

# 發明專利說明書 200527448

(本說明書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：93132107

※申請日期：93.10.22

※IPC 分類：

G21C3/00

## 一、發明名稱：(中文/英文)

製造加強熱傳導氧化物核燃料的方法及核燃料

PROCESS FOR MANUFACTURING ENHANCED THERMAL CONDUCTIVITY

OXIDE NUCLEAR FUEL AND THE NUCLEAR FUEL

## 二、申請人：(共 1 人)

姓名或名稱：(中文/英文)

富瑞馬騰 ANP 股份有限公司

FRAMATOME ANP, INC.

代表人：(中文/英文)

大衛 F.古薩/GUZA, DAVID F.

住居所或營業所地址：(中文/英文)

美國維吉尼亞州 24506-0935 林奇堡郵政信箱 10935 號老森林路 3315 號

3315 Old Forest Road, P.O. Box 10935, Lynchburg, Virginia 24506-0935, U.S.A.

國 籍：(中文/英文)

美國/U.S.A.

## 三、發明人：(共 1 人)

姓 名：(中文/英文)

約翰凱文麥寇伊/MCCOY, JOHN KEVIN

國 籍：(中文/英文)

美國/U.S.A.

#### 四、聲明事項：

☐ 主張專利法第二十二條第二項 ☐ 第一款或 ☐ 第二款規定之事實，其事實發生日期為： 年 月 日。

☒ 申請前已向下列國家（地區）申請專利：

【格式請依：受理國家（地區）、申請日、申請案號 順序註記】

☒ 有主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

1.美國 2003.10.24 10/692,646

☐ 無主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

☐ 主張專利法第二十九條第一項國內優先權：

【格式請依：申請日、申請案號 順序註記】

☐ 主張專利法第三十條生物材料：

☐ 須寄存生物材料者：

國內生物材料 【格式請依：寄存機構、日期、號碼 順序註記】

國外生物材料 【格式請依：寄存國家、機構、日期、號碼 順序註記】

☐ 不須寄存生物材料者：

所屬技術領域中具有通常知識者易於獲得時，不須寄存。

國 籍：(中文/英文)

美國/U.S.A.

#### 四、聲明事項：

☐ 主張專利法第二十二條第二項 ☐ 第一款或 ☐ 第二款規定之事實，其事實發生日期為： 年 月 日。

☒ 申請前已向下列國家（地區）申請專利：

【格式請依：受理國家（地區）、申請日、申請案號 順序註記】

☒ 有主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

1.美國 2003.10.24 10/692,646

☐ 無主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

☐ 主張專利法第二十九條第一項國內優先權：

【格式請依：申請日、申請案號 順序註記】

☐ 主張專利法第三十條生物材料：

☐ 須寄存生物材料者：

國內生物材料 【格式請依：寄存機構、日期、號碼 順序註記】

國外生物材料 【格式請依：寄存國家、機構、日期、號碼 順序註記】

☐ 不須寄存生物材料者：

所屬技術領域中具有通常知識者易於獲得時，不須寄存。

## 九、發明說明：

### 【發明所屬之技術領域】

本發明係關於核反應器之燃料。更特定言之，本發明提供核反應器燃料及製造核反應器燃料之方法，當與傳統所使用之二氧化鈾核反應器燃料比較，其顯示增加之熱傳導係數。

### 【先前技術】

目前，使用於商業上發電之核動力反應器燃料係以二氧化鈾為基礎。二氧化鈾燃料通常是數項製造步驟的產物包括：壓製二氧化鈾粉末成為小球粒形狀並隨後燒結該小球粒來移除任何所形成之空隙。

二氧化鈾燃料的普遍使用主要是由於二氧化鈾物料的許多合乎需要之特性包括：為了產生核反應所必須之鈾原子的高密度、二氧化鈾在高溫水中之惰性和不溶性、高熔點且並無可能影響反應器性能之中子中毒。雖然二氧化鈾供使用於輕水反應器中是令人滿意，但是二氧化鈾亦具有數個顯著缺點而限制其全面的有效性。此等缺點中，主要是二氧化鈾的相當低熱傳導係數其對於反應器操作施加顯著限制。二氧化鈾的無能力移除大量熱，有效地限制全面的反應器操作且在暫態事件期間例如耗損冷卻劑偶然事故(LOCA)期間，危及反應器操作。核能工業曾試圖增加二氧化鈾燃料的熱傳導係數，但是沒有一項努力獲得成功。儘管此等缺點，呈未修改形式之二氧化鈾依然是核動力反應器之主要燃料。

就大體而論，核燃料中所產生之熱必須通過燃料的本體而被傳導，通常呈壓成小球形式，且爲了適當冷卻燃料及防止小球粒裂解，使用一個外部被覆層，通常是鋳合金至環繞之冷卻劑層。將環繞之冷卻劑層移動通過外部被覆層而提供一致之溫度以便自燃料中移出熱。在暫態反應器狀況期間，例如當冷卻劑不均勻流動通過外部被覆層時，自小球粒中穩定移出熱被中斷。在耗損冷卻劑偶然事故期間，由於累積熱在燃料中及二氧化鈾矩陣的無能力耐受增加之溫度，危及操作之安全。爲了達到可接受之全面性設備安全邊際，傳統式二氧化鈾燃料的此種熱傳導係數特性迫使在降低功率時操作反應器。因此，在降低功率位準時操作反應器影響整個設備之操作成本。使用二氧化鈾之目前核燃料亦具有受限之燃耗能力。該受限之燃耗能力降低燃料的總成本效益。該受限之燃耗能力係由隨著時間之消逝，燃料被覆內部較大之裂變氣體放釋而產生。因此，該較大之裂變氣體放釋導致較高之燃料桿內部壓力，由於較高之應力，潛在性導致被覆層退化。現行燃料的升高溫度亦施加應力至燃料被覆層，因此，限制總有效壽命。

有必要提供一種核燃料，與目前使用於核動力反應器中之傳統式二氧化鈾燃料相比較，其可提供增加之熱傳導係數。

另外需要提供一種核燃料，其可導致在偶發事故狀況下，例如耗損冷卻劑偶然事故，核反應器的較大安全性。

更另外需要提供一種核燃料，與傳統式二氧化鈾核燃

料相比較，其可具有優良之燃耗能力，因此容許較大之燃料利用，改進經濟，及有限度之裂變氣體放釋。

### 【發明內容】

本發明的一個目的在提供一種核燃料，與目前使用於核動力反應器中之傳統式二氧化鈾核燃料相比較，其提供增加之熱傳導係數。

亦係烘烤之一個目的在提供一種核燃料，其在偶發事故狀況下，例如耗損冷卻劑偶然事故，可導致核反應器的較大安全性。

另外，本發明的一個目的在提供一種核燃料，其可具有優於傳統式二氧化鈾燃料者之燃耗能力，因此容許較大之燃料利用及有限度之裂變氣體放釋。

本發明的此等和其他目的如所舉例說明者及所敘述者予以達成。本發明提供製造二氧化鈾燃料之方法，與傳統式核燃料相比較，其具有增加之熱傳導係數。該方法列舉提供一種多孔之二氧化鈾構造，使用一種先質液體滲透該多孔之二氧化鈾構造，及使用所滲透之先質液體熱處理該多孔之二氧化鈾構造以致使該先質液體轉變成為第二相。

本發明亦提供一種核燃料。本發明列舉具有二氧化鈾矩陣及經散布在該二氧化鈾矩陣中之碳化矽之構造。

### 【實施方式】

本發明提供一種核燃料及製造該核燃料之方法。述及第 1 圖，提供一種二氧化鈾構造 10 以便處理。該二氧化鈾構造 10 可能具有任何形狀，舉例而言，例如粒片、球或桿

。該二氧化鈾構造 10 應具有一個多孔之矩陣以容許：當經由先質液體 12 接觸時，滲透物料入構造 10 中。二氧化鈾構造 10 的多孔之矩陣，舉例而言可能經由壓製二氧化鈾粉末成為 "未加工" 或未烘烤之形狀予以形成。該多孔之矩陣亦可經由素瓷烘烤 (其並不完全稠化二氧化鈾構造 10) 予以形成。

將一種先質液體 12 加至二氧化鈾構造 10 中來滲透二氧化鈾矩陣。該先質液體 12 舉例而言，可能是烯丙基氫化聚羧矽烷 (AHPCS)。可將該先質液體 12 構型來滲透二氧化鈾構造 10 的多孔矩陣不會損壞整個二氧化鈾矩陣構型。可將二氧化鈾構造 10 噴射，或如所舉例說明，浸沒入先質液體 12 中而致使構造 10 與先質液體 12 間接觸。先質液體 12 的組成容許將先質液體 12 併合入二氧化鈾構造 10 的多孔矩陣之各孔中。可選擇先質液體 12 與二氧化鈾構造 10 的接觸時間以致使：先質液體 12 之併合入二氧化鈾矩陣中所有的孔中，舉例而言，在單次接觸循環中發生。為了促進先質液體 12 之滲透入構造 10 中，在滲透前可將該構造抽空，或可將先質在壓力下施加，或兩者。或者，該先質液體 12 可接觸二氧化鈾構造 10 歷一段時間以致使：單次接觸循環不能導致併合先質液體 12 入所有的多孔矩陣之孔中。

在先質液體 12 已接觸二氧化鈾構造 10 且經併合入構造 10 的矩陣中後，然後至少部分地，可將該構造 10 烘烤。烘烤 14 可能通過放置二氧化鈾構造 10 入舉例而言，180°C

至 400℃ 間之爐 16 中。烘烤時間，舉例而言，可能是 2 小時至 8 小時間。可使用其他烘烤時間和溫度。該烘烤 14 程序轉變先質液體 12 成爲一種固體聚合物，其中將該固體聚合物定位在二氧化鈾構造 10 的矩陣中。

其次，然後將該構造 10 熱處理 18 以致使：將經定位在二氧化鈾構造 10 中之聚合物轉變成爲第二相。在本發明的現行例示之具體實施例中，將烯丙基氫化聚羧矽烷(其自烘烤操作，已轉變成爲一種聚合物在二氧化鈾構造 10 中)，通過在爐 20 中，燒結該構造 10 予以轉變成碳化矽。可選擇爐溫度，舉例而言自 800℃ 至 1700℃ 間。二氧化鈾矩陣在爐 20 中之滯留時間，舉例而言，可能是 2 小時至 8 小時。可使用其他滯留時間以便將聚合物轉變成爲碳化矽。可變更滯留時間而使小球粒的最終體積改變最小。所產生之產物是核燃料其具有經併合入二氧化鈾的矩陣中之碳化矽。

然後可重複使用先質液體 12 滲透多孔之二氧化鈾構造 10 及使用所滲透之先質液體 12 熱處理多孔之二氧化鈾構造 10 的各個方法步驟(其可包括烘烤和燒結該構造兩者)，如果未發生全部併合，若需要，可容許併合更多的先質液體 12 入二氧化鈾的矩陣中。

本發明提供增加核燃料之熱傳導係數，因此導致在耗損冷卻劑偶然事故期間增加之燃料性能。本發明亦提供降低之燃料溫度及內部燃料小球粒熱。由於創造相似於傳統式反應器中所使用之幾何形狀之全面幾何學大小的可能性

，現行之核動力反應器可利用本發明中所述之燃料。此外，通過使用具有增加之熱傳導係數之核燃料，現行反應器可能以較高之功率位準而操作來提供優良之經濟性能。當較低之全面燃料溫度限制分裂氣體放釋時，亦增加最大之燃料燃耗，因此限制燃料桿內壓力。優良之燃料燃耗亦容許產生較少最後處置之廢棄物。降低之燃料溫度亦減少經施加在被覆層上之應力，減少燃料裂化及重新安置和減少限制壽命之燃料膨脹。

使用碳化矽在熱力上、化學上和中子學上與現行之輕水反應器可相容。因此，爲了利用含有碳化矽之燃料，不須創造新的反應器系統。碳化矽的熱傳導係數高以致可實現總燃料熱傳導係數之大體上增加僅有鈾原子密度之小降低。作爲一個實例，就碳化矽的 10% 體積負載而論，預期 50% 的熱傳導係數。

使用經併合入構造的矩陣中之碳化矽，製造核燃料方法之優點包括：有限度附加之滲透站和惰性氣體烘烤燃燒爐（具有設備用於燃燒來自先質之廢氣中之氫）至經使用於製造核燃料之現在設備。目前應用的方法亦容許先質液體滲透燃料構造的全體以便在熱燒灼後，所產生之第二相滲透至小球粒的中心，因此產生均勻之總燃料產物。本發明的第二相可形成爲連續網路而非係不連續之粒子，因此，整個燃料小球粒在自燃料小球粒的芯子傳導熱至外表面時係有效。附帶，該液體滲透劑產生高產量之第二相，因此，滲透和轉變程序僅需被重複幾次。

本發明較混合二氧化鈾和碳化矽等粉末之方法提供一種優點即：就小體積分率而論，該第二相形成分離的粒子其經由二氧化鈾予以熱絕緣。就大體積分率而論，過量的鈾被位移影響總燃料組成。

本發明亦提供較用於安置碳化矽在二氧化鈾上之化學蒸汽滲濾提供優點。此項化學蒸汽滲濾方法產生不均勻安置碳化矽在燃料元件的外部，具有較高濃度的碳化矽在燃料之外部。需要昂貴之設備用以沈積化學蒸汽在二氧化鈾上。化學蒸汽的安置亦係不均勻，導致具有廣泛不同組成之成品產物。另外，經使用於沈積碳化矽之甲基三氯矽烷導致氯化氫氣體產生成為廢產物，因此使廢物處理成績複雜化且增加總成本。

本發明另外較混合之二氧化鈾與碳化矽鬚晶提供優點。鬚晶、碳化矽的不連續構造，妨礙有效燒結該構造。而且，與二氧化鈾粉末相混合之碳化矽鬚晶可能導致不均勻碳化矽分佈。

前述之說明書中，本發明係參照其特定例示具體實施例予以敘述。然而，顯然可見：只要不脫離本發明的較廣泛要旨和範圍，如申請專利範圍中所特舉出，可對它作成各種修正和改變。因此，將該說明書和圖式視為舉例說明而非限制之意義。

#### 【圖式簡單說明】

第 1 圖提供用於製造燃料組合體之方法的示意表示法。

【 主 要 元 件 符 號 說 明 】

|    |             |
|----|-------------|
| 10 | 二 氧 化 鈾 構 造 |
| 12 | 先 質 液 體     |
| 14 | 烘 烤         |
| 16 | 爐           |
| 18 | 熱 處 理       |
| 20 | 爐           |

## 五、中文發明摘要：

本發明係關於核燃料及製造核燃料之方法，其中提供多孔之二氧化鈾構造，將該構造使用一種先質液體滲透及將該構造熱處理因此使該多孔二氧化鈾構造以先質液體所滲透，接著使用該所滲透之先質液體熱處理多孔之二氧化鈾構造以致使該先質液體變成爲第二相。

## 六、英文發明摘要：

A nuclear fuel and a method to produce a nuclear fuel wherein a porous uranium dioxide arrangement is provided, the arrangement is infiltrated with a precursor liquid and the arrangement is thermally treated such the porous uranium dioxide arrangement is infiltrated with a precursor liquid, followed by a thermal treating of the porous uranium dioxide arrangement with the infiltrated precursor liquid such that the precursor liquid is converted to a second phase.

## 十、申請專利範圍：

1. 一種製造二氧化鈾燃料之方法，包括：

提供一種多孔之二氧化鈾構造；

使用一種先質液體，滲透該多孔之二氧化鈾構造；

及

使用經滲透之先質液體、熱處理多孔之二氧化鈾構造，使得使該先質液體轉變成為第二相。

2. 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中該先質液體是烯丙基氫化聚羧矽烷。

3. 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中另外包括：

使用先質液體、滲透多孔之二氧化鈾構造；

及

使用經滲透之先質液體，熱處理該多孔之二氧化鈾構造以致使該先質液體轉變成為第二相。

4. 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中該第二相是固體。

5. 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中熱處理二氧化鈾構造的步驟包括：

烘烤該構造；及

熱燒結該構造。

6. 如申請專利範圍第 5 項之方法，其中該構造的烘烤是在 180°C 至 400°C 間。

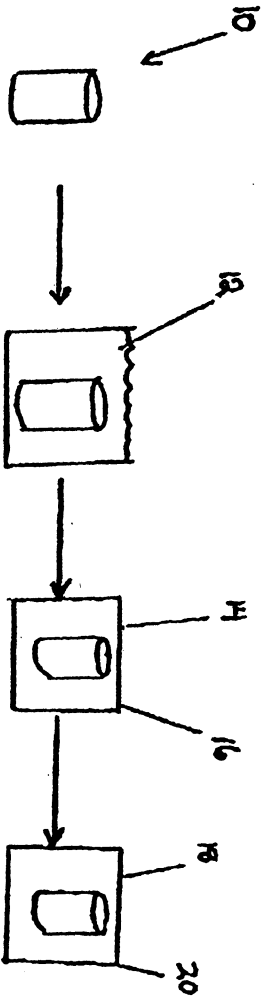
7. 如申請專利範圍第 5 項之方法，其中該構造的燒結是在 850°C 至 1700°C 間。

8. 如申請專利範圍第 5 項之方法，其中該構造的燒結是在

1500℃ 至 1700℃ 。

9. 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中該構造係成小球粒形式被提供者。
10. 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中多孔之二氧化鈾構造的熱處理產生固體碳化矽。
11. 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中重複該方法直至與自純二氧化鈾所形成之燃料構造相比較，增加燃料構造的熱傳導係數至少 5%。
12. 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中使用先質液體滲透多孔之二氧化鈾構造導致併合該先質液體入二氧化鈾構造的中心的。
13. 一種核燃料，包括：  
具有二氧化鈾的矩陣之一種構造；及  
經散布入該二氧化鈾矩陣中之碳化矽。
14. 如申請專利範圍第 13 項之核燃料，其中該構造成小球粒形狀者。
15. 如申請專利範圍第 13 項之核燃料，其中該構造的總體積係由以體積為基礎，高至 10% 碳化矽所構成。
16. 如申請專利範圍第 15 項之核燃料，其中將碳化矽與二氧化鈾相等地散布。

第 1 圖



七、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：第 ( 1 ) 圖。

(二)本代表圖之元件符號簡單說明：

10      二 氧 化 鈾 構 造

12      先 質 液 體

14      烘 烤

16      爐

18      熱 處 理

20      爐

八、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：