



(12)

## BREVET DE INVENȚIE

(21) Nr. cerere: **a 2020 00363**

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

(45) Data publicării mențiunii acordării brevetului: **28/06/2024** BOPI nr. **6/2024**

(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**

(73) Titular:

• **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 XIANSHENG**, 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

(56) Documente din stadiul tehnicii:

**GB 965896; US 2017040069 A1**

(54)

**PROCEDEU DE OBTINERE A UNUI PELET DE CARBURĂ DE URANIU, PELET DE CARBURĂ DE URANIU ASTFEL OBTINUT ȘI TIJĂ DE COMBUSTIBIL**

Examinator: ing. ANCA MARINA



Orice persoană are dreptul să formuleze în scris și motivat, la OSIM, o cerere de revocare a brevetului de invenție, în termen de 6 luni de la publicarea mențiunii hotărârii de acordare a acesteia

**RO 134863 B1**

# RO 134863 B1

1           Invenția se referă la un pelet de carbură de uraniu, la un procedeu de obținere a unui  
2 pelet de carbură de uraniu și la o tijă de combustibil care cuprinde peletele de carbură de  
3 uraniu obținut prin procedeul menționat.

4           Combustibilul nuclear pentru reactorul cu apă sub presiune (PWR), existent în  
5 comerț, este în principal sub formă de peleți de dioxid de uraniu ( $UO_2$ ). Cu toate acestea,  
6 peleții de  $UO_2$  au o conductivitate termică scăzută și o temperatură centrală ridicată. Chiar  
7 dacă reactorul este închis în siguranță atunci când se produce un accident, o cantitate mare  
8 de căldură de dezintegrare este încă stocată în peleți. Căldura reziduală este dificil de disipat  
9 în condiții de pierdere a fluidului de răcire, prin urmare temperatura armăturii tijei de combustibil  
10 poate crește rapid la un nivel periculos. Din cauza proprietăților chimice, materialul de  
11 aliaj de zirconiu existent are, evident, o reacție zirconiu-apă la o temperatură mai mare de  
12  $650^\circ C$ . Reacția este o reacție exotermă, care eliberează o cantitate mare de hidrogen, și  
13 deteriorează grav siguranța unui ansamblu de combustibil, ceea ce poate cauza consecințe  
14 catastrofale precum topirea miezului reactorului, explozie violentă de hidrogen sau alte  
15 catastrofe asemănătoare.

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

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

25           Obținerea convențională a peletului de carbură de uraniu are următoarele probleme:

26           1. Atomii de oxigen sunt dizolvați cu ușurință în pulberea de carbură de uraniu, iar  
27 atomii de oxigen dizolvați pot stabiliza  $UC_2$  și descompune  $U_2C_3$ . Concentrația oxigenului  
28 soluției solide în carbură de uraniu poate atinge 12,5%, ceea ce poate reduce conductivitatea  
29 termică a carburii de uraniu. Carbură de uraniu este oxidată cu ușurință la  $UO_2$  sau  
30 alt oxid de uraniu atunci când temperaturile depășesc  $200^\circ C$  sau presiunea parțială a oxigenului  
31 depășește 20 kPa. Prin urmare, prepararea și amestecarea carburii de uraniu trebuie  
32 să fie efectuată într-un mediu plin de argon, și este necesară, de asemenea, o puritate  
33 ridicată a argonului.

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

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

42           În documentul **GB965896** se regăsește obținerea unui cermet de uraniu-carbură de  
43 uraniu direct dintr-un amestec de dioxid de uraniu sub formă de pulbere și carbon sub formă  
44 de pulbere fără reducerea tetrafluorurii de uraniu cu calciu sau magneziu. Amestecul sub  
45 formă de pulbere este presat la rece și apoi materialul compactat este supus încălzirii la  
46 temperatură ridicată sub presiune redusă. Cermetul obținut conține 65% uraniu și 35%  
47 carbură de uraniu cu o densitate și structură metalografică care permite obținerea prin topire,  
a unui combustibil util în reactoare nucleare. Tot în literatura de specialitate, se regăsește

# RO 134863 B1

documentul <b>US2017040069A1</b> care se referă la utilizarea unei dispersii ceramice micro-încapsulată (DCM) de combustibil nuclear ca combustibil rezistent la topire și tolerant la accidente, pentru înlocuirea dioxidului de uraniu utilizat ca combustibil în reactoarele cu apă ușoară, în care particulele de combustibil constituite din metale grele cu o densitate mai mare ca a dioxidului de uraniu sunt înglobate într-o matrice de carbură de siliciu.	1 3 5
Problema tehnică ce urmează să fie rezolvată în invenție este de a furniza un procedeu de obținere a unui pelet de carbură de uraniu la scară industrială în care reacția de sinteză și densificarea de sinterizare au loc într-o singură etapă.	7
Procedeul de obținere a unui pelet de carbură de uraniu, conform invenției, cuprinde următoarele etape:	9
- etapa 1 în care are loc cântărirea unei pulberi de nitrură de uraniu și a unei surse de carbon într-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;	11 13
- etapa 2 constă în uscarea suspensiei pentru a obține o pulbere amestecată;	15
- etapa 3 constă în presarea pulberii amestecate într-un corp crud cu o densitate de 50% sau mai mare; și	15
- etapa 4 constă în efectuarea unei sinterizări fără presiune la temperatură înaltă pentru a obține peletul de carbură de uraniu cu o densitate $\geq 95\%$ .	17
Într-o variantă preferată, procedeul conform invenției, precizează că în etapa 1 pulberea de nitrură de uraniu are o puritate mai mare de 95% și o dimensiune a particulelor de 0,1...50 $\mu\text{m}$ , iar 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 $\mu\text{m}$ .	19 21
În altă variantă preferată, în procedeul conform invenției, în etapa 1 solventul este ales dintre etanol sau acetonă.	23
Într-o altă variantă preferată, în procedeul conform invenției, etapa 3 cuprinde următoarele subetape:	25
- subetapa 1: pre-presarea și turnarea pulberii amestecate sub o presiune de 5...30 Mpa; și	27
- subetapa 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.	29 31
În altă variantă preferată, în procedeul conform invenției, pentru etapa 3 se precizează că în subetapa 1 se introduce pulberea amestecată într-o matriță din oțel pentru pelet pentru pre-presare și turnare, și în subetapa 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.	33 35
Într-o altă variantă preferată, în procedeul conform invenției, etapa 4 cuprinde următoarele subetape:	37
- subetapa 1, în care are loc punerea corpului crud obținut în etapa 3 într-un cuptor fără presiune la temperaturi ridicate, încălzirea acestuia la o temperatură de 1300...1600°C cu o rată de 5...30°C/min în mediu vidat și menținerea temperaturii timp de 0,5...4 h; și	39 41
- subetapa 2, în care are loc încălzirea la o temperatură de 1700...2000°C cu o rată de 5...30°C/min într-o atmosferă inertă și menținerea temperaturii timp de 1...14 h pentru a obține peletul de carbură de uraniu.	43
În altă variantă preferată, în procedeul conform invenției, în etapa 4, în subetapa 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.	45 47

# RO 134863 B1

1 În altă variantă preferată, în procedeul conform invenției, raportul atomic dintre  
uraniu, carbon și azot în peletul de carbură de uraniu obținut este de  $1:(0,8...1,5):(0...0,2)$ .

3 Peletul de carbură de uraniu, conform invenției, este obținut prin procedeul de  
obținere descris mai sus.

5 Tija de combustibil, conform invenției, cuprinde peletul de carbură de uraniu.

7 Invenția are următoarele avantaje: 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  
9 este necesar un procedeu de sinterizare prin presare la cald cu eficiență scăzută a produc-  
ției, și nu este necesară introducerea unui ajutor de sinterizare, evitând astfel problema  
11 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 peleiților de com-  
13 bustibil.

Exemple de realizare

15 O metodă pentru prepararea peleiților de carbură de uraniu include următoarele  
etape:

17 - etapa 1, 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  
19 uniformă a amestecului pentru a forma o suspensie.

21 Unde puritatea pulberii de nitrură de uraniu (UN) este mai mare de 95%, iar dimen-  
siunea particulelor de pulbere de UN este de  $0,1...50 \mu\text{m}$ . Sursa de carbon (C) este negru  
de fum și/sau grafit, puritatea sursei de carbon este mai mare de 95%, iar dimensiunea  
23 particulelor sursei de carbon este de  $0,1...50 \mu\text{m}$ .

25 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.

27 - etapa 2, uscarea suspensiei pentru a obține pulbere amestecată.

29 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.

31 - etapa 3, presarea pulberii amestecate într-un corp crud cu o densitate de 50% sau  
mai mare.

33 Etapa 3 poate include suplimentar următoarele subetape:

35 - subetapa 1, pre-presarea și turnarea pulberii amestecate sub presiune de  
5...30 Mpa.

37 - subetapa 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.

39 Timpul de menținere a presiunii poate depinde de circumstanțe, cum ar fi 5 min, cu  
un scop principal de a stabiliza forma corpului crud presat.

41 În mod specific, în subetapa 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  
43 10 MPa. În subetapa 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  
45 înaltă, cum ar fi 200 Mpa folosind o presă izostatică rece.

47 - etapa 4, realizarea unei sinterizări fără presiune la temperatură înaltă pentru a  
obține peletul de carbură de uraniu cu o densitate  $\geq 95\%$ .

# RO 134863 B1

Etapa 4 poate include suplimentar următoarele etape:	1
- subetapa 1, punerea corpului crud obținut în etapa 3 într-un cuptor fără presiune la temperatură ridicată, încălzirea acestuia la 1300...1600°C cu o rată de 5...30°C/min în mediu vidat și menținerea temperaturii pentru 0,5...4 h, unde vidul este menținut de la un capăt la celălalt al întregii perioade.	3 5
Reacția de reducere carbotermică a corpului crud este realizată în principal în această subetapa, iar reacția este efectuată complet și terminată prin menținerea temperaturii, astfel încât să formeze carbură de uraniu.	7
- subetapa 2, încălzirea la 1700...2000°C cu o rată de 5...30°C/min în atmosferă inertă și menținerea temperaturii timp de 1...14 h pentru a obține peletul de carbură de uraniu.	9 11
După ce se termină menținerea temperaturii, peletul de carbură de uraniu poate fi extras după răcire la o temperatură a camerei.	13
Această subetapă realizează în primul rând densificarea corpului crud pentru a forma un pelet având o densitate predeterminată.	15
Alternativ, în subetapa 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.	17
În procedeul de obținere 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.	19 21
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. Modulurile 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.	23 25 27 29
Peletul de carbură de uraniu din prezenta invenție este obținut prin adoptarea procedurii de obținere de mai sus.	31
Tija de combustibil din prezenta invenție include peletul de carbură de uraniu de mai sus.	33
Invenția este ilustrată suplimentar prin următoarele 10 exemple de realizare specifice.	
<b>Exemplul 1</b>	35
Se obține 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.	37
Se utilizează etanolul ca solvent, și se folosește o bilă de Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub> pentru amestecare timp de 24 h la o viteză de 120 de rot/min. Se usucă suspensia obținută prin evaporare rotativă pentru a obține o pulbere omogenă care este amestecată în mod uniform. Pulberea amestecată este pusă într-o matriță din oțel pentru pelet, și 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 min, permițând ca o densitate inițială a corpului crud al peletului să ajungă la 50% sau mai mult.	39 41 43 45 47

# RO 134863 B1

1 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  
3 etapă de reacție, rata de încălzire este de 10°C/min, temperatura este ridicată la 1400°C și  
menținută timp de 1 h. În această etapă mediul vidat trebuie să fie menținut. După ce menți-  
5 nerea 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 cu o rată  
7 de încălzire de 10°C/min și se menține temperatura timp de 4 h. După ce menținerea  
temperaturii este terminată, se scoate peletul după răcire la temperatura camerei.

9 Analiza de difracție cu raze X arată că faza peletului sinterizat este carbură de  
uraniu, iar vârful de difracție nu are nicio deplasare semnificativă. Testul arată că peletul de  
11 carbură de uraniu preparat prin sinterizare la o temperatură de menținere 1800°C timp de  
4 h are o densitate de 98%, o porozitate de 2%, și un diametru al porilor de 100 nm, iar porii  
13 sunt pori deschiși.

## Exemplul 2

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

19 Se prepară corpul crud în aceeași manieră ca în exemplul 1, temperatura de reacție  
in situ este de 1500°C și este menținută timp de 2 h, iar temperatura de sinterizare este de  
1900°C și este menținută timp de 1 h.

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

## Exemplul 3

27 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.

29 Se prepară corpul crud în aceeași manieră ca în exemplul 1, cu aceeași reacție in situ  
ca în Varianta de realizare 1, și se prepară peletul prin sinterizare fără presiune la 2000°C  
31 timp de 3 h.

33 Analiza de difracție cu raze X arată că faza peletului sinterizat este carbură 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  
35 14 h este de 99%, și nu există pori deschiși.

## Exemplul 4

37 Se prepară peletul de carbură de uraniu cu o densitate de 95%. Se schimbă sursa  
de carbon din negru de fum din exemplul 1 în grafit. Se cântărește în conformitate cu un  
39 raport molar UN:C de 1:1,5, cu 249 g de pulbere de UN și 18 g de grafit.

41 Se prepară corpul crud în aceeași manieră ca în exemplul 1, temperatura de reacție  
in situ este de 1600°C și este menținută timp de 1,5 h, iar temperatura de sinterizare este de  
1700°C și este menținută timp de 10 h.

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

# RO 134863 B1

## Exemplul 5

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.

Se utilizează acetona ca solvent, se amestecă printr-o amestecare de tip rulou folosind o bilă de SiC timp de 12 h la viteza de 120 de rot/min, și se usucă suspensia obținută prin evaporare rotativă pentru a obține pulberea omogenă 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 min, permițând ca o densitate inițială a corpului crud al peletului să ajungă la 50% sau mai mult.

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 h. 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 h. După ce menținerea temperaturii este terminată, se scoate peletul după răcire la temperatura camerei.

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 h are o densitate de 97%, o porozitate de 3% și un diametru al porilor de 300 nm, iar porii sunt pori deschiși.

## Exemplul 6

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.

Se prepară corpul crud în aceeași manieră ca în exemplul 5, temperatura de reacție in situ este de 1600°C și menținută timp de 2 h, iar temperatura de sinterizare este de 1950°C și menținută timp de 12 h.

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 h are o densitate de 100% și o porozitate de 0%.

## Exemplul 7

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.

Se utilizează acetona ca solvent, se amestecă printr-o amestecare de tip rulou folosind o bilă de SiC timp de 24 h la viteza de 120 de rot/min, 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

# RO 134863 B1

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

5 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  
7 etapă de reacție, rata de încălzire este de 30°C/min, temperatura este crescută la 1600°C  
și este menținută timp de 2 h. În această etapă, mediul vidat trebuie să fie menținut. După  
9 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  
11 1850°C la o rată de încălzire de 30°C/min și se menține temperatura timp de 6 h. După ce  
menținerea temperaturii este terminată, se scoate peletul după răcire la temperatura  
camerei.

13 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  
15 îmbogățit. Testul arată că peletul de carbură de uraniu preparat prin sinterizare menținut la  
o temperatură de 1850°C timp de 6 h are o densitate de 95,5% și o porozitate de 4,5.

## 17 **Exemplul 8**

19 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.

21 Se utilizează acetona ca solvent, se amestecă amestecul printr-o amestecare de tip  
rulou folosind o bilă de Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> timp de 18 h la viteza de 120 de rot/min și se usucă suspensia  
23 obținută prin evaporare rotativă pentru a obține pulberea amestecată care este amestecată  
în mod uniform. Pulberea amestecată este pusă într-o matrită din oțel pentru pelet, mai întâi  
25 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  
27 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 min, permițând ca o densitate inițială a corpului  
29 crud al peletului să ajungă la 50% sau mai mult.

31 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  
33 etapă de reacție, rata de încălzire este de 15°C/min, temperatura este crescută la 1450°C  
și este menținută timp de 2,5 h. În această etapă, mediul vidat trebuie să fie menținut. După  
ce menținerea temperaturii este terminată, se oprește vidarea, în cuptor se introduce un gaz  
35 de argon de înaltă puritate și acesta se menține la o presiune atmosferică. Se încălzește la  
1950°C cu o rată de încălzire de 15°C/min și se menține temperatura timp de 2 h. După ce  
37 menținerea temperaturii este terminată, se scoate peletul după răcirea la temperatura  
camerei.

39 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  
41 îmbogățit. Testul arată că peletul de carbură de uraniu preparat prin sinterizare menținut la  
o temperatură de 1950°C timp de 2 h are o densitate de 96,5% și o porozitate de 3,5.

## 43 **Exemplul 9**

45 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.



# RO 134863 B1

Se utilizează acetona ca solvent, se amestecă printr-o amestecare de tip rului folosind o bilă de  $\text{Si}_3\text{N}_4$  timp de 20 h la viteza de 120 de rot/min 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 min, permițând ca o densitate inițială a corpului crud al peletului să ajungă la 50% sau mai mult.

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  $1300^\circ\text{C}$  și este menținută timp de 4 h. 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  $1850^\circ\text{C}$  cu o rată de încălzire de  $5^\circ\text{C}/\text{min}$  și se menține temperatura timp de 5 h. După ce menținerea temperaturii este terminată, se scoate peletul după răcirea la temperatura camerei.

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  $1850^\circ\text{C}$  timp de 5 h are o densitate de 96% și o porozitate de 4%.

## Exemplul 10

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.

Se utilizează acetona ca solvent, se amestecă printr-o amestecare de tip rului folosind o bilă de  $\text{Si}_3\text{N}_4$  timp de 24 h la viteza de 240 de rot/min 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 min, permițând ca o densitate inițială a corpului crud al peletului să ajungă la 50% sau mai mult.

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  $10^\circ\text{C}/\text{min}$ , temperatura este crescută la  $1350^\circ\text{C}$  și este menținută timp de 4 h. 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  $1750^\circ\text{C}$  cu o rată de încălzire de  $10^\circ\text{C}/\text{min}$  și se menține temperatura timp de 13 h. După ce menținerea temperaturii este terminată, se scoate peletul după răcirea la temperatura camerei.

# RO 134863 B1

1           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  
3 de uraniu preparat prin sinterizare menținut la o temperatură de 1750°C timp de 13 h are o  
densitate de 98,5% și o porozitate de 1,5%.

5           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  
7 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  
9 domeniul de aplicare al protecției brevetului din prezenta invenție.

	1
1. Procedeu de obținere a unui pelet de carbură de uraniu, <b>caracterizat prin aceea că</b> , cuprinde următoarele etape:	3
- în etapa 1 are loc cântărirea unei pulberi de nitrură de uraniu și a unei surse de carbon într-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;	5
- etapa 2 constă în uscarea suspensiei pentru a obține o pulbere amestecată;	7
- etapa 3 constă în presarea pulberii amestecate într-un corp crud cu o densitate de 50% sau mai mare; și	9
- etapa 4 constă în efectuarea unei sinterizări fără presiune la temperatură înaltă pentru a obține peletul de carbură de uraniu cu o densitate $\geq 95\%$ .	11
2. Procedeu de obținere a unui pelet de carbură de uraniu conform revendicării 1, <b>caracterizat prin aceea că</b> , în etapa 1 pulberea de nitrură de uraniu are o puritate mai mare de 95% și o dimensiune a particulelor de 0,1...50 $\mu\text{m}$ , iar 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 $\mu\text{m}$ .	13
3. Procedeu de obținere a unui pelet de carbură de uraniu conform revendicării 1, <b>caracterizat prin aceea că</b> , în etapa 1 solventul este ales dintre etanol sau acetonă.	15
4. Procedeu de obținere a unui pelet de carbură de uraniu conform revendicării 1, <b>caracterizat prin aceea că</b> , etapa 3 cuprinde următoarele subetape:	17
- subetapa 1: pre-presarea și turnarea pulberii amestecate sub o presiune de 5...30 Mpa; și	19
- subetapa 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.	21
5. Procedeu de obținere a unui pelet de carbură de uraniu conform revendicării 4, <b>caracterizat prin aceea că</b> , în subetapa 1 se introduce pulberea amestecată într-o matriță din oțel pentru pelet pentru pre-presare și turnare, și în subetapa 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.	23
6. Procedeu de obținere a unui pelet de carbură de uraniu conform revendicării 4, <b>caracterizat prin aceea că</b> , în subetapa 1 se introduce pulberea amestecată într-o matriță din oțel pentru pelet pentru pre-presare și turnare, și în subetapa 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.	25
7. Procedeu de obținere a unui pelet de carbură de uraniu conform revendicării 4, <b>caracterizat prin aceea că</b> , în subetapa 1 se introduce pulberea amestecată într-o matriță din oțel pentru pelet pentru pre-presare și turnare, și în subetapa 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.	27
8. Procedeu de obținere a unui pelet de carbură de uraniu conform revendicării 4, <b>caracterizat prin aceea că</b> , în subetapa 1 se introduce pulberea amestecată într-o matriță din oțel pentru pelet pentru pre-presare și turnare, și în subetapa 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.	29
9. Procedeu de obținere a unui pelet de carbură de uraniu conform revendicării 4, <b>caracterizat prin aceea că</b> , în subetapa 1 se introduce pulberea amestecată într-o matriță din oțel pentru pelet pentru pre-presare și turnare, și în subetapa 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.	31
10. Tijă de combustibil, <b>caracterizată prin aceea că</b> , cuprinde peletul de carbură de uraniu conform revendicării 9.	33
- subetapa 1, în care are loc punerea corpului crud obținut în etapa 3 într-un cuptor fără presiune la temperaturi ridicate, încălzirea acestuia la o temperatură de 1300...1600°C cu o rată de 5...30°C/min în mediu vidat și menținerea temperaturii timp de 0,5...4 h; și	35
- subetapa 2, în care are loc încălzirea la o temperatură de 1700...2000°C cu o rată de 5...30°C/min într-o atmosferă inertă și menținerea temperaturii timp de 1...14 h pentru a obține peletul de carbură de uraniu.	37
11. Tijă de combustibil, <b>caracterizată prin aceea că</b> , cuprinde peletul de carbură de uraniu conform revendicării 9.	39
12. Tijă de combustibil, <b>caracterizată prin aceea că</b> , cuprinde peletul de carbură de uraniu conform revendicării 9.	41
13. Tijă de combustibil, <b>caracterizată prin aceea că</b> , cuprinde peletul de carbură de uraniu conform revendicării 9.	43
14. Tijă de combustibil, <b>caracterizată prin aceea că</b> , cuprinde peletul de carbură de uraniu conform revendicării 9.	45
15. Tijă de combustibil, <b>caracterizată prin aceea că</b> , cuprinde peletul de carbură de uraniu conform revendicării 9.	47
16. Tijă de combustibil, <b>caracterizată prin aceea că</b> , cuprinde peletul de carbură de uraniu conform revendicării 9.	49
17. Tijă de combustibil, <b>caracterizată prin aceea că</b> , cuprinde peletul de carbură de uraniu conform revendicării 9.	51

