



1

RESUMEN DE LA INVENCION

5

10

Las realizaciones ilustrativas de la invención describen pastillas de combustible para reactores nucleares donde las pastillas presentan una porosidad controlada y relativamente homogénea que absorbe el hinchamiento del combustible y permite que los gases de fisión escapen de estas pastillas. Típicamente, unas pequeñas esferas de baja densidad, que pueden formarse a partir de un material muy volátil, se mezclan con un combustible nuclear en polvo y se prensan y sinterizan en pastillas de densidad apropiadamente baja para obtener un producto mejorado.

15

ANTECEDENTES DE LA INVENCION

Campo de la invención. Esta invención se refiere a métodos y a un aparato para la obtención de productos sinterizados y, más específicamente, a métodos y aparato para la producción de pastillas de combustible nuclear de porosidad generalmente uniforme y similares.

20

25

30

Descripción de la técnica anterior. Se han puesto a punto diversas técnicas para la manufactura de pastillas de combustible nuclear pero ninguna de ellas ha conseguido proporcionar un producto constantemente satisfactorio. En este aspecto, es importante comprender el ambiente único y esencialmente hostil en el que se utilizan estas pastillas. Básicamente, las pastillas individuales de dióxido de uranio, u otras pastillas de combustible nuclear, se cargan y se sellan en un tubo metálico hueco, alto y estrecho. Esta barra de combustible o "aguja de combustible" forma parte de un conjunto de barras similares que establecen una acumulación de material fisiónable en concentración suficiente para mantener unas reacciones de fisión sostenidas dentro del núcleo de un



1 reactor nuclear.

5 Estas reacciones de fisión producen calor que puede ser utilizado para producir energía útil; neutrones, que son las partículas nucleares que inician y mantienen las reacciones de fisión; y productos de fusión, que habitualmente son radiactivos y deben quedar contenidos dentro de las barras de combustible individuales por razones de salud y seguridad. Así, los núcleos de material fisionables, al absorber un neutrón, se escinden más o menos por la mitad, formando así las mitades los núcleos de dos elementos totalmente diferentes, algunos de los cuales se encuentran en estado gaseoso bajo las condiciones de temperatura y presión reinantes dentro de la barra de combustible. En estas circunstancias de elevada temperatura y formación de elementos con propiedades físicas y químicas diferentes dentro de las pastillas, constituye una tarea extraordinariamente difícil la necesidad de mantener la integridad de la barra de combustible.

15 Quizá la fuente más importante de dificultades en este aspecto es causada por la inestabilidad estructural de las pastillas de combustible. Las pastillas de combustible, por ejemplo, bajo las condiciones frecuentemente encontradas dentro de los núcleos de los reactores, tienen tendencia a "hincharse" y experimentar variaciones de las dimensiones físicas. La causa o causas de este hinchamiento no se conocen por completo pero, no obstante, se ha observado este fenómeno muchas veces. Es evidente que, dado el ambiente habitual del núcleo del reactor, incluso variaciones relativamente pequeñas de las dimensiones de las pastillas pueden hacer que el tubo metálico circundante reviente o se aplaste y libere

30



1 productos de fisión radiactivos.

También debe permitirse que el gas radiactivo generado dentro de las pastillas escape a un espacio vacío dentro de la estructura de la barra, para contribuir a preservar la integridad física de las pastillas individuales.

5 A lo largo de los años se han puesto a punto varios métodos de manufactura de pastillas. Estas técnicas reflejan diferentes intentos de superar los efectos del hinchamiento de la pastilla de combustible. Fundamentalmente, todas las soluciones propuestas parecen haber sido dirigidas a la preparación de una pastilla de combustible de densidad adecuadamente baja, caracterizada por una porosidad controlada y uniformemente distribuída. En el caso ideal, estas pastillas de densidad baja deben absorber el hinchamiento del combustible bajo condiciones severas de presión, temperatura y radiación en el reactor. Estas técnicas de preparación de pastillas, sin embargo, no son totalmente satisfactorias.

15 En algunos casos, se combina un aditivo volátil con el combustible nuclear pulverizado. Al calentar para permitir que el combustible pulverizado se sinterice o fusione en una masa, la materia volátil debe evaporarse y, de esta forma, producirse una estructura de pastilla resistente pero porosa. Desgraciadamente, esta técnica de volatilización frecuentemente deja un residuo indeseable dentro de los poros o un volumen vacío insatisfactoriamente pequeño.

20 Hay otras técnicas, por ejemplo, que se fundan en el método de granulado del polvo combustible o que hacen uso de polvos combustibles mezclados en los que cada uno de los polvos constituyentes de la mezcla es tratado térmicamente a una temperatura diferente antes de ser mezclados entre sí

30



1 y sinterizados. En el método de granulación, los poros resul-
tantes no están distribuidos uniformemente en todo el volumen
de la pastilla sino que suelen aparecer como unos pocos po-
ros indeseablemente grandes. El polvo tratado térmicamente,
5 además, impone difíciles requisitos de control de la produc-
ción.

COMPENDIO DE LA INVENCIÓN

10 Estos y otros problemas que han caracterizado a la
técnica anterior han sido resueltos, en alto grado, mediante
esta invención. Ilustrativamente, se mezclan unas pequeñas
esferas de baja densidad y quizá conteniendo sustancias alta-
mente volátiles, con una calidad sinterizable de polvo combus-
tible nuclear. La mezcla de polvo y esferas se comprime en
15 pastillas que después se sinterizan. De acuerdo con la natu-
raleza física de las esferas de la mezcla, se produce una
contracción del volumen de las esferas por evaporación o se
gasifican completamente. Esto produce una distribución uni-
forme general de poros, cada uno de ellos de un volumen ade-
cuadamente controlado, que produce en el agregado una frac-
20 ción vacía predeterminada para cada pastilla.

Más especialmente, en relación con las técnicas de
evaporación, se mezcla una calidad sinterizable de polvo ce-
rámico de dióxido de uranio (UO_2) con una cantidad de esferas
de "gel" de UO_2 . Estas esferas de gel son esencialmente pe-
25 queñas partículas de UO_2 rodeadas de agua. El troquel de una
prensa de pastillas se llena con una mezcla razonablemente
uniforme de este material de alimentación. El material del
troquel es prensado a una presión comprendida entre 10.000
y 40.000 libras/pulgada² (psi) (703 y 2812 kg/cm²). La pas-
30 tilla prepremsada o "verde" se saca después del troquel y se



1 sinteriza a temperaturas comprendidas aproximadamente entre
1200 y 1650°C para formar pastillas resistentes y de poca
densidad de combustible nuclear. Durante la sinterización,
5 además, se ha observado que el agua del gel se evapora y
que las esferas de gel experimentan una contracción lineal
de alrededor de un tercio del radio de la esfera, produciendo
así un volumen vacío efectivo del 70 %.

10 En este aspecto se obtienen varias ventajas más. Las
esferas de gel sinterizadas igualan por completo las concen-
traciones de elementos pesados, no se agregan impurezas al
sistema y se consigue un excelente control del tamaño de par-
tícula, que conduce así a un mayor control de la porosidad.

15 De una forma algo similar en cuanto a la gasifica-
ción, se mezclan "ecoesferas", es decir, minúsculas esferas
huecas que presentan densidades del orden del 40 % de su den-
sidad máxima teórica, con el polvo combustible nuclear para
obtener un polvo global apropiado y una densidad "ecoesféri-
ca" caracterizada por una distribución esencialmente uniforme
de la porosidad en toda la mezcla. El polvo y la combinación
20 de "ecoesferas" se compacta en la forma de pastillas habitual
y se calcina para sinterizar el polvo combustible y volatili-
zar las "ecoesferas" con objeto de obtener un producto de ba-
ja densidad y apropiadamente resistente.

25 Debido a que las "ecoesferas" se forman habitualmen-
te a partir de vidrio, cerámica o materiales epoxi, existe
el posible inconveniente de que queden contaminantes resi-
duales en la pastilla calcinada. Por consiguiente, parece
que las "ecoesferas" epoxi son adecuadas especialmente para
esta aplicación porque, a temperaturas elevadas, el producto
30 epoxi se volatiliza formando monóxido de carbono (CO) y dió-



1 xido de carbono (CO₂) y dejando solamente carbono como posi-
ble contaminante en las pastillas de combustible.

5 Además, ahora se ha encontrado que no solamente se
establece una porosidad más uniforme en las pastillas de
combustible sino que también la densidad del producto sinte-
rizado puede ser controlada mediante la selección apropiada
de los tamaños de las esferas.

10 Las diversas propiedades de novedad que caracterizan
la invención están indicadas en especial en las reivindicacio-
nes del apéndice que forman parte de esta memoria. Para una
mayor comprensión de la invención, de sus ventajas operativas
y de los objetivos específicos conseguidos mediante su utili-
zación, remitimos a la descripción adicional en la que se
15 ilustra y describe una realización preferida de la invención.

DESCRIPCION DE LAS REALIZACIONES PREFERIDAS

Para una apreciación más completa de la invención,
se describe a continuación un ejemplo específico de la prácti-
ca de la misma.

20 Se mezcla un polvo cerámico de UO₂ Grace-Davison
con cantidades predeterminadas de esferas de gel de UO₂. En
este aspecto, las esferas de gel utilizadas tienen un diáme-
tro de 800 micras aproximadamente en un grupo de ensayos y
un diámetro de 30 micras aproximadamente en otro grupo de en-
sayos. Las pastillas se comprimen a presiones que oscilan
25 entre 10.000 y 40.000 psi (703 y 2812 kg/cm²) antes de la
sinterización. Después se sinterizan las pastillas y, como
parte del proceso de sinterización, alrededor del 30 % de la
sustancia en forma de gel que circunda al UO₂ se evapora o
30 disipa, dejando una estructura porosa en la pastilla sinteri-



1 zada. Los datos experimentales para estas pastillas están re-
sumidos a continuación:

TABLA I

Datos de las pastillas

5

Nº de la pastilla	Esferas, % en peso	Tamaño de las esferas (micras)	Presión de prensado, psi (kg/cm ²)	Densidad en crudo (% D.T.)	Densidad sinterizada (% D.T.)
4	20	800	10.000(703)	41,3	-
5	20	800	10.000(703)	40,0	-
6	20	800	10.000(703)	39,7	-
7	20	800	10.000(703)	38,8	-
8	20	800	10.000(703)	37,6	-
9	20	800	10.000(703)	39,1	-
10	20	800	10.000(703)	40,2	-
11	20	800	10.000(703)	43,5	-
16	20	800	10.000(703)	36,4	74,3
17	20	800	10.000(703)	39,8	74,5
18	20	800	20.000(1406)	42,8	83,5
19	20	800	20.000(1406)	44,4	85,3
20	20	30	20.000(1406)	42,0	81,7
21	20	30	20.000(1406)	41,8	80,4
22	20	30	30.000(2109)	47,4	84,8
12	10	800	20.000(1406)	44,3	76,5
13	10	800	20.000(1406)	44,3	85,2
14	10	800	30.000(2109)	48,3	86,6
15	10	800	30.000(2109)	47,2	85,2
3	20	800	40.000(2812)	47,2	-
2	0	-	20.000(1406)	-	-
1	0	-	20.000(1406)	47,0	-

30

D.T. es la densidad teórica.



1 Las pastillas producidas en la forma descrita demues-
tran que mediante esta técnica se obtienen pastillas de baja
densidad y que puede hacerse uso de la cantidad y tamaño de
5 las esferas de gel así como de la presión de prensado para
variar la densidad de las pastillas. En este aspecto, las es-
feras de gel adecuadas para uso en esta invención están des-
critas con más detalle en la obra Sol-Gel Processes for Ce-
ramic Nuclear Fuels, International Atomic Energy Agency, Viena,
1968.

10 Un montaje ceramográfico esmerilado pero no pulimenta-
do de una pastilla nº 5 a 15 aumentos indica que la distri-
bución de esferas no parece ser muy homogénea. Esta falta apa-
rente de homogeneidad, sin embargo, fué atribuída a no haber
realizado un esfuerzo especial para homogeneizar las esferas
15 en el polvo de UO_2 . La misma pastilla, pulida y estudiada a
100 aumentos mostró una gran proporción de crecimiento de gra-
nos en una esfera de alta densidad que había sido incrustada
en la matriz de la pastilla de UO_2 . Esta estructura de grano
grande no es común a las esferas normales de UO_2 sol-gel. Sin
20 embargo, se cree que esto ocurrió porque la temperatura de
sinterización de la pastilla nº 5 ($1650^{\circ}C$) era muy superior
a la normalmente utilizada en los procesos de sol-gel (apro-
ximadamente ($1200^{\circ}C$)).

25 Con respecto al uso de ecoesferas en lugar de las esfe-
ras de gel antes consideradas, debe observarse que estas esfe-
ras huecas de vidrio, cerámica o epoxi son manufacturadas por
Emerson and Cuming, Inc. de Canton, Massachusetts. Estas eco-
esferas, además, son completamente huecas y presentan densi-
dades del orden del 40 % de la densidad teórica.

30 Las esferas epoxi parecen ser las más adecuadas para



1 esta invención porque, a temperaturas de sinterización eleva-
das, el epoxi debe descomponerse formando monóxido de carbono
y dióxido de carbono volátiles, quedando solamente carbono co-
mo posible contaminante en la estructura porosa. Además, si
5 se utiliza nitrógeno gaseoso en el proceso de sinterización y
hay presente un gran contenido de carbono en la estructura de
la pastilla, entonces también es posible la formación de ni-
truro.

En resumen, la Patente de Invención que se solicita
10 deberá recaer sobre las siguientes:

REIVINDICACIONES

1. Un método de producción de una pastilla cerámica
sinterizada con una porosidad controlada, que comprende las
operaciones de mezclar un polvo combustible nuclear cerámico
15 con una cantidad predeterminada de esferas, prensar dicha mez-
cla de combustible nuclear cerámico y esferas formando una
pastilla y sinterizar dicha pastilla prensada para disipar
por lo menos una parte de dichas esferas con objeto de produ-
cir una porosidad controlada dentro de dicha pastilla.

2. Un método según la Reivindicación 1, donde la ope-
20 ración de mezcla comprende además la operación de mezclar un
polvo combustible nuclear cerámico con una cantidad predeter-
minada de esferas de gel de dióxido de uranio.

3. Un método según la Reivindicación 1, donde dicha
operación de mezcla comprende además la operación de mezclar
25 un polvo combustible nuclear cerámico con una cantidad pre-
determinada de esferas epoxi huecas.

4. Un método según la Reivindicación 2, donde dicha
operación de mezcla comprende además la operación de mezclar
30



1 un polvo combustible nuclear cerámico de dióxido de uranio
con una cantidad predeterminada de esferas de gel de dióxido
de uranio.

5 5. Se reivindica por último como objeto sobre el
que ha de recaer la patente de invención que se solicita:
UN METODO DE PRODUCCION DE UNA PASTILLA CERAMICA SINTERIZA-
DA CON UNA POROSIDAD CONTROLADA.

10 Todo conforme queda descrito y reivindicado en la
presente memoria descriptiva que consta de once páginas me-
canografiadas.

Madrid, 30 de Octubre de 1.975

BERNARDO UNGRIA

P.P.

15

20

25

30