



19	ES	11	NUMERO	430800	10	A 1
		21				
		22	FECHA DE PRESENTACION	-8 OCT 1971		

PATENTE DE INVENCION

30	PRIORIDADES:	32	FECHA	33	PAIS
	31	NUMERO			
		153.897	16 - 6 - 1971		EE.UU

47	FECHA DE PUBLICIDAD	51	CLASIFICACION INTERNACIONAL	62	PATENTE DE LA QUE ES DIVISIONARIA
----	---------------------	----	-----------------------------	----	-----------------------------------

64	TITULO DE LA INVENCION
Perfeccionamientos en un elemento de combustible de reactor nuclear	
<u>Desglose de la sol. pte. nº 403.868</u>	

71	SOLICITANTE (S)
GENERAL ELECTRIC COMAPNY (sociedad de EE.UU)	

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

72	INVENTOR (ES)
1.- Leonard Nathan GROSSMAN.	
2.- Alexis Ivanovich KAZNUFF (todos súbditos de EE.UU)	
3.- Howard Vernon CLUKEY	

73	TITULAR (ES)
GENERAL ELECTRIC COMPANY (sociedad de EE.UU)	

74	REPRESENTANTE
D. Carlos Roeb Ungeheuer	

1

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

5

10

15

20

25

Los reactores nucleares se diseñan, construyen y hacen funcionar al presente, en que material fisionable o combustible nuclear está contenido en elemento de combustible, que pueden tener varias formas geométricas, tales como placas, tubos o barras. El material de combustible está usualmente encerrado en un recipiente o revestimiento, resistente 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 canal de flujo de refrigerante o región, que forma un conjunto 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 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

1 cas entre el combustible nuclear y bien sea el refrigerante
o moderador, si estuviera presente, o ambos; y en segundo -
lugar, evitar que los productos de fisión, altamente radiac
5 tivos, algunos de los cuales son gases, se desprendan del -
combustible en el refrigerante o moderador, o en ambos. Ma-
teriales comunes de revestimiento son acero inoxidable, alu
minio y sus aleaciones, circonio y sus aleaciones, niobio -
(columbio) ciertas aleaciones de magnesio y otros. El fallo
10 del revestimiento, debido a la constitución de presión de -
gas o de altas temperaturas en el combustible, o debido a -
corrosión del revestimiento por productos de fisión nocivos,
puede contaminar el refrigerante o moderador y los sistemas
de vapor asociados con productos intensamente radiactivos -
15 de larga vida en un grado que interfiere con el funciona- -
miento de la instalación.

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
20 ta una desintegración nuclear. Esto produce, como promedio,
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 -
25 números de masa que varían entre 80 y 110 y entre 125 y 155
respectivamente, un promedio de 2,5 neutrones y alguna ra-
diación gamma energética. Algunos de los productos de fisión
antedichos (bien sea solos, conjuntamente o en combinación
con otros elementos presentes en un elemento de combustible)
30 se ha determinado que tienen efectos nocivos sobre los mate-

1 riales de revestimiento. Representativos de estos productos
nocivos de fisión, que tienen suficiente movilidad en el -
combustible nuclear para migrar al contacto con el revesti-
5 miento, son cesio, rubidio, yodo y telurio.

5 Durante el funcionamiento de reactores nucleares
se ha observado que, a través de prolongados periodos de -
tiempo, los elementos de combustible pueden exponerse a fa-
llos, porque el revestimiento resulta corroído con despren-
dimiento de productos radiactivos desde el punto de fallo -
10 en el revestimiento. Los análisis de elementos de combusti-
ble fallados han demostrado una causa prevalectante de fa-
llo, 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 -
15 del elemento de combustible, cuyos productos migran al con-
tacto con el revestimiento y entran en reacción con el re-
vestimiento. Cuando estos productos nocivos de fisión alcan-
zan concentraciones suficientemente altas, estos productos
de fisión pueden producir significativa corrosión del reves-
20 timiento. Cuando el revestimiento sea un material de circo-
nio, tal como una aleación de circonio o aleación de acero
inoxidable, el revestimiento puede quedar sometido a corro-
sión, ayudada por cesio, posiblemente resultante del fenómeno
no conocido como agrietamiento de corrosión de esfuerzo de
25 metal líquido. La corrosión ayudada por cesio probablemente
en especial puede 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 -
30 combustible común e impurezas del revestimiento tales como

1 fluor, cloro y oxígeno y el ión hidroxilo del agua. El yodo
también puede penetrar en los límites de grano de los revestimientos hechos de aleaciones de circonio o aleaciones de
5 acero inoxidable. La presencia de interacción nociva entre
el revestimiento y 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
10 incrementan la interacción entre el revestimiento y nocivos
productos de fisión son las más altas temperaturas del combustible durante la 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
15 (por ejemplo, xenon y criptón) sobre el revestimiento.

En adición, los productos de fisión nuclear pueden tener otros efectos perjudiciales. Por ejemplo, un propósito 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 fallo e incluso desde el reactor. De esta manera, el personal dentro y fuera de la instalación del reactor quedaría protegido 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 retenerse ampliamente dentro del sistema del reactor, pero pueden causar exposiciones del personal a radiación directa a través del equipo del reactor o por introducción en el cuerpo por exposición a fugas o despilfarros. Los radio-

1

5

10

15

20

25

30

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

10 En la industria nuclear es deseable conseguir pro-
tección de componentes de reactor nuclear, especialmente re-
vestimientos nucleares, ante los efectos perjudiciales de -
productos de fisión, especialmente los arriba mencionados -
cesio, rubidio, yodo y telurio como productos de fisión. -
15 Aunque se han intentado varios acercamientos a este proble-
ma, uno de los más prácticos ha sido encontrar aditivos, que
se combinen químicamente o asocien con los indeseables pro-
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 -
20 final de revestimiento.

25 La selección de tales aditivos es complicada por
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 vo-
látil y físicamente inmóvil en el material de combustible -
nuclear a temperaturas de funcionamiento del combustible y
del revestimiento, inertes químicamente respecto al combus-
tible y al revestimiento y relativamente libres de efectos
30

1 sobre la producción de neutrones del reactor y manipulación
del combustible. El aditivo también deberá ser relativamen-
te barato y deberá ser compatible con las técnicas corrien-
tes de producción de combustible.

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

10 Otro objeto de este invento es procurar los aditi-
vos precedentes para materiales de combustible nuclear, que
tienen una característica adicional de baja sección trans-
versal de absorción de neutrones.

15 Todavía otro objeto de este invento es procurar -
los precedentes aditivos para materiales de combustible nu-
clear, que son baratos y pueden ser incorporados económica-
mente dentro de un elemento de combustible.

20 Los objetos precedentes y otros objetos a venta-
jas aparentes para una persona que tenga experiencia ordina-
ria en la técnica, se consiguen introduciendo un aditivo se-
leccionado entre materiales de baja sección transversal de
absorción de neutrones que serán productos de fisión perjudi-
ciales, químicamente inertes, resultantes de la fisión nu-
clear de reacciones en cadena de materiales de combustible
25 nuclear. Los aditivos se asocian con los productos de fisión
(es decir que los productos de fisión son recogidos por lo
aditivos) e inmovilizan los productos de fisión, incluyendo
cesio, rubidio, yodo y telurio, bien sea por formar solucio-
nes sólidas o por reacción químicamente para formar compues-
30

1
5
10
15
20
25
30

tos. Los aditivos pueden clasificarse ampliamente como metales, óxidos metálicos u óxidos mixtos y pueden usarse con los habituales combustibles nucleares, en cualquier forma que se use el combustible, incluyendo compuestos de combustible nuclear. Los aditivos pueden ser introducidos dentro de los elementos de combustibles por varios métodos, que fomentan el uso de estos aditivos en combustibles nucleares.

Los aditivos de este invento pueden ser usados con materiales de combustible nuclear adecuados para varios tipos 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 fisiónable, tales como isótopos de uranio, plutonio, torio o mezclas de los mismos, que se fisioan 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 pueden ser óxidos, carburos, siliciuros, nitruros, oxinitruros, carbonitruros, oxicarburos, etc. Los aditivos de este invento, en una práctica preferida, se emplean con combustibles nucleares en la forma de óxido

Cualesquiera de los aditivos enumerados en este invento pueden ser incorporados sólo 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 produc-

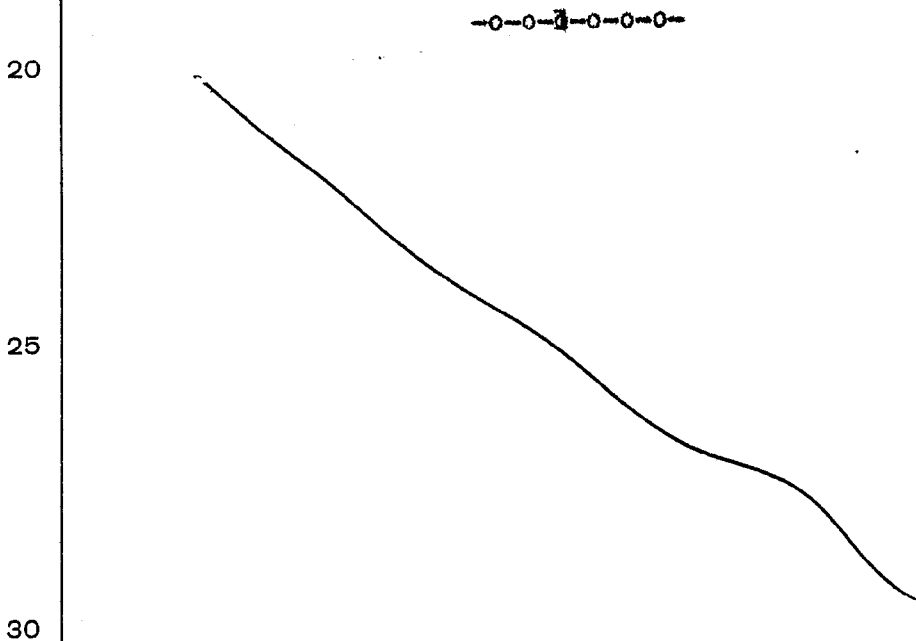
1 tos perjudiciales de fisión y su baja sección transversal -
de absorción de neutrones, que reduce al mínimo la interfe-
rencia con el funcionamiento del reactor nuclear. Los aditi-
vos de este invento, tanto antes, como después de la combi-
5 nación con los productos de fisión, tienen una baja solubili-
dad en agua caliente (agua en el alcance desde alrededor de
275 a 400° C según esté presente en un reactor nuclear tér-
mico durante condiciones de funcionamiento) muy baja presión
de vapor y muy baja presión parcial de la especie de produc-
10 to de fisión, recogida a temperatura de funcionamiento del
reactor, inmovilizada física de los aditivos, tanto antes, -
como después de la combinación con los productos de fisión
en una gran fracción del volumen de combustible, químicamen-
te inerte respecto a la reacción con el combustible y el re-
15 vestimiento y libre de interferencia con la reacción en ca-
dena de fisión 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 es-
20 tables con los productos de fisión, teniendo los parámetros
enumerados en el párrafo precedente. Los aditivos, que reco-
gen productos de fisión, pueden dividirse en cuatro clases,
incluyendo (1) óxidos metálicos de cationes de baja sección
25 transversal de absorción de neutrones, siendo óxidos repre-
sentativos dióxido de silicio, dióxido de titanio y mezclas
de los mismos; (2) compuestos cerámicos de óxidos mixtos, -
teniendo cationes de baja sección transversal de absorción
de neutrones siendo óxidos representativos, silicatos de -
30 aluminio (por ejemplo, mulita) silicatos de calcio (por ejen

1 plo, $\text{CaO} \cdot \text{SiO}_2$, $3\text{CaO} \cdot 2\text{SiO}_2$, $2\text{CaO} \cdot \text{SiO}_2$, silicatos de magne-
sio (por ejemplo, $\text{MgO} \cdot \text{SiO}_2$, $2\text{MgO} \cdot \text{SiO}_2$), óxidos de metal de
silicio, alúmina-alcalino térreos (por ejemplo, $\text{CaO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot$
5 2SiO_2 y $2\text{MgO} \cdot 2\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 5\text{SiO}_2$), titanatos metálicos del grupo
II, III ó IV de metales que forman titanatos (por ejemplo,
 CaTiO_3 , Al_2TiO_5 y SiTiO_4) titanatos de calcio-silicio (por
ejemplo, $\text{CaO} \cdot 2\text{SiO}_2 \cdot \text{TiO}_2$) y mezclas y composiciones de los -
precedentes; (3) compuestos cesiados de grafito, tales como
10 C_{64}Cs y C_{63}Cs ; (4) metales de baja o moderadamente baja sec-
ción transversal de neutrones, que reaccionan con productos
de fisión, tales como cesio en el ambiente del combustible,
incluyendo los metales de molibdeno y tungsteno que pueden
15 hacer inerte al cesio y al rubidio, formando molibdatos de
cesio, tungstatos de cesio, etc. en combustibles de óxido -
bajo ciertos regimenes de actividad de oxígeno. Aditivos se-
leccionados de la enumeración precedente se asocian con -
ciertos productos de fisión, de modo que es una enseñanza -
especialmente preferida de este invento al usar una combina-
20 ción de aditivos de modo que sean inmovilizados con elimina-
ción de los arriba citados efectos perjudiciales en la in-
troducción al invento, múltiples productos de fisión produ-
cidos en las reacciones de cadena de fisión nuclear. A títu-
lo de ejemplo y no sirviendo para limitar el alcance de es-
25 te invento, se considera usar un material de óxido, tal co-
mo mulita o titanía en combinación con grafito cesiado, co-
mo el óxido que servirá para asociarse y enlazar productos
perjudiciales de fisión metálicos, tales como cesio y rubi-
dio y el grafito cesiado se asociará y enlazará los produc-
30 tos de fisión no metálicos perjudiciales, tales como yodo.

1 Generalmente las cuatro clases de aditivos pueden caracteri-
zarse por su asociación preferida con uno o varios produc-
tos de fisión en el combustible nuclear durante las reaccio-
nes de cadena de fisión nuclear con los óxidos metálicos y
5 óxidos mixtos tendiendo a asociarse y a enlazar con produc-
tos de fisión metálicos, incluyendo cesio y rubidio, ten-
diendo los compuestos cesiados de grafito a asociarse y en-
lazarse con productos de fisión no metálicos, tales como yo-
do, así como recogiendo cesio y rubidio.

10 Además, a título de ejemplo se presenta la tabla
1 en que se enumera alguno de los aditivos (o recogedores)
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-
15 dinámicamente estable (presión $Cs < 10^{-6}$ atmósferas) y refrac-
tario (sólido a $> 1.000^{\circ} C$) en presencia de UO_2 .



1

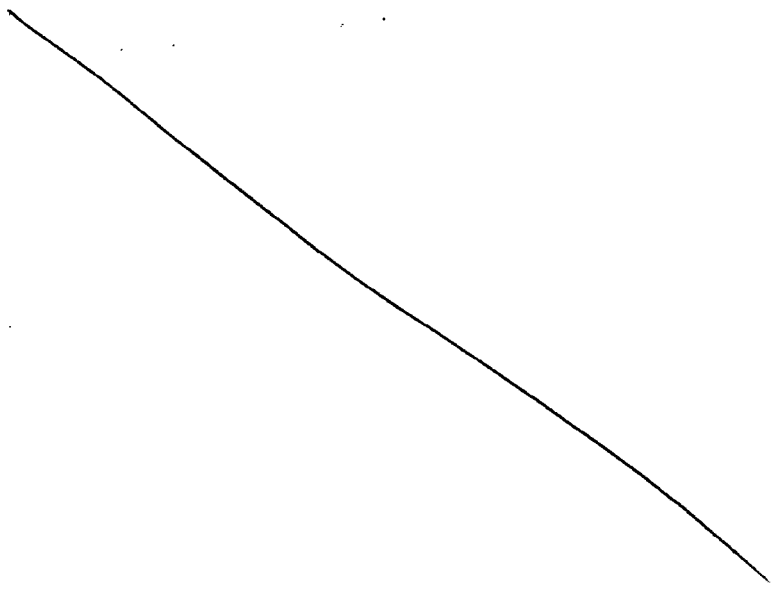
- T A B L A - 1 -

Recogedor	Productos de Reaccion con Cs	Temperatura de fusion estimada del producto de reaccion (° C)
5 CaO.SiO ₂ } 3CaO.2SiO ₂ } 2CaO.SiO ₂ }	Ca ₂ O.3CaO.6SiO ₂ } o Ca ₂ O.CaO.SiO ₂ }	1200 - 1500
10 2MgO.SiO ₂ } MgO.SiO ₂ }	Ca ₂ O.MgO.3SiO ₂ , } Ca ₂ O.MgO.5SiO ₂ , } o Ca ₂ O.5MgO.12SiO ₂ }	1000 - 1100
CaO.AL ₂ O ₃ .2SiO ₂ } 2MgO.2AL ₂ O ₃ .5SiO ₂ }	Ca ₂ O.AL ₂ O ₃ .2SiO ₂ } o Ca ₂ O.2CaO.3SiO ₂ } Ca ₂ O.AL ₂ O ₃ .4SiO ₂ }	1100 - 1300 1500
15 CaO.2SiO ₂ .TiO ₂	Ca ₂ O.TiO ₂ .4SiO ₂	1800

20

25

30



1 Generalmente los efectos útiles de la inmoviliza-
ción del producto de fisión pueden conseguirse con concen-
traciones relativamente bajas de los aditivos de este inven-
to, que están asociados con el combustible nuclear. Mien-
5 tras que cualquier cantidad eficaz de los aditivos puede em-
plearse, se prefiere que generalmente se use con el combus-
tible nuclear desde alrededor de 1/2 hasta alrededor de 4%
de peso de peso de aditivo. En una práctica especialmente -
preferida, puede añadirse a los elementos de combustible -
10 desde alrededor de 1/2 hasta alrededor de 2% de peso de óxi-
dos metálicos, desde alrededor de 1/2 hasta alrededor de 2%
de peso de óxidos mixtos, desde alrededor de 1 hasta alrede-
dor de 4% de peso de grafito cesiado y desde alrededor de 1
15 a 4% de peso de metal, para hacer inertes los productos de
fisión resultantes de la fisión de aproximadamente cada 2%
atómico de los átomos fisiles, presentes en los elementos -
de combustible. Apreciablemente menos de las cantidades pre-
cedentes tienden a ser ineficaces para conseguir la inmovi-
lización de los productos de fisión perjudiciales, mientras
20 que apreciablemente más de las cantidades precedentes añan-
den una cantidad excesiva de material inerte en el combusti-
ble y ocupan espacio, que mejor estaría ocupado con mate-
rial fisil.

25 Los aditivos de este invento pueden ser incorpora-
dos en el elemento de combustible de cualquier manera ade-
cuada y de varias maneras, tales como incorporando los aditi-
vos al combustible que lleve materiales crudos (por ejemplo,
a los productos químicos en forma de vapor líquido o sólido
30 conteniendo uranio, en un procedimiento de fabricación de -

1 combustible), a las tabletas en un procedimiento de fabrica
ción de tabletas o al polvo, que deba someterse a la compac
ción en tabletas o a un procedimiento de compacción vibrato
5 ria. Típicamente los aditivos pueden ser incorporados den--
tro del material de combustible mezclando mecánicamente por
coprecipitación o introducción en cualquier punto adecuado
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 -
10 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. -
15 También es posible usar impregnación líquida o de vapor de
los aditivos en combustible de tabletas o polvo. También pue
den insertarse aditivos en la forma de hojas o secciones tu
bulares o rodear el combustible, como barquillos u obleas -
del aditivo entre capas del combustible, como delgadas boli
20 tas situadas entre bolitas de combustible, como un unto de
aditivo metálico fundido desde una herramienta soldadora o
como una pasta tal como pasta epoxi. También pueden añadir
se los aditivos, como compuestos volátiles (por ejemplo, -
SiCl₄ y TiCl₃) o nieblas líquidas (por ejemplo, soluciones
25 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.

30 Cuando los elementos de combustibles incorporen
los aditivos de este invento, las elementos de combustible

1 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-
5 bletas cilíndricas rectas, que están incluidas en un revestimiento tubular de aleación de circonio. La hinchazón de las tabletas en el revestimiento se acomoda introduciendo porosidad en la tableta del combustible. También podría tener la tableta extremos cóncavos, aberturas axiales, etc. -
10 para acomodar la hinchazón del producto de fisión.

Este invento consigue dejar inertes químicamente los productos de fisión reactivos, tales como cesio, rubidio, yodo y telurio, puesto que los aditivos introducidos en los elementos de combustible forman compuestos estables o soluciones sólidas, incorporando los productos reactivos de fisión dentro de los compuestos o soluciones. De esta -
15 manera, los aditivos evitan la potencial interacción de revestimiento-producto de fisión e incrementan la seguridad y longevidad del revestimiento. Además se observa que los
20 aditivos consiguen una mejora del rendimiento del combustible para reactores rápidos y térmicos.

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

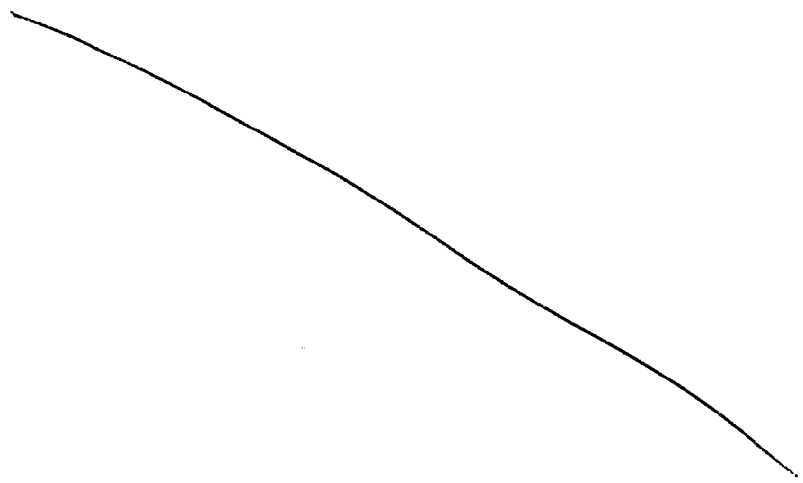
25 EJEMPLOS 1-8:

La reacción de los aditivos candidatos se efectuó como sigue. Una cápsula de tantalio fue construida teniendo un volumen superior cilíndrico de una pulgada de -
30 diámetro y 3 pulgadas de altura centrado y conectado res--

1
5
10
15
20
25
30

pecto a un volumen cilíndrico inferior de 1/4 de pulgada de diámetro y 4 pulgadas de altura. Se colocó alrededor de 1 gramo de cesio líquido en el volumen inferior y el aditivo candidato en forma de polvo fue colocado en el volumen superior, bien 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 determina la temperatura del aditivo y la zona inferior del horno se usa para desarrollar la deseada presión de vapor 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 demostrado reaccionar con vapor de cesio para formar compuestos conteniendo cesio. Las presiones de cesio, temperaturas de reacción y actividades de oxígeno del sistema durante la reacción observada también se indican. Las actividades de oxígeno no fueron ajustadas, bien sea por exceso de Mo (Mo/MoO_2) o por exceso de $UO_{2.003}$ presente en el sistema.



30 25 20 15 10 5 1

EJEMPLO	OXIDO	PRODUCTOS DE REACCION CONTE- NIENDO CESIO	PRESION DE CESIO (atmos.)	TEMPERATURA DE REACCION (° C)	ENERGIA LIBRE PARCIAL MOLAR DE OXIGENO (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 +Ca 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 conte- niendo alrededor de 50% de -- peso de Cs.	0.2	800	- 95
6	TiO ₂	Fase sin identificar, conte- niendo 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

EJEMPLO 9:

un tubo de Zircaloy-2 con una longitud de 6 pulgadas y 1/2 pulgada de diámetro sometido a autoclave en agua procuró un revestimiento protector de óxido y se cargó con una columna de 3 pulgadas de tabletas de combustible de dióxido de uranio de 1/2 pulgada de longitud, enriquecidas con 7,28% atómico del isótopo U-235 siendo el resto isótopo U-238. Las tabletas eran cilíndricas en su forma teniendo 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 aditivo fue añadido como un polvo al polvo de UO_2 antes de la sinterización en las pastillas. Cesio en las formas de yoduro de cesio y molibdato de cesio más metal de uranio fue añadido a las cavidades cilíndricas en cada una de las tabletas de combustible para simular productos de fisión resultantes de 5% atómico de combustión de U-235. El tubo de Zircaloy-2 fue cerrado herméticamente en ambos extremos con capuchones, soldados por fusión, de Zircaloy-2.

El tubo fue introducido en un reactor de agua hirviente para irradiación con un flujo de neutrones de alrededor de $2,5 \times 10^{13}$ neutrones/cm² segundo durante alrededor de 50 días. El tubo fue separado del reactor y las tabletas de combustible fueron extraídas del tubo para análisis ceramográfico y de microprueba de electrones, haciéndose todo esto en condiciones para protegerse contra exposición de radiación del personal. Las tabletas de combustible tuvieron

1 un aspecto micro-estructuralmente similar a las tabletas -
de combustible en reactores comerciales, expuestos a eleva
das condiciones de combustión para un combustible de flujo
de neutrones de alto régimen. El examen por barrido demi--
5 cro-prueba demostró una obvia y chocante correlación de con
tenido de cesio y silicio en el mismo lugar, indicando que
el cesio se había combinado químicamente con la fase conte
niendo sílice en la matriz de combustible. El cesio estuvo
asociado con el silicio aún en áreas frías de combustible
10 donde se había pensado que el acceso de cesio era difícil.
La presencia de alúmina con el silicio y cesio también se
confirmó por análisis. Se consideró que el cesio reacciona
ba con silicio y alúmina (mulita) para formar un silicato
de cesio alúmina de composición $Cs_2O \cdot Al_2O_3 \cdot 2SiO_2$ bajo las
15 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 -
20 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.

25

30

N O T A

La presente patente de invención, comprende las siguientes reivindicaciones:

1.- Perfeccionamientos en un elemento de combustible de reactor nuclear, caracterizados porque la composición de óxido en forma de tableta cilíndrica compacta contiene por lo menos un isótopo fisiónable y una cantidad eficaz 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, compuestos de cesio grafito, y sus mezclas, sirviendo dicho aditivo para inmovilizar los productos de fisión resultantes de reacciones en cadena de fisión nuclear del material de combustible nuclear por medio de una reacción entre los productos de fisión y el aditivo e impidiendo la reacción de los productos de fisión con los componentes del reactor a las temperaturas de funcionamiento del reactor.

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

3.- Perfeccionamientos según la reivindicación 2, caracterizados porque el material de combustible nuclear comprende compuestos de óxido de uranio.

1 4.- Perfeccionamientos según la reivindicación 1,
caracterizados porque el aditivo inmovilizador es un compues-
to de cesio grafito.

5 5.- Perfeccionamientos según la reivindicación 1,
caracterizados porque el aditivo inmovilizador es un silica-
to de aluminio.

6.- Perfeccionamientos según la reivindicación 1,
caracterizados porque el aditivo inmovilizador es un silicato
de calcio.

10 7.- Perfeccionamientos según la reivindicación 1,
caracterizados porque el aditivo inmovilizador es un silicato
de magnesio.

15 8.- Perfeccionamientos según la reivindicación 1,
caracterizados porque el aditivo inmovilizador es silica-
alúmina-magnesia.

9.- Perfeccionamientos según la reivindicación 1,
caracterizados porque el aditivo inmovilizador es un titana-
to de aluminio.

20 10.- Perfeccionamientos según la reivindicación
1, caracterizados porque el aditivo inmovilizador es un tita-
nato de calcia-sílica.

25 11.- Perfeccionamientos según la reivindicación
1, caracterizados porque el aditivo inmovilizador es un tita-
nato de silicio.

12.- Perfeccionamientos según la reivindicación
1, caracterizados porque el material de combustible nuclear
consiste en dióxido de uranio.

30 13.- Perfeccionamientos según la reivindicación
1, caracterizados porque el aditivo es un compuesto cerámico

1 de óxidos, mixtos y el aditivo está presente en el material de
combustible nuclear en una cantidad desde alrededor de $\frac{1}{2}$ has-
ta alrededor de 2% de peso.

5 14.- Perfeccionamientos según la reivindicación
1, caracterizados porque el aditivo es un compuesto de cesio
grafito y el aditivo está presente en el material de combus-
tible nuclear en una cantidad de alrededor de 1 a 4% de peso.

10 15.- Perfeccionamientos según la reivindicación
1, caracterizados porque el aditivo inmovilizador es sílica-
alúmina-calcia.

16.- Perfeccionamientos según la reivindicación
1, caracterizados porque el material de combustible nuclear
es una mezcla que comprende dióxido de plutonio y dióxido de
uranio.

15 17.- "Perfeccionamientos en un elemento de com-
bustible de reactor nuclear".

Según se describe y reivindica en la presente me-
moria descriptiva, la cual consta de veintiuna hojas foliadas
y escritas a máquina por una sola de sus caras.

20 Madrid, a

8 OCT 1974

CARLOS ROEB

R. P.

25 Fdo.: Pedro Matamorón