



(12)

CERERE DE BREVET DE INVENȚIE

(21) Nr. cerere: a 2020 00363

(22) Data de depozit: 20/08/2018

(30) Prioritate:
21/08/2017 CN 201710719413.9

(41) Data publicării cererii:
30/03/2021 BOPI nr. 3/2021

(86) Cerere internațională PCT:
Nr. CN 2018/101376 20/08/2018

(87) Publicare internațională:
Nr. WO 2019/037688 28/02/2019

(71) Solicitant:
• CHINA NUCLEAR POWER
TECHNOLOGY RESEARCH INSTITUTE
CO., LTD, ROOM 1502-1504, 1506 FLOOR
15, SCIENCE BUILDING, WEST SHANGBU
ZHONG ROAD, FUTIAN DISTRICT
SHENZHEN, GUANGDONG, CN;
• CHINA GENERAL NUCLEAR POWER
CORPORATION, FLOOR 33 SOUTH
BUILDING, CGN TOWER, 2002 SHENNAN
BOULEVARD, FUTIAN DISTRICT
SHENZHEN, GUANGDONG, CN;
• CGN POWER CO., LTD, FLOOR 18
SOUTH BUILDING, CGN TOWER, 2002
SHENNAN BOULEVARD, FUTIAN
DISTRICT SHENZHEN, GUANGDONG, CN

(72) Inventatori:
• XUE JIAXIANG, ROOM 1502-1504, 1506
FLOOR 15, SCIENCE BUILDING, WEST
SHANGBU ZHONG ROAD, FUTIAN
DISTRICT SHENZHEN, GUANGDONG, CN;
• ZHANG XIANGSHENG, ROOM 1502-1504,
1506 FLOOR 15, SCIENCE BUILDING,
WEST SHANGBU ZHONG ROAD, FUTIAN
DISTRICT SHENZHEN, GUANGDONG, CN;
• LIU TONG, ROOM 1502-1504, 1506
FLOOR 15, SCIENCE BUILDING, WEST
SHANGBU ZHONG ROAD, FUTIAN
DISTRICT SHENZHEN, GUANGDONG, CN;

• LI RUI, ROOM 1502-1504, 1506 FLOOR 15
SCIENCE BUILDING, WEST SHANGBU
ZHONG ROAD, FUTIAN DISTRICT
SHENZHEN, GUANGDONG, CN;
• YAN YAN, ROOM 1502 - 1504, 1506
FLOOR 15, SCIENCE BUILDING, WEST
SHANGBU, ZHONG ROAD, FUTIAN
DISTRICT SHENZHEN, GUANGDONG, CN;
• LI SIGONG, ROOM 1502-1504, 1506
FLOOR 15, SCIENCE BUILDING, WEST
SHANGBU ZHONG ROAD, FUTIAN
DISTRICT SHENZHEN, GUANGDONG, CN;
• HUANG HUAWEI, ROOM 1502-1504, 1506
FLOOR 15, SCIENCE BUILDING, WEST
SHANGBU ZHONG ROAD, FUTIAN
DISTRICT SHENZHEN, GUANGDONG, CN;
• GONG XING, ROOM 1502-1504, 1506
FLOOR 15, SCIENCE BUILDING, WEST
SHANGBU ZHONG ROAD, FUTIAN
DISTRICT SHENZHEN, GUANGDONG, CN;
• REN QISEN, ROOM 1502-1504, 1506
FLOOR 15, SCIENCE BUILDING, WEST
SHANGBU ZHONG ROAD, FUTIAN
DISTRICT SHENZHEN, GUANGDONG, CN;
• YAN JUN, ROOM 1502-1504, 1506 FLOOR
15, SCIENCE BUILDING, WEST SHANGBU
ZHONG ROAD, FUTIAN DISTRICT
SHENZHEN, GUANGDONG, CN;
• LU ZHIWEI, ROOM 1502-1504, 1506
FLOOR 15, SCIENCE BUILDING, WEST
SHANGBU ZHONG ROAD, FUTIAN
DISTRICT SHENZHEN, GUANGDONG, CN

(74) Mandatar:
ZMP INTELLECTUAL PROPERTY S.R.L.,
STR.C.A.ROSETTI NR.17, ET.3,
BIROUL 314, SECTOR 2, BUCUREȘTI

(54) PELET DE CARBURĂ DE URANIU, METODĂ DE PREPARARE A ACESTUIA ȘI TIJĂ DE COMBUSTIBIL

(57) Rezumat:

Invenția se referă la un pelet de carbură de uraniu, la o metodă de preparare a acestuia și la o tijă de combustibil, invenția având aplicabilitate în domeniul reactorilor nucleare. Pelet de carbură de uraniu conform invenției are raportul atomic dintre uraniu, carbon și azot de 1: (0,8 - 1,5); (0 - 0,2). Metoda de preparare conform invenției are următoarele etape:

a) cântărirea pulberii de nitru de uraniu și a unei pulberi de carbon care poate fi negru de fum și/sau grafit, toată pulberea având o puritate > 95% și dimensiunea particulelor cuprinsă între 0,1...50 μm, cele două pulberi fiind într-un raport molar de 1: 0,8...1,5, și amestecarea lor uniformă într-un solvent, care poate fi etanolul sau acetona, până la obținerea unei suspensii,

b) uscarea suspensiei pentru a se obține amestecul de pulbere,

c) pre - presarea amestecului de pulbere sub o presiune de 5...30 Mpa și obținerea unui corp crud cu o densitate de 50% sau mai mare și

d) sinterizarea corpului crud obținut într-un cuptor fără presiune la temperatură ridicată, încălzirea la 1300...1600°C cu o rată de 5...30°C/minut în mediu vidat cu menținere timp de 0,5...4 ore urmată de încălzirea la 1700...2000°C la o rată de 5...30°C/minut în atmosferă inertă de argon cu menținere timp de 1...14 ore, pentru a obține o densitate a peletului de carbură ≥ 95%. Tijă de combustibil conform invenției care include peletul de carbură de uraniu obținut prin metoda de mai sus.

Revendicări: 10

Cu începere de la data publicării cererii de brevet, cererea asigură, în mod provizoriu, solicitantului, protecția conferită potrivit dispozițiilor art.32 din Legea nr.64/1991, cu excepția cazurilor în care cererea de brevet de invenție a fost respinsă, retrasă sau considerată ca fiind retrasă. Întinderea protecției conferite de cererea de brevet de invenție este determinată de revendicările conținute în cererea publicată în conformitate cu art.23 alin.(1) - (3).



Descriere

Pelet de carbură de uraniu, metodă de preparare a acestuia și tijă de combustibil

Domeniul tehnic

[0001] Invenția se referă la domeniul tehnic al reactoarelor nucleare, în special la un pelet de carbură de uraniu, la o metodă de preparare a acestuia și la o tijă de combustibil.

Stadiul tehnicii

[0002] Combustibilul nuclear PWR existent în comerț este în principal peleți de dioxid de uraniu (UO₂). Cu toate acestea, peletul UO₂ are o conductivitate termică scăzută și o temperatură centrală ridicată, o cantitate mare de căldură de dezintegrare este încă stocată în peleți chiar dacă reactorul este închis în siguranță atunci când se produce un accident, căldura reziduală este dificil de evacuat în condiții de pierdere a fluidului de răcire, prin urmare temperatura armăturii a tijei de combustibil este crescută rapid la un nivel periculos. Materialul de aliaj de zirconiu existent are o reacție zirconiu-apă evidentă la o temperatură mai mare de 650°C datorită proprietății chimice a acestuia. Reacția este o reacție exotermă, care eliberează o cantitate mare de hidrogen, și deteriorează grav siguranța unui ansamblu de combustibil, ceea ce poate cauza consecințe catastrofale precum topirea miezului reactorului, explozia severă de hidrogen sau altele asemenea.

[0003] Dacă se utilizează peleți de carbură de uraniu (UC), conductivitatea termică a acestora este mai mare și densitatea uraniului este îmbunătățită, ceea ce are avantaje evidente în ceea ce privește economia și siguranța.

[0004] O preparare convențională a peletului de carbură de uraniu include în principal două etape. În prima etapă, pulberea de carbură de uraniu este sintetizată și, în general, pulberea de carbură de uraniu este sintetizată prin reducerea carbotermică a dioxidului de uraniu la o temperatură ridicată; în a doua etapă, peletul este densificat și sinterizat și, în general, se adoptă o sinterizare fără presiune adăugată cu un ajutor de sinterizare sau se adoptă o sinterizare prin presare la cald, asistată de un câmp extern.

[0005] Prepararea convențională a peletului de carbură de uraniu are următoarele probleme:

[0006] 1, Atomii de oxigen sunt dizolvați cu ușurință în pulberea de carbură de uraniu, iar atomii de oxigen dizolvați pot stabiliza UC₂ și descompune U₂C₃. Concentrația oxigenului soluției solide în carbura de uraniu poate atinge 12,5%, ceea ce poate reduce conductivitatea termică a carburii de uraniu. Carbura de uraniu este oxidată cu ușurință la UO₂ sau alt oxid de uraniu atunci când temperaturile depășesc 200°C sau presiunea parțială a oxigenului depășește 20 kPa. Prin urmare, prepararea și amestecarea carburii de uraniu trebuie să fie efectuată într-un mediu plin de argon, și este necesară, de asemenea, o puritate ridicată a argonului.

[0007] 2, Cu toate că adăugarea ajutorului de sinterizare pentru a sinteriza peletul de carbură de uraniu este favorabil densificării, punctul de topire al peletului va fi evident redus și siguranța va fi redusă.

[0008] 3, Densificarea peletului de carbură de uraniu poate fi realizată cu ușurință prin adoptarea sinterizării prin presare la cald, asistată de un câmp extern. Cu toate acestea, un singur pelet poate fi sinterizat la un moment în fiecare cuptor prin această metodă, cu eficiență extrem de scăzută, consum mare de energie, și cerințe ridicate de echipament. Prin urmare, metoda nu este adecvată pentru producția industrială de masă.

Expunerea invenției

Problema tehnică

[0009] O problemă tehnică ce urmează să fie rezolvată în invenție este de a furniza o metodă de preparare a unui pelet de carbură de uraniu în care o sinteză de reacție și o densificare de sinterizare sunt completate într-o etapă și produsele pot fi produse industrial în lot, și un pelet de carbură de uraniu preparat și o tijă de combustibil cu pelet de carbură de uraniu.

Soluțiile problemei

Soluții tehnice

[0010] O soluție tehnică adoptată de invenție pentru rezolvarea problemei tehnice este aceea de a furniza o metodă de preparare a unui pelet de carbură de uraniu, unde metoda de preparare include următoarele etape:

[0011] S1, cântărirea unei pulberi de nitrură de uraniu și a unei surse de carbon în conformitate cu un raport molar de 1:0,8-1,5, adăugarea pulberii de nitrură de uraniu și a sursei de carbon într-un solvent, și amestecarea uniformă pentru a forma o suspensie;

[0012] S2, uscarea suspensiei pentru a obține pulbere amestecată;

[0013] S3, presarea pulberii amestecate într-un corp crud cu o densitate de 50% sau mai mare;

[0014] S4, realizarea unei sinterizări fără presiune la temperatură înaltă pentru a obține peletul de carbură de uraniu cu o densitate $\geq 95\%$.

[0015] În metoda de preparare conform prezentei invenții, în etapa S1, pulberea de nitrură de uraniu are o puritate mai mare de 95% și o dimensiune a particulelor de 0,1 - 50 μm ;

[0016] sursa de carbon este negru de fum și/sau grafit, având o puritate mai mare de 95% și o dimensiune a particulelor de 0,1 - 50 μm .

[0017] În metoda de preparare conform prezentei invenții, în etapa S1, solventul este etanolul sau acetona.

[0018] În metoda de preparare conform prezentei invenții, etapa S3 include următoarele etape:

[0019] S3.1, pre-presarea și turnarea pulberii amestecate sub o presiune de 5 - 30 Mpa;

[0020] S3.2, sigilarea în vid a unui corp crud pre-presat și turnat, realizarea unei presări la presiune înaltă pe un corp crud sigilat sub o presiune de 150 - 300 Mpa și obținerea unui corp crud cu o densitate de 50% sau mai mare după menținerea presiunii.

[0021] În metoda de preparare conform invenției, în etapa S3.1, pulberea amestecată este introdusă într-o matriță din oțel pentru pelet pentru pre-presare și turnare; și

[0022] în etapa S3.2, corpul crud pre-presat și turnat este sigilat în vid cu o hârtie impregnată cu ulei, iar corpul crud sigilat este supus unei presări la presiune înaltă folosind o presă izostatică rece.

[0023] În metoda de preparare conform invenției, etapa S4 include următoarele etape:

[0024] S4.1, punerea corpului crud obținut în etapa S3 într-un cuptor fără presiune la temperatură ridicată, încălzirea la 1300°C - 1600°C la o rată de 5 - 30°C/min în mediu vidat, și menținerea temperaturii timp de 0,5 - 4 ore; și

[0025] S4.2, încălzirea la 1700°C - 2000°C la o rată de 5 - 30°C/min în atmosferă inertă și menținerea temperaturii timp de 1 - 14 ore pentru a obține peletul de carbură de uraniu.

[0026] În metoda de preparare conform prezentei invenții, în etapa S4.2, un gaz de argon este introdus în cuptorul fără presiune la temperatură înaltă și este menținut la o presiune atmosferică pentru a forma atmosfera inertă.

[0027] Conform metodei de preparare, raportul atomic dintre uraniu, carbon și azot în peletul de carbură de uraniu obținut este de 1:(0,8-1,5):(0-0,2).

[0028] Invenția prevede în plus un pelet de carbură de uraniu preparat prin oricare dintre metodele de preparare de mai sus.

[0029] Invenția furnizează suplimentar o tijă de combustibil incluzând peletul de carbură de uraniu de mai sus.

Efecte benefice ale invenției

Efecte benefice

[0030] Invenția are următoarele efecte benefice: folosirea nitrurii de uraniu și a sursei de carbon ca materii prime, și cele două procese de reacție de reducere carbotermică și sinterizare cu densificare sunt obținute sub sinterizare fără presiune la temperatură ridicată, astfel încât nu este necesar un procedeu de sinterizare prin presare la cald cu eficiență scăzută a producției, și nu este necesară introducerea unui ajutor de sinterizare, evitând astfel problema reducerii punctului de topire al unui pelet; se poate obține sinterizarea în lot, consumul de energie este redus, iar metoda este adecvată pentru producția industrială a peleților de combustibil.

Descrierea detaliată a prezentei invenții

Variante de realizare

[0031] O metodă pentru prepararea peleților de carbură de uraniu include următoarele

etape:

[0032] S1, cântărirea pulberii de nitrură de uraniu și a sursei de carbon în conformitate cu un raport molar de 1:0,8-1,5, adăugarea acestora într-un solvent, și amestecarea uniformă a amestecului pentru a forma o suspensie.

[0033] Unde puritatea pulberii de nitrură de uraniu (UN) este mai mare de 95%, iar dimensiunea particulelor de pulbere de UN este de 0,1 - 50 μm . Sursa de carbon (C) este negru de fum și/sau grafit, puritatea sursei de carbon este mai mare de 95%, iar dimensiunea particulelor sursei de carbon este de 0,1 - 50 μm .

[0034] Solventul poate fi etanol sau acetonă. Pulberea de nitrură de uraniu și sursa de carbon sunt adăugate la solvent, astfel încât pulberea de nitrură de uraniu și sursa de carbon sunt complet amestecate și distribuite în mod uniform.

[0035] S2, uscarea suspensiei pentru a obține pulbere amestecată.

[0036] Suspensia obținută poate fi uscată prin evaporare rotativă pentru a obține pulberea amestecată uscată. Timpul de uscare prin evaporare poate fi reglat și controlat în funcție de condițiile reale.

[0037] S3, presarea pulberii amestecate într-un corp crud cu o densitate de 50% sau mai mare.

[0038] Etapa S3 poate include suplimentar următoarele etape:

[0039] S3.1, pre-presarea și turnarea pulberii amestecate sub presiune de 5 - 30 Mpa.

[0040] S3.2, sigilarea în vid a corpului crud presat și turnat, realizarea unei presări la presiune ridicată pe corpul crud sigilat sub o presiune de 150 - 300 Mpa și obținerea corpului crud cu o densitate de 50% sau mai mare după menținerea presiunii.

[0041] Timpul de menținere a presiunii poate depinde de circumstanțe, cum ar fi 5 minute, cu un scop principal de a stabiliza forma corpului crud presat.

[0042] În mod specific, în etapa S3.1, pulberea amestecată este plasată într-o matriță din oțel pentru pelet, și pentru a realiza pre-presarea și turnarea poate fi aplicată o presiune de 10 MPa. În etapa S3.2, corpul crud pre-presat și turnat este sigilat în vid cu o hârtie impregnată în ulei, iar corpul crud pre-presat și turnat este supus unei presări la presiune înaltă, cum ar fi 200 Mpa folosind o presă izostatică rece.

[0043] S4, realizarea unei sinterizări fără presiune la temperatură înaltă pentru a obține

peletul de carbură de uraniu cu o densitate $\geq 95\%$.

[0044] Etapa S4 poate include suplimentar următoarele etape:

[0045] S4.1, punerea corpului crud obținut în etapa S3 într-un cuptor fără presiune la temperatură ridicată, încălzirea acestuia la 1300°C - 1600°C la o rată de $5 - 30^{\circ}\text{C}/\text{min}$ în mediu vidat și menținerea temperaturii pentru 0,5 - 4 ore, unde vidul este menținut de la un capăt la celălalt al întregii perioade.

[0046] Reacția de reducere carbotermică a corpului crud este realizată în principal în etapa S4.1, iar reacția este efectuată complet și terminată prin menținerea temperaturii, astfel încât să formeze carbură de uraniu.

[0047] S4.2, încălzirea la 1700°C - 2000°C la o rată de $5 - 30^{\circ}\text{C}/\text{min}$ în atmosferă inertă și menținerea temperaturii timp de 1 - 14 ore pentru a obține peletul de carbură de uraniu.

[0048] După ce se termină menținerea temperaturii, peletul de carbură de uraniu poate fi extras după răcire la o temperatură a camerei.

[0049] Această etapă realizează în primul rând densificarea corpului crud pentru a forma un pelet având o densitate predeterminată.

[0050] Alternativ, în etapa S4.2, un gaz de argon poate fi introdus în cuptorul fără presiune la temperatură înaltă, și poate fi menținut la o presiune atmosferică pentru a forma atmosfera inertă.

[0051] În metoda de preparare conform prezentei invenții, sinterizarea fără presiune este obținută printr-o reacție in situ a nitrurii de uraniu și a sursei de carbon, iar densificarea este obținută prin soluție solidă și transfer de masă cu migrare de defect de centru de azot și carbon.

[0052] În peletul de carbură de uraniu obținut conform invenției, raportul atomic între uraniu, carbon și azot este de $1:(0,8-1,5):(0-0,2)$, iar raportul poate fi ajustat. Modurile de ajustare pentru raportul atomic între uraniu, carbon și azot includ modificarea unei dimensiuni a particulelor și a raportului de distribuție constituent al materiei prime, schimbarea unei temperaturi de reacție și a unui timp de menținere de reacție, schimbarea unei temperaturi de sinterizare și a unui timp de menținere a temperaturii de sinterizare, schimbarea unei atmosfere de sinterizare, etc.

[0053] Peletul de carbură de uraniu din prezenta invenție este preparat prin adoptarea metodei de preparare de mai sus.

[0054] Tija de combustibil din prezenta invenție include peletul de carbură de uraniu de mai sus.

[0055] Invenția este ilustrată suplimentar prin următoarele variante de realizare specifice.

[0056] Varianta de realizare 1

[0057] Se prepară peletul de carbură de uraniu cu o densitate de 98%, se cântărește în conformitate cu un raport molar de UN:C de 1:1,2, cu 249 g de pulbere de UN și 14,4 g de negru de fum.

[0058] Se acceptă etanolul ca solvent, se amestecă amestecul printr-o amestecare de tip tambur folosind o bilă de Si₃N₄ timp de 24 de ore la o viteză de 120 de rotații pe minut, și se usucă suspensia obținută prin evaporare rotativă pentru a obține o pulbere amestecată care este amestecată în mod uniform. Pulberea amestecată este pusă într-o matriță din oțel pentru pelet, pulberea amestecată este pre-presată la o presiune de 10 MPa, apoi se sigilează în vid corpul crud pre-format cu o hârtie impregnată cu ulei, apoi se utilizează o presă izostatică rece pentru a se aplica o sarcină izobară de 200 MPa pe corpul crud sigilat în vid cu hârtia impregnată cu ulei, și se menține presiunea la 200 MPa timp de 5 minute, permițând ca o densitate inițială a corpului crud al peletului să ajungă la 50% sau mai mult.

[0059] Se scoate corpul crud și acesta este introdus într-un cuptor fără presiune la temperatură ridicată pentru sinterizare în reacție. Cu sinterizarea fără presiune, în prima etapă de reacție, rata de încălzire este de 10°C/min, temperatura este ridicată la 1400°C și menținută timp de 1 oră. În această etapă mediul vidat trebuie să fie menținut. După ce menținerea temperaturii este terminată, se oprește vidarea, în cuptor se introduce un gaz de argon de înaltă puritate și se păstrează la o presiune atmosferică. Se încălzește la 1800°C la o rată de încălzire de 10°C/min și se menține temperatura timp de 4 ore. După ce menținerea temperaturii este terminată, se scoate peletul după răcire la temperatura camerei.

[0060] Analiza de difracție cu raze X arată că faza peletului sinterizat este carbura de

uraniu, iar vârful de difracție nu are nicio deplasare semnificativă. Testul arată că peletul de carbură de uraniu preparat prin sinterizare la o temperatură de menținere 1800°C timp de 4 ore are o densitate de 98%, o porozitate de 2%, și un diametru al porilor de 100 nm, iar porii sunt pori deschiși.

[0061] Varianta de realizare 2

[0062] Se prepară peletul de carbură de uraniu cu o densitate de 95%. Se schimbă sursa de carbon din negru de fum în Varianta de realizare 1 în grafit. Se cântărește în conformitate cu un raport molar de UN:C de 1:0,8, cu 249 g de pulbere de UN și 9,6 g de grafit.

[0063] Se prepară corpul crud în aceeași manieră ca în Varianta de realizare 1, temperatura de reacție in situ este de 1500°C și este menținută timp de 2 ore, iar temperatura de sinterizare este de 1900°C și este menținută timp de 1 oră.

[0064] Prin analiza de difracție cu raze X, faza peletului sinterizat este carbura de uraniu, iar vârful de difracție are o ușoară deplasare spre stânga, indicând existența soluției solide de azot. Testul arată că peletul de carbură de uraniu preparat prin sinterizare la o temperatură de menținere de 1900°C timp de 1 oră are o densitate de 95%, o porozitate de 5% și un diametru al porilor de 500 nm, iar porii sunt pori deschiși.

[0065] Varianta de realizare 3

[0066] Se prepară peletul de carbură de uraniu cu o densitate de 99%. Se cântărește în conformitate cu un raport molar UN:C de 1:1, cu 249 g de pulbere de UN și 12 g de grafit.

[0067] Se prepară corpul crud în aceeași manieră ca în Varianta de realizare 1, cu aceeași reacție in situ ca în Varianta de realizare 1, și se prepară peletul prin sinterizare fără presiune la 2000°C timp de 3 ore.

[0068] Analiza de difracție cu raze X arată că faza peletului sinterizat este carbura de uraniu, iar vârful de difracție nu are nicio deplasare semnificativă. Testul arată că densitatea peletului de carbură de uraniu preparat prin sinterizare menținută la o temperatură de 2000°C timp de 14 ore este de 99%, și nu există pori deschiși.

[0069] Varianta de realizare 4

[0070] Se prepară peletul de carbură de uraniu cu o densitate de 95%. Se schimbă

sursa de carbon din negru de fum din Varianta de realizare 1 în grafit. Se cântărește în conformitate cu un raport molar UN:C de 1:1,5, cu 249 g de pulbere de UN și 18 g de grafit.

[0071] Se prepară corpul crud în aceeași manieră ca în Varianta de realizare 1, temperatura de reacție in situ este de 1600°C și este menținută timp de 1,5 ore, iar temperatura de sinterizare este de 1700°C și este menținută timp de 10 ore.

[0072] Prin analiza de difracție cu raze X, faza peletului sinterizat este carbura de uraniu, iar vârful de difracție are o ușoară deplasare spre dreapta, indicând existența carbonului îmbogățit. Testul arată că peletul de carbură de uraniu preparat prin sinterizare menținut la o temperatură de 1700°C timp de 10 ore are o densitate de 95%, o porozitate de 5%, și un diametru al porilor de 200 nm, iar porii sunt pori deschiși.

[0073] Varianta de realizare 5

[0074] Se prepară peletul de carbură de uraniu cu o densitate de 97%. Se folosește negru de fum ca materie primă. Se cântărește în conformitate cu un raport molar UN:C de 1:0,9, cu 249 g de pulbere de UN și 10,8 g de negru de fum.

[0075] Se utilizează acetona ca solvent, se amestecă amestecul printr-o amestecare de tip rului folosind o bilă de SiC timp de 12 ore la viteza de 120 de rotații pe minut, și se usucă suspensia obținută prin evaporare rotativă pentru a obține pulberea amestecată care este amestecată în mod uniform. Pulberea amestecată este pusă într-o matriță din oțel pentru pelet, mai întâi pulberea amestecată este pre-presată sub presiune de 20 MPa, apoi se sigilează în vid corpul crud pre-format cu hârtie impregnată cu ulei, apoi se folosește o presă izostatică rece pentru a se aplica o sarcină izobară de 250 MPa pe corpul crud sigilat în vid cu hârtie impregnată cu ulei, și se menține presiunea la 250 MPa timp de 5 minute, permițând ca o densitate inițială a corpului crud al peletului să ajungă la 50% sau mai mult.

[0076] Se scoate corpul crud și acesta este introdus într-un cuptor fără presiune la temperatură ridicată pentru sinterizare în reacție. Cu sinterizarea fără presiune, în prima etapă de reacție, rata de încălzire este de 20°C/min, temperatura este crescută la 1550°C și este menținută timp de 0,5 ore. În această etapă mediul vidat trebuie să fie menținut. După ce menținerea temperaturii este terminată, se oprește vidarea, în cuptor

se introduce un gaz de argon de înaltă puritate și acesta se menține la o presiune atmosferică. Se încălzește la 1900°C la o rată de încălzire de 20°C/min, și se menține temperatura timp de 8 ore. După ce menținerea temperaturii este terminată, se scoate peletul după răcire la temperatura camerei.

[0077] Analiza de difracție cu raze X arată că faza peletului sinterizat este carbura de uraniu, iar vârful de difracție nu are nicio deplasare semnificativă. Testul arată că peletul de carbură de uraniu preparat prin sinterizare menținută la o temperatură de 1800°C timp de 8 ore are o densitate de 97%, o porozitate de 3% și un diametru al porilor de 300 nm, iar porii sunt pori deschiși.

[0078] Varianta de realizare 6

[0079] Se prepară peletul de carbură de uraniu cu o densitate de 100%. Se folosește negru de fum ca materie primă. Se cântărește în conformitate cu un raport molar UN:C de 1:1,1, cu 249 g de pulbere de UN și 13,2 g de negru de fum.

[0080] Se prepară corpul crud în aceeași manieră ca în Varianta de realizare 5, temperatura de reacție in situ este de 1600°C și menținută timp de 2 ore, iar temperatura de sinterizare este de 1950°C și menținută timp de 12 ore.

[0081] Analiza de difracție cu raze X arată că faza peletului sinterizat este carbura de uraniu, iar vârful de difracție nu are nicio deplasare semnificativă. Testul arată că peletul de carbură de uraniu preparat prin sinterizare menținută la o temperatură de 1950°C timp de 12 ore are o densitate de 100% și o porozitate de 0%.

[0082] Varianta de realizare 7

[0083] Se prepară peletul de carbură de uraniu cu o densitate de 95,5%. Se folosește negru de fum ca materie primă. Se cântărește în conformitate cu un raport molar UN:C de 1:1,5, cu 249 g de pulbere de UN și 18 g de negru de fum.

[0084] Se utilizează acetona ca solvent, se amestecă amestecul printr-o amestecare de tip rulou folosind o bilă de SiC timp de 24 de ore la viteza de 120 de rotații pe minut, și se usucă suspensia obținută prin evaporare rotativă pentru a obține pulberea amestecată care este amestecată în mod uniform. Pulberea amestecată este pusă într-o matriță din oțel pentru pelet, mai întâi se pre-presează sub presiunea de 15 MPa, apoi se sigilează în vid corpul crud pre-format cu hârtia impregnată cu ulei, apoi se folosește

o presă izostatică rece pentru a se aplica o sarcină izobară de 150 MPa pe corpul crud sigilat în vid cu hârtia impregnată cu ulei, și se menține presiunea la 150 MPa timp de 5 minute, permițând ca o densitate inițială a corpului crud al peletului să ajungă la 50% sau mai mult.

[0085] Se scoate corpul crud și acesta este introdus într-un cuptor fără presiune la temperatură ridicată pentru sinterizare în reacție. Cu sinterizarea fără presiune, în prima etapă de reacție, rata de încălzire este de 30°C/min, temperatura este crescută la 1600°C și este menținută timp de 2 ore. În această etapă, mediul vidat trebuie să fie menținut. După ce menținerea temperaturii este terminată, se oprește vidarea, în cuptor se introduce un gaz de argon de înaltă puritate și acesta se menține la o presiune atmosferică. Se încălzește la 1850°C la o rată de încălzire de 30°C/min și se menține temperatura timp de 6 ore. După ce menținerea temperaturii este terminată, se scoate peletul după răcire la temperatura camerei.

[0086] Prin analiza de difracție cu raze X, faza peletului sinterizat este carbura de uraniu, iar vârful de difracție este ușor deplasat spre dreapta, indicând existența carbonului îmbogățit. Testul arată că peletul de carbură de uraniu preparat prin sinterizare menținut la o temperatură de 1850°C timp de 6 ore are o densitate de 95,5% și o porozitate de 4,5.

[0087] Varianta de realizare 8

[0088] Se prepară peletul de carbură de uraniu cu o densitate de 96,5%. Se folosește negru de fum ca materie primă. Se cântărește în conformitate cu un raport molar UN:C de 1:1,3, cu 249 g de pulbere de UN și 15,6 g de negru de fum.

[0089] Se utilizează acetona ca solvent, se amestecă amestecul printr-o amestecare de tip rului folosind o bilă de Si₃N₄ timp de 18 ore la viteza de 120 de rotații pe minut și se usucă suspensia obținută prin evaporare rotativă pentru a obține pulberea amestecată care este amestecată în mod uniform. Pulberea amestecată este pusă într-o matriță din oțel pentru pelet, mai întâi se pre-presează sub presiunea de 30 MPa, apoi se sigilează în vid corpul crud pre-format cu hârtia impregnată cu ulei, apoi se folosește o presă izostatică rece pentru a se aplica o sarcină izobară de 300 MPa corpului crud sigilat în vid cu hârtia impregnată cu ulei, și se menține presiunea la 300 MPa timp de 5

minute, permițând ca o densitate inițială a corpului crud al peletului să ajungă la 50% sau mai mult.

[0090] Se scoate corpul crud și acesta este introdus într-un cuptor fără presiune la temperatură ridicată pentru sinterizare în reacție. Cu sinterizarea fără presiune, în prima etapă de reacție, rata de încălzire este de 15°C/min, temperatura este crescută la 1450°C și este menținută timp de 2,5 ore. În această etapă, mediul vidat trebuie să fie menținut. După ce menținerea temperaturii este terminată, se oprește vidarea, în cuptor se introduce un gaz de argon de înaltă puritate și acesta se menține la o presiune atmosferică. Se încălzește la 1950°C la o rată de încălzire de 15°C/min și se menține temperatura timp de 2 ore. După ce menținerea temperaturii este terminată, se scoate peletul după răcirea la temperatura camerei.

[0091] Prin analiza de difracție cu raze X, faza peletului sinterizat este carbura de uraniu, iar vârful de difracție este ușor deplasat spre dreapta, indicând existența carbonului îmbogățit. Testul arată că peletul de carbură de uraniu preparat prin sinterizare menținut la o temperatură de 1950°C timp de 2 ore are o densitate de 96,5% și o porozitate de 3,5.

[0092] Varianta de realizare 9

[0093] Se prepară peletul de carbură de uraniu cu o densitate de 96%. Se folosește negru de fum ca materie primă. Se cântărește în conformitate cu un raport molar UN:C de 1:0,8, cu 249 g de pulbere de UN și 9,6 g de negru de fum.

[0094] Se utilizează acetona ca solvent, se amestecă amestecul printr-o amestecare de tip rulou folosind o bilă de Si₃N₄ timp de 20 ore la viteza de 120 de rotații pe minut și se usucă suspensia obținută prin evaporare rotativă pentru a obține pulberea amestecată care este amestecată în mod uniform. Pulberea amestecată este pusă într-o matriță din oțel pentru pelet, mai întâi se pre-presează sub presiunea de 5 MPa, apoi se sigilează în vid corpul crud pre-format cu hârtia impregnată cu ulei, apoi se folosește o presă izostatică rece pentru a se aplica o sarcină izobară de 150 MPa corpului crud sigilat în vid cu hârtia impregnată cu ulei, și se menține presiunea la 150 MPa timp de 5 minute, permițând ca o densitate inițială a corpului crud al peletului să ajungă la 50% sau mai mult.

[0095] Se scoate corpul crud și acesta este introdus într-un cuptor fără presiune la temperatură ridicată pentru sinterizare în reacție. Cu sinterizarea fără presiune, în prima etapă de reacție, rata de încălzire este de $5^{\circ}\text{C}/\text{min}$, temperatura este crescută la 1300°C și este menținută timp de 4 ore. În această etapă, mediul vidat trebuie să fie menținut. După ce menținerea temperaturii este terminată, se oprește vidarea, în cuptor se introduce un gaz de argon de înaltă puritate și acesta se menține la o presiune atmosferică. Se încălzește la 1850°C la o rată de încălzire de $5^{\circ}\text{C}/\text{min}$ și se menține temperatura timp de 5 ore. După ce menținerea temperaturii este terminată, se scoate peletul după răcirea la temperatura camerei.

[0096] Prin analiza de difracție cu raze X, faza peletului sinterizat este carbura de uraniu, iar vârful de difracție este ușor deplasat spre stânga, indicând existența azotului de soluție solidă. Testul arată că peletul de carbură de uraniu preparat prin sinterizare menținut la o temperatură de 1850°C timp de 5 ore are o densitate de 96% și o porozitate de 4%.

[0097] Varianta de realizare 10

[0098] Se prepară peletul de carbură de uraniu cu o densitate de 98,5%. Se folosește negru de fum ca materie primă. Se cântărește în conformitate cu un raport molar UN:C de 1:1,1, cu 249 g de pulbere de UN și 13,2 g de negru de fum.

[0099] Se utilizează acetona ca solvent, se amestecă amestecul printr-o amestecare de tip rulou folosind o bilă de Si_3N_4 timp de 24 de ore la viteza de 240 de rotații pe minut și se usucă suspensia obținută prin evaporare rotativă pentru a obține pulberea amestecată care este amestecată în mod uniform. Pulberea amestecată este pusă într-o matriță din oțel pentru pelet, mai întâi se pre-presează sub presiunea de 10 MPa, apoi se sigilează în vid corpul crud pre-format cu hârtia impregnată cu ulei, apoi se folosește o presă izostatică rece pentru a se aplica o sarcină izobară de 200 MPa corpului crud sigilat în vid cu hârtia impregnată cu ulei, și se menține presiunea la 200 MPa timp de 5 minute, permițând ca o densitate inițială a corpului crud al peletului să ajungă la 50% sau mai mult.

[0100] Se scoate corpul crud și acesta este introdus într-un cuptor fără presiune la temperatură ridicată pentru sinterizare în reacție. Cu sinterizarea fără presiune, în prima

etapă de reacție, rata de încălzire este de 10°C/min, temperatura este crescută la 1350°C și este menținută timp de 4 ore. În această etapă, mediul vidat trebuie să fie menținut. După ce menținerea temperaturii este terminată, se oprește vidarea, în cuptor se introduce un gaz de argon de înaltă puritate și acesta se menține la o presiune atmosferică. Se încălzește la 1750°C la o rată de încălzire de 10°C/min și se menține temperatura timp de 13 ore. După ce menținerea temperaturii este terminată, se scoate peletul după răcirea la temperatura camerei.

[0101] După analiza de difracție cu raze X, faza peletului sinterizat este carbura de uraniu, iar vârful de difracție nu are nicio deplasare semnificativă. Testul arată că peletul de carbură de uraniu preparat prin sinterizare menținut la o temperatură de 1750°C timp de 13 ore are o densitate de 98,5% și o porozitate de 1,5%.

[0102] Descrierea de mai sus este pur și simplu o variantă de realizare a invenției și nu are intenția de a limita domeniul de aplicare al invenției. Orice structură echivalentă sau transformare a procedurii echivalentă făcută prin descrierea prezentei invenții, sau aplicația utilizată direct sau indirect în alte domenii tehnice conexe, sunt de asemenea incluse în domeniul de aplicare al protecției brevetului din prezenta invenție.

Revendicări

1. Metodă de preparare pentru un pelet de carbură de uraniu, care cuprinde următoarele etape:

S1, cântărirea unei pulberi de nitrură de uraniu și a unei surse de carbon în conformitate cu un raport molar de 1:0,8-1,5, adăugarea pulbereii de nitrură de uraniu și a sursei de carbon într-un solvent și amestecarea uniformă pentru a forma o suspensie;

S2, uscarea suspensiei pentru a obține o pulbere amestecată;

S3, presarea pulberii amestecate într-un corp crud cu o densitate de 50% sau mai mare; și

S4, efectuarea unei sinterizări fără presiune la temperatură înaltă pentru a obține peletul de carbură de uraniu cu o densitate $\geq 95\%$.

2. Metodă de preparare pentru peletul de carbură de uraniu conform revendicării 1, caracterizată prin aceea că în etapa S1 pulberea de nitrură de uraniu are o puritate mai mare de 95% și o dimensiune a particulelor de 0,1 - 50 μm ;

sursa de carbon este negru de fum și/sau grafit, având o puritate mai mare de 95% și o dimensiune a particulelor de 0,1 - 50 μm .

3. Metodă de preparare pentru peletul de carbură de uraniu conform revendicării 1, caracterizată prin aceea că în etapa S1 solventul este etanol sau acetonă.

4. Metodă de preparare pentru peletul de carbură de uraniu conform revendicării 1, caracterizată prin aceea că etapa S3 cuprinde următoarele etape:

S3.1, pre-presarea și turnarea pulberii amestecate sub o presiune de 5 - 30 Mpa; și

S3.2, sigilarea în vid a corpului crud pre-presat și turnat, presarea pe un corp crud sigilat sub o presiune de 150 - 300 Mpa și obținerea unui corp crud cu o densitate de 50% sau mai mare după menținerea presiunii.

5. Metodă de preparare pentru peletul de carbură de uraniu conform revendicării 4, caracterizată prin aceea că în etapa S3.1 se introduce pulberea amestecată într-o matriță din oțel pentru pelet pentru pre-presare și turnare; și

în etapa S3.2, corpul crud pre-presat și turnat este sigilat în vid cu o hârtie impregnată cu ulei, iar corpul crud sigilat este supus unei presări la presiune înaltă folosind o presă

izostatică rece.

6. Metodă de preparare pentru peletul de carbură de uraniu conform revendicării 1, caracterizată prin aceea că etapa S4 cuprinde următoarele etape:

S4.1, punerea corpului crud obținut în etapa S3 într-un cuptor fără presiune la temperaturi ridicate, încălzirea acestuia la 1300°C - 1600°C la o rată de 5 - 30°C/min în mediu vidat și menținerea temperaturii timp de 0,5 - 4 ore; și

S4.2, încălzirea la 1700°C - 2000°C la o rată de 5-30°C/min într-o atmosferă inertă și menținerea temperaturii timp de 1 - 14 ore pentru a obține peletul de carbură de uraniu.

7. Metodă de preparare pentru peletul de carbură de uraniu conform revendicării 6, caracterizată prin aceea că în etapa S4.2 în cuptorul fără presiune la temperatură înaltă este introdus un gaz de argon și este menținut la o presiune atmosferică pentru a forma atmosfera inertă.

8. Metodă de preparare pentru peletul de carbură de uraniu conform oricăreia dintre revendicările 1 - 7, caracterizată prin aceea că raportul atomic dintre uraniu, carbon și azot în peletul de carbură de uraniu obținut este de 1:(0,8-1,5):(0-0,2).

9. Pelet de carbură de uraniu, caracterizat prin aceea că este preparat prin metodele de preparare din oricare dintre revendicările de la 1 până la 8.

10. Tijă de combustibil, caracterizată prin aceea că cuprinde peletul de carbură de uraniu conform revendicării 9.