO₂ a presión, caracterizado porque en una primera etapa, la envoltura de revestimiento, constituida, al me-
5. nos, en su parte que descansa sobre el material combustible, por una aleación, al menos, ternaria a base de magnesio que presenta un contenido en circonio comprendido entre 0,15 y 0,8%, preferentemente de 0,5% en peso, y un contenido en plomo comprendido
10. entre 1 y 5% en peso, preferentemente de 1,5 ± 0,2%, se elabora mediante soldadura de un paquete para laminar de dicha aleación al menos ternaria; en una segunda etapa se extrusiona dicho paquete en forma de pieza en bruto, mecanizándose, a continuación
15. dicha pieza en bruto y, en una tercera etapa, la citada barra cilíndrica de material combustible se recubre con la referida envoltura de revestimiento.

- 2.- Procedimiento según la reivindicación 1ª, caracterizado porque la citada envoltura de revestimiento se constituye, al menos, en su parte que
20. descansa sobre el material combustible, por una aleación cuaternaria que comprende una pequeña proporción de aditivo de mejora de la resistencia a la deformación constituida por cinc y/o cerio en proporciones inferiores a 0,5% en peso.
- 25.

- 3.- Procedimiento según las reivindicaciones 1ª y 2ª, caracterizado porque la aleación se compone además de trazas de manganeso, entre 100 y 200 ppm.

30. 4.- Procedimiento según la reivindicación



16 DIC. 1957

1ª , caracterizado porque la citada aleación se hidru-
ra.

5, 5.- Procedimiento según cualquiera de las
reivindicaciones anteriores , caracterizado porque la
envoltura que cubre al material combustible , se compo-
ne de una primera capa de dicha aleación , en contacto
con el material combustible , y de una segunda capa so-
lidaria a la anterior constituida por una aleación bi-
naria magnesio - circonio con 0,5% , aproximadamente -
10. en circonio.

6.- Procedimiento según la reivindicación
1ª , caracterizado porque la envoltura de revestimien-
to se realiza por coextrusión de paquetes para laminar
de dicha aleación y de la binaria magnesio - circonio.

15. 7.- Procedimiento de fabricación de un -
elemento combustible nuclear , tal y como queda descri-
to sustancialmente en la presente Memoria.

Esta Memoria consta de 11 hojas escritas a
máquina por una sola cara.

20.

Madrid, 16 DIC. 1957

COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE

J. GOMEZ ACEBO Y MODEY
p. p. Firmado E. Marín los 16/12