

403868

memoria descriptiva

G.21C

CLASE DE REGISTRO

Una Patente de Invención, por veinte años en España.

NOMBRE Y NACIONALIDAD DEL SOLICITANTE

General Electric Company.
Sociedad EE.UU.

RESIDENCIA Y DOMICILIO

Schenectady, N.Y. 12305 (EE.UU.)
1 River Road.

OBJETO

"Procedimiento para la inmovilización química de productos de fisión reactivos con componentes de reactor nuclear".

Prioridad

Solicitud patente EE.UU. Nº 153.897 del 16.6.1971.

Inventores

1.- Leonard Nathan GROSSMAN.
2.- Alexis Ivanovich KAZNOFF. (Todos de nacionalidad EE.UU.)
3.- Howard Vernon CLUKEY.

POOR
QUALITY

1 El presente invento se refiere en general a un -
procedimiento para la inmovilización de productos de fisión,
capaces de reacción nociva con componentes de reactor nuclear
y más particularmente a un procedimiento de incorporar aditi-
5 vos en conjuntos de combustible nuclear, cuyos aditivos se
asocian con productos de fisión de uranio y plutonio y evi-
tan que los productos de fisión ataquen los componentes de
reactor nuclear especialmente el revestimiento de combustible
nuclear.

10 Los reactores nucleares se diseñan, construyen y
hacen funcionar al presente, en que material fisionable o
combustible nuclear está contenido en elementos de combusti-
ble, que pueden tener varias formas geométricas, tales como
placas, tubos o barras. El material de combustible está -
15 usualmente encerrado en un recipiente o revestimiento, re-
sistente a la corrosión, no reactivo, conductor de calor -
que reunido con el material de combustible, es denominado un
elemento de combustible. Los elementos de combustible están
reunidos en un entramado a distancias fijas entre sí en un
20 canal de flujo de refrigerante o región, que forma un conjun-
to de combustible, y suficientes conjuntos de combustible se
combinan para formar un conjunto o núcleo de reactor, que
reacciona en cadena de fisión nuclear capaz de una reacción
de fisión auto-sostenida. El núcleo está encerrado dentro de
25 un recipiente de reactor, a través del cual se hace pasar un
refrigerante.

30 El revestimiento sirve para dos objetos principales:
primero para evitar el contacto y las reacciones químicas -
entre el combustible nuclear y bien sea el refrigerante o mo-

1 derador, si estuviera presente, a ambos; y en segundo lugar,
evitar que los productos de fisión, altamente radiactivos,
algunos de los cuales son gases, se desprendan del combusti-
ble en el refrigerante o moderador, o en ambos. Materiales
5 comunes de revestimiento son acero inoxidable, aluminio y sus
aleaciones, circonio y sus aleaciones, niobio (columbio) -
ciertas aleaciones de magnesio y otros. El fallo del reves-
timiento, debido a la constitución de presión de gas o de -
altas temperaturas en el combustible, o debido a corrosión del
10 revestimiento por productos de fisión nocivos, puede conta-
minar el refrigerante o moderador y los sistemas de vapor -
asociados con productos intensamente radiactivos de larga -
vida en un grado que interfiere con el funcionamiento de la
instalación.

15 En general, durante el funcionamiento de un reac-
tor de energía nuclear, un átomo fisionable, tal como U-233,
U-235 o Pu-239, absorbe un neutrón en su núcleo y experimen-
ta una desintegración nuclear. Esto produce, como promedio,
20 dos productos de fisión, de peso atómico inferior y gran -
energía cinética, usualmente dos o tres neutrones de eleva-
da energía. Por ejemplo, la fisión de U-235 produce un pro-
ducto ligero de fisión y un producto pesado de fisión con -
números de masa que varían entre 80 y 110 y entre 125 y 155
25 respectivamente, un promedio de 2,5 neutrones y alguna radia-
ción gamma energética. Algunos de los productos de fisión -
antecedidos (bien sea solos, conjuntamente o en combinación
con otros elementos presentes en un elemento de combustible)
se ha determinado que tienen efectos nocivos sobre los ma-
30 teriales de revestimiento. Representativos de estos produc-

1 tos nocivos de fisión, que tienen suficiente movilidad en
el combustible nuclear para migrar al contacto con el revestimiento, son cesio, rubidio, yodo y telurio.

5 Durante el funcionamiento de reactores nucleares
se ha observado que, a través de prolongados períodos de -
tiempo, los elementos de combustible pueden exponerse a fallos, porque el revestimiento resulta corroído con desprendimiento de productos radiactivos desde el punto de fallo en el revestimiento. Los análisis de elementos de combustible
10 fallados han demostrado una causa prevaleciente de fallo, -
que se debe a la corrosión, que ocurre en el interior del -
elemento de combustible. Se supone que esto se debe al desprendimiento de productos de fisión corrosivos dentro del -
elemento de combustible, cuyos productos migran al contacto
15 con el revestimiento y entran en reacción con el revestimiento. Cuando estos productos nocivos de fisión alcanzan concentraciones suficientemente altas, estos productos de fisión pueden producir significativa corrosión del revestimiento. Cuando el revestimiento sea un material de circonio, tal -
20 como una aleación de circonio o aleación de acero inoxidable, el revestimiento puede quedar sometido a corrosión, ayudada por cesio, posiblemente resultando del fenómeno conocido -
como agrietamiento de corrosión de esfuerzo de metal líquido. La corrosión ayudada por cesio probablemente en especial puede
25 ocurrir cuando el cesio está asociado con pequeñas cantidades de rubidio y pequeñas cantidades del producto de fisión yodo con o sin pequeñas cantidades de combustible común e impurezas del revestimiento tales como fluor, cloro y oxígeno y el ión hidroxilo del agua. El yodo también puede pe-
30

1 netbar en los límites de grano de los revestimientos hechos
de aleaciones de circonio o aleaciones de acero inoxidable.
La presencia de interacción nociva entre el revestimiento y
5 productos nocivos de fisión aumenta con el paso del tiempo
del funcionamiento del elemento de combustible, ya que están
disponibles más productos de fisión para reacción con el -
revestimiento. Otras condiciones, que incrementan la inter-
acción entre el revestimiento y nocivos productos de fisión
son las más altas temperaturas del combustible durante la -
10 fisión, la presión del combustible sobre el revestimiento,
debido a la expansión del combustible durante la fisión y
la presión de gases de fisión desprendidos (por ejemplo, -
xenon y criptón) sobre el revestimiento.

15 En adición, los productos de fisión nuclear pueden
tener otros efectos perjudiciales. Por ejemplo, un propó-
sito principal de inmovilizar productos de fisión de yodo
es reducir la exposición potencial de organismos vivos a la
radiación ionizadora de ^{los} yodos radiactivos, que de otro modo
escapan de los elementos de combustible en el caso de falla
20 e incluso desde el reactor. De esta manera el personal den-
tro y fuera de la instalación del reactor quedaría protegi-
do de efectos biológicos de radiación ionizadora de estos -
productos de fisión de yodo. Radioisótopos, que escapan del
combustible a través de revestimiento con fugas, pueden re-
25 tenerse ampliamente dentro del sistema del reactor, pero -
pueden causar exposiciones del personal radiación directa
a través del equipo del reactor o por introducción en el
cuerpo por exposición a fugas o despilfarros. Los radioisó-
topos desprendidos de la instalación nuclear en accidentes
30 anormales pueden causar similares exposiciones directas e

1 indirectas a personas fuera de la instalación nuclear. El
yodo radiactivo (especialmente yodo-131) es uno de los prin-
cipales contribuyentes a tales posibles exposiciones y exis-
te una necesidad para asegurarse que el mismo no escape del
5 combustible para facilitar operaciones normales y reducir
ulteriormente los efectos potenciales de accidentes.

En la industria nuclear es deseable conseguir pro-
tección de componentes de reactor nuclear, especialmente -
revestimientos nucleares, ante los efectos perjudiciales de
10 productos de fisión, especialmente los arriba mencionados -
cesio, rubidio, yodo y telurio como productos de fisión. -
Aunque se han intentado varios acercamientos a este proble-
ma, uno de los más prácticos ha sido encontrar aditivos, que
se combinan químicamente o asocian con los indeseables pro-
15 ductos de fisión, de modo que estos productos no queden li-
bres para migrar en el revestimiento del combustible nuclear
para reacción con el revestimiento para producir el fallo
final de revestimiento.

La selección de tales aditivos es complicada por
20 los muchos parámetros, que tienen que satisfacerse para un
aditivo con éxito. El aditivo, tanto antes, como después de
la combinación con los productos de fisión, debería ser re-
lativamente insoluble en agua caliente, relativamente no -
volátil y físicamente inmóvil en el material de combustible
25 nuclear a temperaturas de funcionamiento del combustible y
del revestimiento, inertes químicamente respecto al combus-
tible y al revestimiento y relativamente libres de efectos
sobre la producción de neutrones del reactor y manipulación
del combustible. El aditivo también deberá ser relativamen-
30

1 te barato y deberá ser compatible con las técnicas corrientes de producción de combustible.

5 Por lo tanto, es un objeto de este invento procurar, aditivos para materiales de combustible nuclear, que se combinen químicamente o asocien con productos de fisión perjudiciales impidiendo que estos productos migren en el combustible nuclear para alcanzar los componentes del reactor.

10 Otro objeto de este invento es procurar los aditivos precedentes para materiales de combustible nuclear, que tienen una característica adicional de baja sección transversal de absorción de neutrones.

15 Todavía otro objeto de este invento es procurar los precedentes aditivos para materiales de combustible nuclear, que son baratos y pueden ser incorporados económicamente dentro de un elemento de combustible.

20 Los objetos precedentes y otros objetos y ventajas aparentes para una persona que tenga experiencia ordinaria en la técnica, se consiguen introduciendo un aditivo seleccionado entre materiales de baja sección transversal de absorción de neutrones que serán productos de fisión perjudiciales, químicamente inertes, resultantes de la fisión nuclear de reacciones en cadena de materiales de combustible nuclear. Los aditivos se asocian con los productos de fisión (es decir que los productos de fisión son recogidos por los aditivos) e inmovilizan los productos de fisión, -
25 incluyendo cesio, rubidio, yodo y telurio, bien sea por formar soluciones sólidas o por reacción química para formar compuestos. Los aditivos pueden clasificarse ampliamente -
30

1 como metales, óxidos metálicos u óxidos mixtos y pueden -
usarse con los habituales combustibles nucleares, en cual-
quier forma que se use el combustible, incluyendo compues-
5 tos de combustible nuclear. Los aditivos pueden ser intro-
ducidos dentro de los elementos de combustibles por varios
métodos, que fomentan el uso de estos aditivos en combusti-
bles nucleares.

Los aditivos de este invento pueden ser usados con
materiales de combustible nuclear adecuados para varios ti-
10 pos de reactores nucleares, tales como reactores rápidos y
reactores térmicos, incluyendo reactores de agua a presión,
reactores de agua hirviente y reactores refrigerados con -
gas. Este invento es aplicable a materiales de combustible
nuclear fisionable, tales como isótopos de uranio, plutonio,
15 torio o mezclas de los mismos, que se fisionan por reacción
en cadena de fisión nuclear y producen productos de fisión
de tal reacción. Los isótopos de uranio, plutonio, torio o
mezcla de los mismos pueden estar en la forma de elementos
(metales) o compuestos, con compuestos representativos, que
20 pueden ser óxidos, carburos, siliciuros, nitruros, oxinitru-
ros, carbonitruros, oxicarburos, etc. Los aditivos de este
invento, en una práctica preferida, se emplean con combus-
tibles nucleares en la forma de óxido.

Cualesquiera de los aditivos enumerados en este
25 invento pueden ser incorporados solos o en combinación con
uno o varios de los otros aditivos. Los aditivos de este
invento satisfacen un número de parámetros, siendo los más
importantes parámetros, su habilidad para recoger productos
perjudiciales de fisión y su baja sección transversal de ab-
30

1 sorción de neutrones, que reduce al mínimo la interferencia
con el funcionamiento del reactor nuclear. Los aditivos de
este invento, tanto, antes, como después de la combinación
5 con los productos de fisión, tienen una baja solubilidad en
agua caliente (agua en el alcance desde alrededor de 275 a
400° C según esté presente en un reactor nuclear térmico -
durante condiciones de funcionamiento) muy baja presión de
vapor y muy baja presión parcial de la especie de productos
10 de fisión, recogida a temperatura de funcionamiento del reac-
tor, inmovilidad física de los aditivos, tanto antes, como
después de la combinación con los productos de fisión en una
gran fracción del volumen de combustible, químicamente inerte
respecto a la reacción con el combustible y el revestimiento
y libre de interferencia con la reacción en cadena de fisión
15 nuclear.

Los aditivos, empleados en la práctica de este in-
vento, pueden seleccionarse de cuatro clases generales de -
aditivos, que o bien se asociarán o formarán compuestos esta-
bles con los productos de fisión, teniendo los parámetros enu-
20 merados en el párrafo precedente. Los aditivos, que recogen
productos de fisión, pueden dividirse en cuatro clases, in-
cluyendo (1) óxidos metálicos de cationes de baja sección -
transversal de absorción de neutrones, siendo óxidos repre-
sentativos dióxido de silicio, dióxido de titanio y mezclas
25 de los mismos; (2) compuestos cerámicos de óxidos mixtos, -
teniendo cationes de baja sección transversal de absorción
de neutrones siendo óxidos representativos, silicatos de alu-
minio (por ejemplo, mulita) silicatos de calcio (por ejemplo,
30 CaO.SiO_2 , $3\text{CaO}.2\text{SiO}_2$, 2CaO.SiO_2), silicatos de magnesio (por

1 ejemplo, $MgO.SiO_2$, $2MgO.SiO_2$), óxidos de metal de silicio,
alúmina alcalino térreos (por ejemplo, $CaO.Al_2O_3.2SiO_2$ y
5 $2MgO.2Al_2O_3.5SiO_2$), titanatos metálicos del grupo II, III, ó
IV de metales que forman titanatos (por ejemplo, $CaTiO_3$, -
 Al_2TiO_5 , $SiTiO_4$) titanatos de calcio-silicio (por ejemplo,
6 $CaO.2SiO_2.TiO_2$) y mezclas y composiciones de los preceden-
tes; (3) compuestos cesiados de grafito, tales como $C_{64}Cs$ y
 $C_{63}Cs$; (4) metales de baja o moderadamente baja sección trans-
versal de neutrones, que reaccionan con productos de fi-
10 sión, tales como cesio en el ambiente del combustible, in-
cluyendo los metales de molibdeno y tungsteno que pueden -
hacer inerte al cesio y al rubidio, formando molibdatos de
cesio, tungstatos de cesio, etc. en combustibles de óxido,
15 bajo ciertos regímenes de actividad de oxígeno. Aditivos -
seleccionados de la enumeración precedente se asocian con
ciertos productos de fisión, de modo que es una enseñanza
especialmente preferida de este invento el usar una combi-
nación de aditivos de modo que sean inmovilizados con elimi-
nación de los arriba citados efectos perjudiciales en la
20 introducción al invento, múltiples productos de fisión pro-
ducidos en las reacciones de cadena de fisión nuclear. A tí-
tulo de ejemplo y no sirviendo para limitar el alcance de
este invento, se considera usar un material de óxido, tal
25 como mulita o titania en combinación con grafito cesiado, -
como el óxido que servirá para asociarse y enlazar productos
perjudiciales de fisión metálicos, tales como cesio y rubidio
y el grafito cesiado se asociará y enlazará los productos
de fisión no metálicos perjudiciales, tales como yodo. Gene-
ralmente las cuatro clases de aditivos pueden caracterizarse
30 por su asociación preferida con uno o varios productos de -

1 fisión en el combustible nuclear durante las reacciones de
cadena de fisión nuclear con los óxidos metálicos y óxidos
mixtos tendiendo a asociarse y a enlazar con productos de
fisión metálicos, incluyendo cesio y rubidio, tendiendo los
5 compuestos cesiados de grafito a asociarse y enlazarse con
productos de fisión no metálicos, tales como yodo, así como
recogiendo cesio y rubidio.

Además, a título de ejemplo se presenta la tabla
1 en que se enumera alguno de los aditivos (o recogedores)
10 de la discusión precedente, los productos de reacción, for-
mados de la reacción del recogedor con cesio y la temperatu-
ra estimada de fusión del producto de reacción. Los crite-
rios usados son que el compuesto de cesio formado es termo-
dinámicamente estable (presión $Cs < 10^{-6}$ atmósferas) y refrac-
15 tario (sólido a $> 1.000^{\circ} C$) en presencia de UO_2 .

(Sigue la tabla 1)

Generalmente los efectos útiles de la inmoviliza-
ción del producto de fisión pueden conseguirse con concentra-
ciones relativamente bajas de los aditivos de este invento,
20 que están asociados con el combustible nuclear. Mientras -
que cualquier cantidad eficaz de los aditivos pueden emplear
se prefiere que generalmente se use con el combustible nuclear
desde alrededor de 1/2 hasta alrededor de 4% de peso de -
aditivo. En una práctica especialmente preferida, puede -
25 añadirse a los elementos de combustible desde alrededor de
1/2 hasta alrededor de 1/2% de peso de óxidos metálicos, des-
de alrededor de 1/2 hasta alrededor de 2% de peso de óxidos
mixtos, desde alrededor de 1 hasta alrededor de 4% de peso
de grafito cesiado y desde alrededor de 1 a 4% de peso de -
30

1 metal, para hacer inertes los productos de fisión resultan-
tes de la fisión de aproximadamente cada 2% atómico de los
átomos fisiles, presentes en los elementos de combustible.
Apreciablemente menos de las cantidades precedentes tiendan
5 a ser ineficaces para conseguir la inmovilización de los pro-
ductos de fisión perjudiciales, mientras que apreciablemente
más de las cantidades precedentes añaden una cantidad exce-
siva de material inerte en el combustible y ocupan espacio,
que mejor estaría ocupado con material fisil.

10 Los aditivos de este invento pueden ser incorpo-
rados en el elemento de combustible de cualquier manera ade-
cuada y de varias maneras, tales como incorporando los adi-
tivos al combustible que lleve materiales crudos (por ejem-
plo, a los productos químicos en forma de vapor líquido o
15 sólido conteniendo uranio, en un procedimiento de fabrica-
ción de combustible), a las tabletas en un procedimiento de
fabricación de tabletas o al polvo, que deba someterse a la
compacción en tabletas o a un procedimiento de compacción
vibratoria. Típicamente los aditivos pueden ser incorporados
20 dentro del material de combustible mezclando mecánicamente
por coprecipitación o introducción en cualquier punto adecua-
do en el proceso de fabricación del combustible. Además, los
aditivos pueden ser alojados sobre el combustible como un
revestimiento incluyendo un revestimiento sobre formas de
25 tableta del combustible o en el interior del revestimiento
principal, adyacente al combustible, con procedimientos re-
presentativos para conseguir lo precedente, incluyendo el
rociado de llama y el laqueado para el aditivo metálico. Tam-
bién es posible usar impregnación líquida o de vapor de los
30

1

TABLA 1

Recogedor	Productos de reacción con Cs.	Temperatura de fusión estimada del producto de reacción (°C)
5 CaO.SiO ₂ 3CaO.2SiO ₂ 2CaO.SiO ₂	Cs ₂ O.3CaO.6SiO ₂ or Cs ₂ O.CaO.SiO ₂	1200-1500
10 2MgO.SiO ₂ MgO.SiO ₂	Cs ₂ O.MgO.3SiO ₂ , Cs ₂ O.MgO.5SiO ₂ , or Cs ₂ O.5MgO.12SiO ₂	1000-1100
CaO.Al ₂ O ₃ .2SiO ₂	Cs ₂ O.Al ₂ O ₃ .2SiO ₂ or Cs ₂ O.2CaO.3SiO ₂	1100-1300
2MgO.2Al ₂ O ₃ .3SiO ₂	Cs ₂ O.Al ₂ O ₃ .4SiO ₂	1500
15 CaO.2SiO ₂ .TiO ₂	Cs ₂ O.TiO ₂ .4SiO ₂	1800

20

25

30

1 aditivos en combustible de tabletas o polvo. También pueden
insertarse aditivos en la forma de hojas o secciones tubula-
res o rodear el combustible, como barquillos u obleas del
aditivo entre capas del combustible, como delgadas bolitas
5 situadas entre bolitas de combustible, como un unto de adi-
tivo metálico fundido desde una herramienta soldadora o co-
mo una pasta tal como pasta epoxi. También pueden añadirse
los aditivos, como compuestos volátiles (por ejemplo, -
SiCl₄ y TiCl₃) o nieblas líquidas (por ejemplo, soluciones
10 de nitrato de Al, Si, Ti, etc.) a la llama de los procedi-
mientos de reacción de fase de gas, usada para convertir -
gases, tales como hexafluoruro de uranio en un sólido, tal
como dióxido de uranio por reacción de llama.

15 Cuando los elementos de combustibles incorporen
los aditivos de este invento, los elementos de combustible
pueden tener cualquier configuración deseada. Típicamente,
los elementos de combustible pueden estar en la forma de
cilindros rectos, placas, cuadrados, etc. Se prefiere que
el material de combustible nuclear esté en la forma de ta-
20 bletas cilíndricas rectas, que están incluídas en un reves-
timiento tubular de aleación de circonio. La hinchazón de
las tabletas en el revestimiento se acomoda introduciendo
porosidad en la tableta del combustible, También podría te-
ner la tableta extremos cóncavos, aberturas axiles, etc. pa-
25 ra acomodar la hinchazón del producto de fisión.

Este invento consigue dejar inertes químicamen-
te los productos de fisión reactivos, tales como cesio, -
rubidio, yodo y telurio, puesto que los aditivos introduci-
dos en los elementos de combustible forman compuestos esta-
30

1 bles o soluciones sólidas, incorporando los productos reac-
tivos de fisión dentro de los compuestos o soluciones. De
esta manera, los aditivos evitan la potencial interacción
de revestimiento-producto de fisión e incrementan la seguri-
5 dad y longevidad del revestimiento. Además se observa que
los aditivos consiguen una mejora del rendimiento del com-
bustible para reactores rápidos y térmicos.

Los detalles del invento resultarán además aparen-
tes haciendo referencia a la siguiente descripción de las
10 ejecuciones preferidas del invento.

Ejemplós 1-8:

La reacción de los aditivos candidatos se efectuó
como sigue. Una cápsula de tantalio fue construída teniendo
un volumen superior cilíndrico de una pulgada de diámetro
15 y 3 pulgadas de altura centrado y conectado respecto a un
volumen cilíndrico inferior de 1/4 de pulgada de diámetro y
4 pulgadas de altura. Se colocó alrededor de 1 gramo de ce-
sio líquido en el volumen inferior y el aditivo candidato
en forma de polvo fue colocado en el volumen superior, bien
20 sea en un crisol de molibdeno o de dióxido de uranio. La
cápsula de tantalio fue vaciada, cerrada y calentada en un
horno de vacío de dos zonas. La zona superior del horno de-
termina la temperatura del aditivo y la zona inferior del
horno se usa para desarrollar la deseada presión de vapor
25 de cesio. Las muestras fueron calentadas a las temperaturas
indicadas en la tabla 2 durante unas 100 horas.

Los óxidos enumerados en la tabla 2 han demostra-
do reaccionar con vapor de cesio para formar compuestos -
30 conteniendo cesio. Las presiones de cesio, temperaturas de

1 reacción y actividades de oxígeno del sistema durante la
reacción observada también se indican. Las actividades de
oxígeno fueron ajustadas, bien sea por exceso de Mo (Mo/MoO_2)
o por exceso de UO_2 .003 presente en el sistema.

5 (Sigue la tabla 2).

Ejemplo 9:

Un tubo de Zircaloy-2 con una longitud de 6 pul-
gadas y 1/2 pulgada de diámetro sometido a autoclave en agua
procuró un revestimiento protector de óxido y se cargó con
10 una columna de 3 pulgadas de tabletas de combustible de -
dióxido de uranio de 1/2 pulgada de longitud, enriquecidas
con 7,28% atómico de isótopo U-235 siendo el resto isótopo
U-238. Las tabletas eran cilíndricas en su forma teniendo
15 dimensiones de 0,500 pulgadas de altura y 0,496 pulgadas de
diámetro con una cavidad cilíndrica de 0,15 pulgadas de -
diámetro en el centro de cada tableta. Todas las tabletas
tuvieron un aditivo de una mezcla de dióxido de silicio y
alúmina en una cantidad de 1/2% de peso cada una. El aditi-
vo fue añadido como un polvo al polvo de UO_2 antes de la
20 sinterización en las pastillas. Cesio en las formas de yo-
duro de cesio y molibdato de cesio más metal de uranio fue
añadido a las cavidades cilíndricas en cada una de las table-
tas de combustible para simular productos de fisión resultan-
tes de 5% atómico de combustión de U-235. El tubo de Zirca-
25 loy-2 fue cerrado herméticamente en ambos extremos con ca-
puchones, soldados por fusión, de Zircaloy-2.

El tubo fue introducido en un reactor de agua hir-
viente para irradiación con un flujo de neutrones de alre-
dedor de $2,5 \times 10^{13}$ neutrones/cm² segundo durante alrededor
30

TABLA 2

Ejemplo	Óxido	Productos de reacción conteniendo cesio.	Presión de cesio (atmos.)	Temperatura de reacción (°C)	Energía libre parcial molar de oxígeno (kcal/mole O ₂)
1	SiO ₂	Cs ₂ O.2SiO ₂ +Cs ₂ O.4SiO ₂	0.2	800	-95
2	SiO ₂	Cs ₂ O.2SiO ₂ +Cs ₂ O.4SiO ₂	0.04	903	-85
3	SiO ₂	Cs ₂ O.2SiO ₂ +Cs ₂ O.4SiO ₂	0.05	800	-80
4	SiO ₂	Cs ₂ O.2SiO ₂ +Cs ₂ O.4SiO ₂	0.002	990	-75
5	TiO ₂	Fase sin identificar conteniendo alrededor de 50% de peso de Cs.	0.2	800	-95
6	TiO ₂	Fase sin identificar, conteniendo alrededor de 50% de peso de Cs.	0.04	903	-85
7	3Al ₂ O ₃ .2SiO ₂	Cs ₂ O.Al ₂ O ₃ .2SiO ₂	0.01	795	-80
8	3Al ₂ O ₃ .2SiO ₂	Cs ₂ O.Al ₂ O ₃ .2SiO ₂ + fase desconocida	0.002	990	-75

1 5 10 15 20 25 30

1 de 50 días. El tubo fue separado del reactor y las table-
tas de combustible fueron extraídas del tubo para análisis
ceramográfico y de microprueba de electrones, haciéndose -
todo esto en condiciones para protegerse contra exposición de
5 radiación del personal. Las tabletas de combustible tuvieron
un aspecto-micro-estructuralmente similar a las tabletas
de combustible en reactores comerciales, expuestos a ele-
vadas condiciones de combustión para un combustible de flu-
jo de neutrones de alto régimen. El exámen por barrido de -
10 micro-prueba demostró una obvia y chocante correlación de
contenido de cesio y silicio en el mismo lugar, indicando -
que el cesio se había combinado químicamente con la fase -
conteniendo sílice en la matriz de combustible. El cesio es-
tuvo asociado con el silicio aún en áreas frías de combusti-
15 ble donde se había pensado que el acceso de cesio era difi-
cil. La presencia de alúmina con el silicio y cesio también
se confirmó por análisis. Se consideró que el cesio reaccio-
naba con silicio y alúmina (mulita) para formar un silica-
to de cesio alúmina de composición $Cs_2O \cdot Al_2O_3 \cdot 2SiO_2$ bajo -
20 las condiciones presentes en el elemento de combustible.

Como resultará aparente para los expertos en la
materia, pueden introducirse en el invento arriba descrito
varias modificaciones y cambios. Por lo tanto, existe la -
25 intención de que el invento se entienda de la manera más -
amplia dentro de la idea y alcance, que se exponen en las
reivindicaciones adjuntas.

N O T A

La presente patente de invención, comprende las siguientes reivindicaciones:

1.- Procedimiento para la inmovilización química de productos de fisión reactivos con componentes de reactor nuclear, producidos en un material combustible nuclear de composición de óxido, en forma de tabletas cilíndricas compactas conteniendo por lo menos un isótopo fisiónable, caracterizado por comprender la operación de incorporar en el material de combustible nuclear una cantidad efectiva de un aditivo inmovilizador de producto de fisión en el alcance desde alrededor de $\frac{1}{2}$ hasta alrededor de 4% de peso, seleccionado del grupo consistente en silicatos de aluminio, silicatos de calcio, silicatos de magnesio, sílica-alúmina-magnesia, sílica-alúmina-calcia, titanatos de aluminio, titanatos de silicio, titanatos de calcia-sílica y compuestos de cesio grafito y sus mezclas, sirviendo dicho aditivo para inmovilizar los productos de fisión resultantes de la reacción de fisión en cadena nuclear del material de combustible nuclear, a través de una reacción entre los productos de fisión y el aditivo.

2.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque el material de combustible nuclear comprende compuestos seleccionados del grupo consistente en compuestos de óxido de uranio, compuestos de óxido de plutonio, compuestos de óxido de torio y sus mezclas.

3.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque el combustible nuclear comprende compues-

1 tos de óxido de uranio.

4.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque el aditivo inmovilizador es un silicato de aluminio.

5 5.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque el aditivo inmovilizador es un silicato de calcio.

10 6.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque el aditivo inmovilizador es un silicato de magnesio.

7.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque el aditivo inmovilizador es silica-alúmina-magnesesia.

15 8.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque el aditivo inmovilizador es un compuesto de cesio grafito.

9.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque el aditivo inmovilizador es un titanato de aluminio.

20 10.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque el aditivo inmovilizador es un titanato de silicio.

25 11.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque el aditivo inmovilizador es silica-alúmina-calcia.

12.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque el material de combustible nuclear es dióxido de uranio.

30 13.- Procedimiento según la reivindicación 1, ca-

1 racterizado porque el aditivo es un compuesto cerámico de
óxido mixto y el aditivo está presente en el material de -
combustible nuclear en una cantidad de alrededor de $\frac{1}{2}$ hasta
alrededor de 2% de peso.

5 14.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracte-
rizado porque el aditivo es un compuesto de cesio grafito
y el aditivo está presente en el material de combustible -
nuclear en una cantidad de alrededor de 1 hasta alrededor de
4% de peso.

10 15.- "Procedimiento para la inmovilización química
de productos de fisión reactivos con componentes de reactor
nuclear".

15 Según se describe y reivindica en la presente me-
moria descriptiva y consta de veinte hojas foliadas y escri-
tas a máquina por una sola de sus caras.

Madrid, a 14 JUN 1972

20 CARLOS ROEB
P. P.
Fdo: Pedro Malamorón

25

30