

MINISTERIO DE INDUSTRIA Y ENERGIA

Registro de la Propiedad Industrial



ESPAÑA

Concedido el Registro de acuerdo con los datos que figuran en la presente descripción y según el contenido de la Memoria adjunta.

19 ES

11
21

22

480546

NUM.	480546
FECHA DE PRESENTACION	14 Mayo 1978

10 A1

PATENTE DE INVENCION

30 PRIORIDADES: 31 NUMERO 19635/78		32 FECHA 15 de mayo de 1.978	33 PAIS Inglaterra
47 FECHA DE PUBLICIDAD	51 CLASIFICACION INTERNACIONAL G21C 21/04	62 PATENTE DE LA QUE ES DIVISIONARIA	
64 TITULO DE LA INVENCION Procedimiento para la producción de pellets de combustible nuclear.			
71 SOLICITANTE (S) BRITISH NUCLEAR FUELS LIMITED			
DOMICILIO DEL SOLICITANTE Risley, Warrington, Cheshire, Inglaterra.			
72 INVENTOR (ES) Gregg Glenn Butler.			
73 TITULAR (ES)			
74 REPRESENTANTE GOMEZ-ACEBO.			

Esta invención se relaciona con la producción de pellets de combustible nuclear.

5 Los pellets de combustible nuclear, pueden producirse a partir de óxidos en polvo de uranio, plutonio o torio, o mezclas de estos óxidos, por granulación de los polvos seguida por prensado de los gránulos en compactos y sinterización de dichos compactos. Los aditivos son frecuentemente mezclados con polvos de óxido por una variedad de razones, por ejemplo, para el control de la porosidad de los pellets sinterizados, para actuar como un aglutinante para los compactos o para ayudar a la sinterización. Los aditivos pueden también utilizarse para el control del tamaño del grano en los pellets sinterizados, particularmente para incrementarlo, y esto es ahora considerado deseable, porque incrementa la duración de la difusión atómica del gas, y por lo tanto, reduce el producto de fisión gaseosa desprendido de los pellets de combustible durante la irradiación.

20 De acuerdo con la invención, la producción de pellets de combustible nuclear, que consisten esencialmente de óxidos de uranio o mezclas de estos óxidos con óxidos de torio o plutonio que han sido formados en compactos y sinterizados, se caracteriza en que el pentóxido de niobio se incluye en el compacto de óxido en cantidad suficiente para fomentar el crecimiento del grano en el compacto de óxido, durante la sinterización, y se ajustan la sinterización y otros parámetros del proceso, de modo que ninguna impureza sea atrapada en los pellets de sinterización, que evitaría la obtención de una gran densidad matriz y de un gran tamaño de grano.

30 La retención de algunas impurezas, notablemente carbón, que forman compuestos gaseosos tras reaccionar

dentro de los pellets, conduce al desarrollo de la porosidad dentro de los pellets, que evitaría la obtención de una gran densidad matriz, reduciendo el tamaño de grano obtenible, y puede conducir a la fragmentación del pellet. Puesto que el pentóxido de niobio, al ser un promotor del crecimiento del grano, también incrementa la velocidad de sinterización, el tiempo antes de cerrar los poros durante la sinterización, puede ser insuficiente para separar impureza y aunque la eliminación completa de impurezas no es esencial, es esencial la separación hasta niveles muy bajos, es decir, menos de 10 ppm en peso. La velocidad de sinterización y el proceso de separación de impurezas, pueden ser controlados por control de la atmósfera de sinterización, en particular el potencial de oxígeno y la velocidad de calentamiento durante la sinterización.

El nivel en el cual el potencial de oxígeno de la atmósfera de sinterización es controlado, puede afectar a la densidad de la matriz y al tamaño de grano, así como a la reproductibilidad de los resultados. La extensión del efecto depende no solamente del potencial de oxígeno absoluto, sino de la densidad de los compactos antes de la sinterización, del tamaño de los compactos y de la velocidad de calentamiento durante la sinterización, lo que es indicativo de que opera un mecanismo de atrapado de impurezas.

Un importante efecto de la adición de pentóxido de niobio de acuerdo con la invención, es que no incrementa significativamente la velocidad de difusión de los productos de fisión, especialmente los gases, en la matriz cerámica de los pellets de combustible. Dicho incremento, compensaría por supuesto la ventaja que puede obtenerse por tamaños de grano grandes.

güientes resultados.

	<u>Vpm CO₂</u>	<u>% TD</u>	<u>Tamaño de grano (micras)</u>
	1.000	94,0	12
	7.500	98,5	42
5	15.000	99,0	58

Se ha encontrado también, que el límite superior del contenido de humedad varia con diferentes parámetros.

Podrán obtenerse altas densidades y grandes tamaños de grano a superiores contenidos en humedad por:

- 10 a) Reducción de la densidad del compacto verde (no sinterizado), es decir de 5,75 g/cm³ a 5,2 g/cm³.
- b) Reducción de la velocidad de calentamiento durante el sinterizado, es decir de 300°C por hora a 50°C por hora.

15 De todos los resultados anteriores, resulta que, si el tamaño de grano presente deseado de aproximadamente 40 micras, ha de ser alcanzado por adición de 0,5 % en peso de pentóxido de niobio al combustible nuclear y utilizando el tiempo y temperatura de sinterizado practico y economico de 4 horas a 1.700°C, el nivel de humedad en una atmósfera de sinterización de hidrógeno, deberá mantenerse entre 1.000 y 20 9.000 vpm. Sin embargo, se ha considerado que, para una microestructura más satisfactoria, el valor óptimo dentro de la gama es de 5.000-7.000 vpm para agua en atmósfera de hidrógeno y para una de dióxido de carbono en atmósfera de hidrógeno, 25 en contenido óptimo en dióxido de carbono debe ser de 7.000-8.000 vpm

Variando la cantidad añadida de pentóxido de

niobio, se afecta demasiado a los resultados. Los pellets de combustible han sido producidos con adiciones de pentóxido de niobio tan bajas como 0,25 % en peso. Se produce fácilmente un tamaño de grano de 25 micras en sinterización durante 4 horas a 1.700°C en una atmósfera de hidrógeno que contiene 6.000 vpm de vapor de agua. Con un incremento en la adición de pentóxido de niobio a 0,35 % en peso, se producen tamaños de grano en exceso de 30 micras bajo las mismas condiciones. Se obtienen resultados óptimos a 1.700°C con adiciones de 0,5% en peso de pentóxido de niobio. Con un incremento en el tiempo y temperatura de sinterización, es de esperar sin embargo que se requiera menos pentóxido de niobio para producir un tamaño de grano dado.

Puede introducirse una porosidad controlada en los pellets sinterizados por la inclusión de un poro fugitivo formado en el compacto, como se describe, por ejemplo en la memoria de la patente británica No. 1.461.263.

Descrita suficientemente la naturaleza del invento, así como la manera de realizarse en la práctica, debe hacerse constar que las disposiciones anteriormente indicadas son susceptibles de modificaciones de detalle en cuanto no alteren su principio fundamental.

REIVINDICACIONES

5 1.- Procedimiento para la producción de pellets de combustible nuclear, que consisten esencialmente de óxidos de uranio o mezclas de estos óxidos con óxidos de torio o plutonio, que han sido formados en un compacto y sinterizados; caracterizado porque el pentóxido de niobio se incluye en el compacto de óxido en cantidad suficiente para fomentar el crecimiento del grano en el compacto de óxido durante la sinterización, se ajustan la sinterización y otros parámetros del proceso, de modo que ninguna impureza sea atrapada en los pellets de sinterización, que evitaria la obtención de una gran densidad matriz y de un gran tamaño de grano.

15 2.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque los compactos son sinterizados en una atmósfera que tiene un potencial de oxígeno controlado.

20 3.- Procedimiento según la reivindicación 2, caracterizado porque la atmósfera es hidrógeno que contiene al menos 1.000 partes por millón en volumen y no más de 9.000 partes por millón en volumen de vapor de agua o dióxido de carbono.

4.- Procedimiento según cualquiera de las reivindicaciones anteriores, caracterizado porque la cantidad de pentóxido de niobio añadida está comprendida entre 0,2 % y 0,6 % en peso del peso de polvo de óxido.

25 5.- Procedimiento según la reivindicación 4, caracterizado porque la cantidad de pentóxido de niobio añadida está comprendida entre 0,3 % y 0,5 % en peso del peso de polvo de óxido.

6.- Procedimiento para la producción de pellets de combustible nuclear, tal y como queda sustancialmente descrito en la presente Memoria.

5 Esta Memoria consta de 7 hojas escritas a máquina por una sola cara.

Madrid, 14 Mayo 1979

BRITISH NUCLEAR FUELS LIMITED.

J. M. GOMEZ ACEBO Y PARRA
p. p. Firmado: J. Suarez Diaz

