

427031

24 JUN. 1974

P.- 57.771

B 4995.3 HM

Int. Cl.:	G21C
MEMORIA DESCRIPTIVA	

para solicitar PATENTE DE INVENCION EN ESPAÑA por 20 años

a nombre de COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE,

entidad francesa

establecida en 29, rue de la Fédération, Paris 15^e, Francia

por: "PROCEDIMIENTO DE FABRICACION DE MATERIAL COMBUSTIBLE
NUCLEAR"

(Clase Internacional G21c)

El presente invento debido, a los Sres. Guy Dean, Jacques Delafosse, Bernard Francois y Robert Lorenzelli tiene como objeto un nuevo material combustible nuclear que posee un excelente comportamiento en pila, utilizable especialmente en los reactores de agua ligera y en los reactores de neutrones rápidos.

Hasta ahora ha planteado muchos problemas la fabricación de combustibles nucleares que tengan un buen comportamiento bajo irradiación. Los combustibles generalmente utilizados están constituidos por pastillas fritadas de óxido de uranio y/o de elementos transuránicos cuya densidad es de 70 a 95 % de la densidad máxima teórica. Se ha comprobado que ninguno de los combustibles utilizados hasta ahora se había revelado enteramente satisfactorio a la vez desde el punto de vista de la estabilidad térmica, de la resistencia mecánica y de la acomodación del hinchamiento durante la utilización en pila.

Entre los procedimientos, conocidos hasta ahora, de fabricación de pastillas fritadas utilizables en calidad de combustible nuclear, se puede citar especialmente el procedimiento descrito en la patente española 356.814 del 15 de octubre de 1969, que consiste en partir de un polvo de óxido de uranio y/o de elementos transuránicos y en añadirle naftaleno en forma de esferas calibradas con un diámetro comprendido entre 50 μ

y 200 μ . Las pastillas fritadas así obtenidas eran estables térmicamente pero, por el contrario, mecánicamente frágiles; en particular, la rectificación de la superficie daba lugar a la formación de estallidos. Además, durante la utilización en pila de estas pastillas se manifestaba como mediocre la acomodación del hinchamiento.

La solicitante ha estudiado este problema y ha descubierto que trozos fritados de óxido de uranio y/o de elementos transuránidos que tienen una gama de porosidad bien definida, respondían a estos tres criterios necesarios para su utilización como combustible nuclear, a saber estabilidad térmica, resistencia mecánica y acomodación del hinchamiento. La solicitante ha encontrado igualmente los medios necesarios para fabricar trozos fritados que tienen esta gama de porosidad bien definida.

El material combustible nuclear conforme al invento es caracteriza porque está constituido por trozos fritados de óxido de uranio y/o de elementos transuránidos cuyo diámetro de poros está comprendido entre 4 y 40 μ .

En efecto, la solicitante ha descubierto que cuando los combustibles nucleares utilizados hasta ahora tenían poros inferiores a 4 μ , la eliminación de estos pequeños poros bajo irradiación entrañaba

una nefasta densificación del producto. Por otro lado, la solicitante ha encontrado que, por el contrario, cuando los combustibles nucleares tenían poros superiores a 40 μ , eran mecánicamente frágiles y además no permitían acomodar el hinchamiento debido a los productos de fisión sólidos y gaseosos durante la utilización en pila.

Así, el material combustible nuclear según el invento, por el hecho de que tiene una porosidad estable y controlada, comprendida entre 4 y 40 μ , manifiesta un excelente comportamiento en pila.

El invento tiene igualmente como objeto el procedimiento de fabricación del material arriba definido. Este procedimiento está caracterizado porque se reduce a polvo óxido de uranio y/o elementos transuránicos, se añade a dicho polvo de 1 a 6 % en peso de un compuesto orgánico volátil cuya granulometría calibrada es inferior a 40 μ , se comprime la mezcla en frío a la forma de trozos, y se somete a dichos trozos a un fritado.

Según una característica ventajosa del invento, el compuesto orgánico volátil está constituido por naftaleno. La obtención de naftaleno que tenga una granulometría inferior a 40 μ , necesaria para la realización del procedimiento según el invento, puede efectuarse de dos maneras:

5 - bien sea por pulverización, a sa-
ber disolución de naftaleno comercial en un disolvente
orgánico tal como benceno o tricloroetileno, y luego pro-
yección de esta solución sobre una superficie plana y
recuperación del polvo obtenido.

 - bien sea por decantación, a sa-
ber disolución en caliente de naftaleno comercial en agua
y luego decantación en frío.

10 Según otra característica del inven-
to, el compuesto orgánico volátil está constituido por
diazocarbamida.

 Se puede utilizar igualmente, como com-
puesto orgánico volátil, carbonato de amonio.

15 Se dan seguidamente dos ejemplos de
fabricación de un material combustible según el inven-
to, Bien entendido, estos ejemplos no tienen ningún ca-
rácter limitativo con respecto al invento.

EJEMPLO I

20 A polvo de óxido de uranio UO_2 , obte-
nido por un procedimiento clásico, tal como calcinación,
reducción y trituración, se añade 1% de naftaleno de gra-
nulometría inferior a 40μ , preparado según uno de los
25 dos métodos antes descritos.

Se lleva seguidamente a la mezcla de UO_2 + naftaleno a la forma de pastillas por compresión en frío bajo una presión de 5.000 barías.

5 A continuación se somete a fritado a estas pastillas a una temperatura de $1.725^{\circ}C$ durante seis horas en una atmósfera reductora constituida por 10% de hidrógeno y 90% de argón.

10 Las pastillas obtenidas presentan poros, de los que los más grandes son de aproximadamente 30 a 40 μ y los más pequeños de aproximadamente 5 μ . El espectro de distribución muestra que el diámetro medio es de aproximadamente 8 μ .

La densidad de las pastillas así obtenidas es de 91 a 95% de la densidad máxima teórica.

15 La notable estabilidad térmica de las pastillas así preparadas se manifiesta claramente en la tabla que sigue. Esta tabla indica las variaciones de densidad de pastillas de UO_2 preparadas según el invento después de un tratamiento térmico a $1.725^{\circ}C$ durante
20 te veinte horas, durante cincuenta horas y durante cien horas. Esta tabla indica igualmente, a título comparativo, las variaciones de densidad que resultan del mismo tratamiento térmico para pastillas de UO_2 preparadas según
25 gún uno de los procedimientos de la técnica anterior.

Producto fritado	ρ inicial g/cm ³	$\frac{\Delta \rho}{\rho} \%$			
		% de la teoría	recocido 20 horas	recocido 50 horas	recocido 100 horas
UO ₂ según el invento	10,244 93,47		0,41	0,50	0,55
UO ₂ de la técnica anterior	10,20 93,06		3,65	3,94	4,08

En esta tabla se ve que la variación de densidad de las pastillas según el invento es mucho menor que la de las pastillas de la técnica anterior.

5 La figura única aneja muestra igualmente el progreso técnico aportado por el invento. Esta figura representa las curvas obtenidas en estudios de densificación fuera de pila, a una temperatura de 1.725°C, de diferentes pastillas de UO₂ clásico (curva 1), de desechos de UO₂ que ya han servido y recirculado (curva 2),
10 de pastillas de UO₂ conformes al invento (curva 3). La curva 3 muestra con claridad que la densidad no varía prácticamente con el tiempo, y que la estabilidad térmica es claramente mejorada con relación a los óxidos clásicos (en un factor de 10 aproximadamente).

EJEMPLO 2

5 A polvo de óxido de uranio UO_2 , obtenido por un procedimiento clásico, se añade 1% de diazocarbamida adquirida en el comercio, con una granulometría comprendida entre 10 y 20 μ .

Seguidamente se lleva a la mezcla de UO_2 + diazocarbamida a la forma de pastillas por compresión en frío bajo una presión de 5.000 barías.

10 A continuación se somete a fritado a estas pastillas a una temperatura de 1.700°C durante cuatro horas en una atmósfera, bien sea de hidrógeno seco, bien sea de hidrógeno que contiene 3% de agua.

15 La densidad de las pastillas así obtenidas es inferior a 10,35.

La variación de densidad de estas pastillas de UO_2 , después de un tratamiento térmico a 1.720°C durante 20 horas, es de 0,60%.

20 La presente solicitud que corresponde a la presentada en Francia, el 7 de Junio de 1.973, bajo el número EN 73 20789, se acoge a los beneficios del Artículo 51 del vigente Estatuto sobre Propiedad Industrial.

25

REIVINDICACIONES

5

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

10

1ª.- Procedimiento de fabricación de material combustible nuclear, que está constituido por trozos fritados de óxido de uranio y/o de elementos transuránicos cuyo diámetro de poros está comprendido entre 4 y 40 μ , caracterizado porque se reduce a polvo óxido de uranio y/o elemento transuránicos, se añade a dicho polvo 1 a 15 6% en peso de un compuesto orgánico volátil cuya granulometría calibrada es inferior a 40 μ , se comprime en frío a la mezcla a la forma de trozos, y se somete a dichos trozos a un fritado.

20

2ª.- Procedimiento según la reivindicación 1ª, caracterizado porque el compuesto orgánico volátil está constituido por naftaleno.

25

3ª.- Procedimiento según la reivindicación 2ª, caracterizado porque el naftaleno es preparado por disolución de naftaleno comercial en un disol-

vente orgánico, proyección de dicha solución sobre una superficie plana y recuperación del polvo fino de naftaleno así obtenido.

5 4ª.- Procedimiento según la reivindicación 2ª, caracterizado porque el naftaleno es preparado por disolución en caliente de naftaleno comercial en agua, seguido por una decantación en frío.

10 5ª.- Procedimiento según la reivindicación 1ª, caracterizado porque el compuesto orgánico volátil está constituido por diazocarbamida.

6ª.- Procedimiento de fabricación de material combustible nuclear.

15 Tal y como se ha descrito en la memoria que antecede, representado en los dibujos que se acompañan y para los fines que se han especificado.

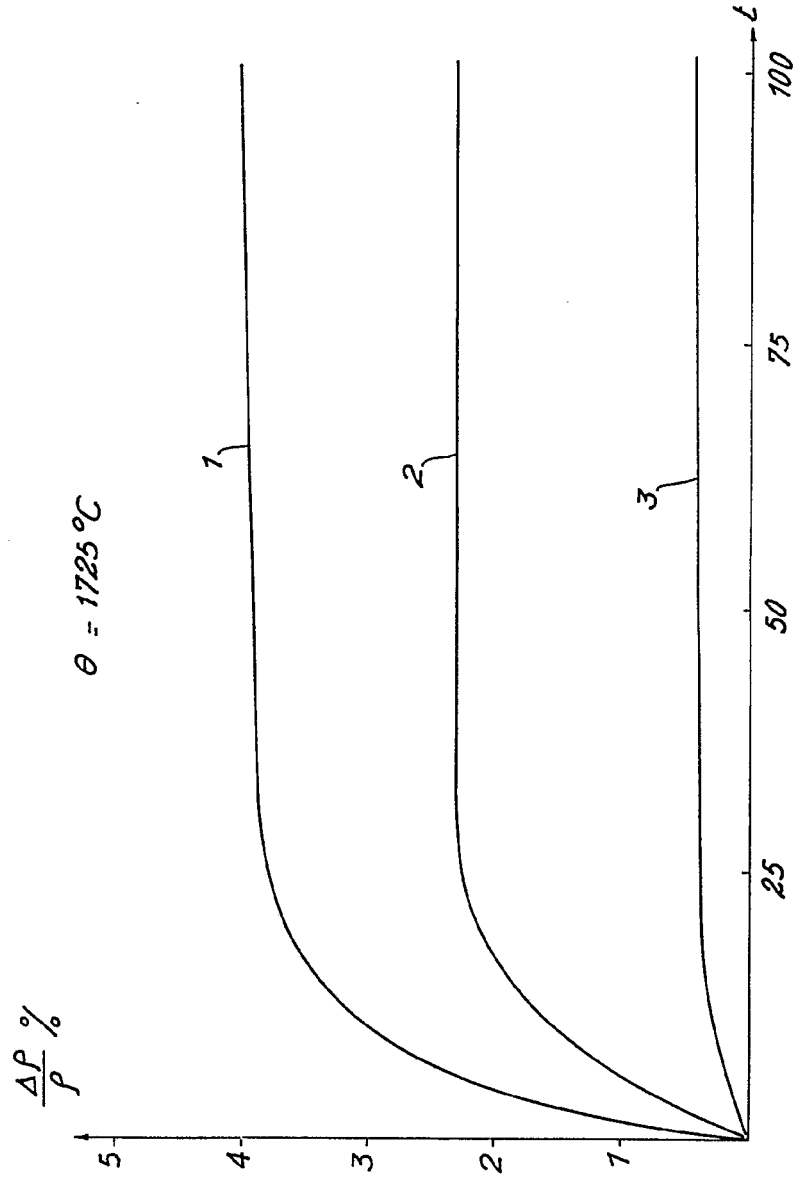
Esta Memoria consta de diez hojas escritas a máquina por una sola cara.

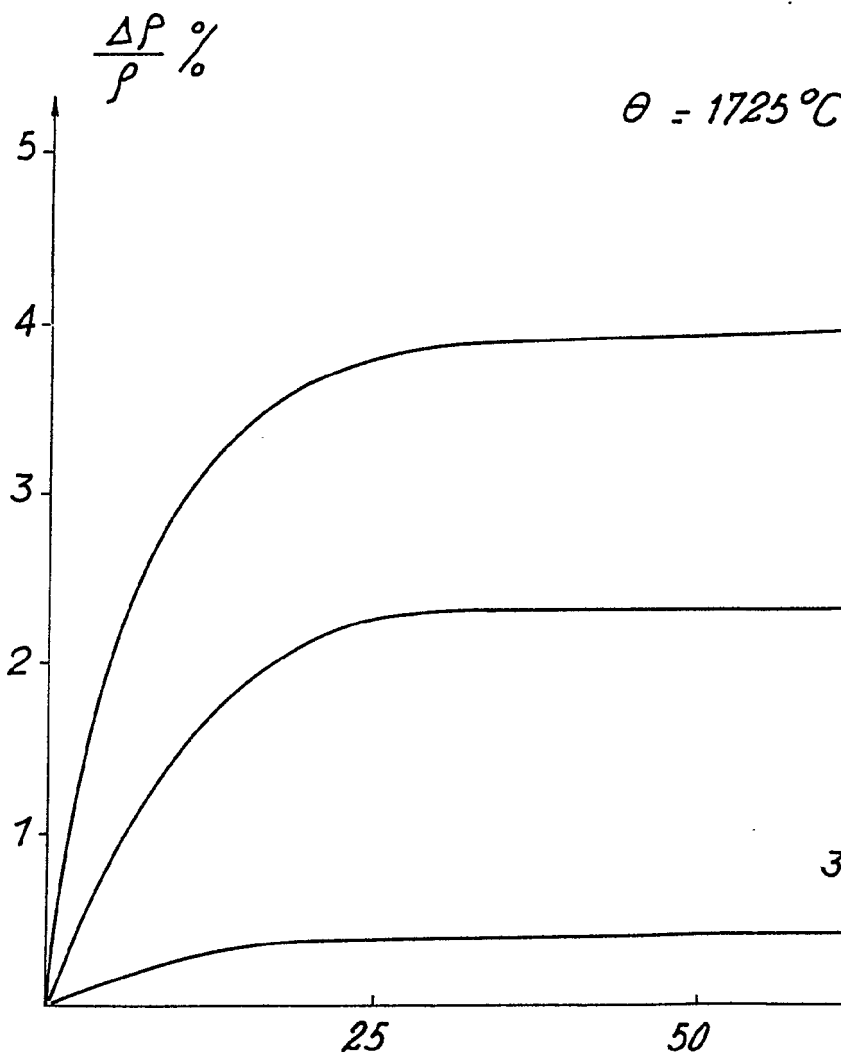
20 Madrid,
P. A.

24 JUN 1974
Fernando de Elizaburu
Per Pod. *[Signature]*

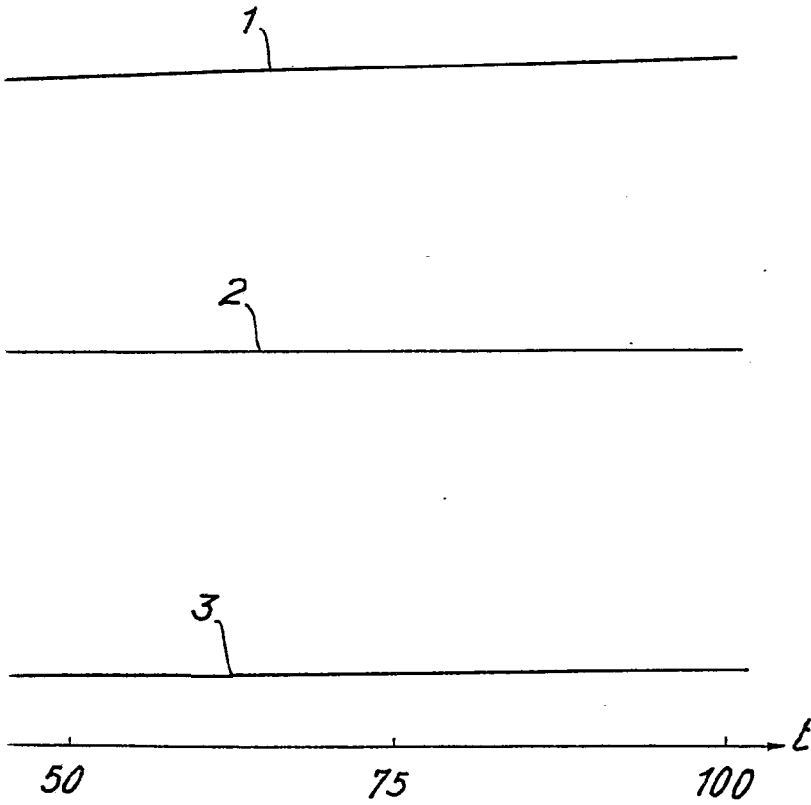
25

LN/
15.6.74





$\lambda = 1725^\circ\text{C}$



Fernando de Elizaburu
Per. Podes.