

(19)



República Argentina
Ministerio de Economía y Producción
Secretaría de Industria, Comercio y de la
Pequeña y Mediana Empresa
Instituto Nacional de la Propiedad Industrial

(11) No de Publicación:

AR 025952 A1

(41) Fecha de Publicación:

26.12.2002

(51) Int. Cl.:

**B22F9/04; B22F9/00;
C22B60/00; C22B60/02;
C22C43/00;**

(12)

Solicitud de Patente Independiente

(21) No de Solicitud: **P000105237**

(71) Solicitantes: **COMISION NAC DE EN ATOMICA [AR]**

(22) Fecha de Solicitud: **05.10.2000**

(72) Inventor/es:

(30) Prioridad/es: **2000P105237 AR 05.10.2000**

(54) **Título:**

PROCEDIMIENTO PARA LA OBTENCION DE POLVOS DE ALEACIONES METÁLICAS DUCTILES DE URANIO-MOLIBDENO.

(57) **Resumen:**

La presente consiste en un procedimiento para la obtencion de polvos de aleaciones metálicas ductiles de uranio-molibdeno (U-Mo) con concentraciones entre 5 y 10% Mo en peso (siendo el balance U), y con estructura cristalina cubica de cuerpo centrado fase gamma. El procedimiento consiste en: (a) Someter a un lingote de la aleacion a un tratamiento térmico de homogeneizacion, obteniendo una estructura monofásica y policristalina de U-Mo con estructura gamma. (b) Someter a la aleacion homogeneizada a un tratamiento térmico de precipitacion para lograr una microestructura constituida por granos de U-Mo con estructura cristalina gamma mayoritaria, y con la fase uranio-alfa minoritaria distribuida en los bordes de grano de la fase gamma.

(c) Someter la aleacion precipitada a un tratamiento de hidruracion gaseosa, provocando la transformacion de la fase alfa a hidruro de uranio (UH₃), produciendo la decrepitacion de la aleacion. (d) Deshidratar el polvo de la aleacion asi obtenido mediante un tratamiento térmico en vacío o bajo un flujo continuo de gas inerte. (e) Someter el polvo asi obtenido a un tratamiento térmico de transformacion y homogeneizacion de la fase gamma, y retener esta estructura en estado metaestable a temperatura ambiente. Una aplicacion de los polvos de aleaciones metálicas de U-Mo obtenidos por el procedimiento de la presente es su empleo en la elaboracion de combustibles nucleares de bajo enriquecimiento isotopico para reactores de investigacion, de ensayo y de produccion de radioisotopos.

HOJA TÉCNICA



(19)

I.N.P.I.
REPUBLICA ARGENTINA

(10)

PUBLICACION N°: AR 1815

(21)

SOLICITUD N°:

(51)

INT. CL.: B22F 9/00



5 OCT 2000

MESA DE ENTRADAS

5237

(12)

PATENTE DE INVENCION

MODELO DE UTILIDAD

(22) FECHA PRESENTACION: 05-10-2000	(71) SOLICITANTE(S): Comisión Nacional de Energía Atómica
(30) DATOS PRIORIDAD:	(72) INVENTOR(ES): VICENTE, Eduardo - BALART, Silvia - BRUZZONI, Pablo - GRANOVSKY, Marta - GRIBAUDO, Luis - HERMIDA, Jorge OVEJERO, José - RUBIOLO, Gerardo
(41) FECHA PUBLICACION SOLICITUD: BOLETIN N°:	(74) AGENTE:
(61) ADICIONAL A:	(83) DEPOS. MICROORGANISMOS:
(62) DIVISIONAL DE:	DOMICILIO: AV. del LIBERTADOR N° 8250 CAP. FED. AR.

(64) TITULO DE LA INVENCION: "PROCEDIMIENTO PARA LA OBTENCIÓN DE POLVOS DE ALEACIONES METÁLICAS DÚCTILES DE URANIO-MOLIBDENO"

(57) RESUMEN:

La presente invención consiste en un procedimiento para la obtención de polvos de aleaciones metálicas dúctiles de uranio-molibdeno (U-Mo) con concentraciones comprendidas entre 5 y 10 % Mo en peso (siendo el balance U), y con estructura cristalina cúbica de cuerpo centrado o fase gamma (γ).

El procedimiento consiste en:

- (a) Someter a un lingote de la aleación a un tratamiento térmico de homogeneización, obteniendo una estructura monofásica y policristalina de U-Mo con estructura γ .
- (b) Someter a la aleación homogeneizada a un tratamiento térmico de precipitación para lograr una microestructura constituida por granos de U-Mo con estructura cristalina γ mayoritaria, y con la fase uranio-alfa (α) minoritaria distribuida en los bordes de grano de la fase γ ;
- (c) Someter la aleación precipitada a un tratamiento de hidruración gaseosa, provocando la transformación de la fase α a hidruro de uranio (UH_3), produciendo la decrepitación de la aleación.
- (d) Deshidrurar el polvo de la aleación así obtenido mediante un tratamiento térmico en vacío o bajo un flujo continuo de gas inerte.
- (e) Someter al polvo así obtenido a un tratamiento térmico de transformación y homogeneización de la fase γ , y retener esta estructura en estado metaestable a temperatura ambiente.

Una aplicación de los polvos de aleaciones metálicas de U-Mo obtenidos por el procedimiento de la presente invención es su empleo en la elaboración de combustibles nucleares de bajo enriquecimiento isotópico para reactores de investigación, de ensayo y de producción de radioisótopos.

FIGURA MAS REPRESENTATIVA N°: -

Cornea S/F

AR

EPT
APROBADO



F. C. CORNEU
15.04.02

EPA .
APROBADO .
11.04.2002
Geyza

REPUBLICA ARGENTINA
(AR)

Secretaria de Coordinación
Administrativa y Técnica
Delegación DGA TESORERIA

TIM:03 OPE:16
Nr:00397295
RUB: 262

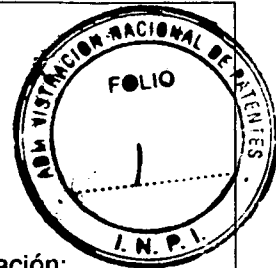
\$ 100.00
Prop. Industrial



I.N.P.I.

PATENTE DE INVENCIÓN:

CERTIFICADO DE MODELO DE UTILIDAD:



Fecha de presentación:

I. SOLICITANTE(S):

Acta N°

1) Apellido y Nombre/Denominación o Razón Social:

P 0 0 0 0 0 0 2 2 7

Comisión Nacional de Energía Atómica (CNEA)

2) Documento de Identidad:

Estado Civil

Nupcias:

Nombre del Cónyuge:

3) Caja de Jubilación o AFJP:

N° de CUIL o CUIT: IVA:

4) Inscripción en el Registro Industrial de la Nación (Decreto-Ley 19.971/72) N°

5) Domicilio Real: Av. del Libertador N° 8250, Capital Federal, República Argentina

Legal: el mismo

(1429)

MESAS DE ENTREGAS
-5 OCT 2000 09:57
I.N.P.I.

II. Objeto:

6) Título de la invención: "PROCEDIMIENTO PARA LA OBTENCIÓN DE POLVOS DE ALEACIONES METÁLICAS DÚCTILES DE URANIO-MOLIBDENO"

7) Carácter de la Patente / Modelo de Utilidad:

Definitiva, por el término de: 20 años

Adicional a la Solicitud N° / Patente N°

Divisional de la Solicitud N°

8) Ley 17.011 Fecha de Prioridad:

País
N°

III. Documentación acompañada

9) Se acompaña:

a) Comprobante pago de servicio requerido



b) Formulario (ANEXO II) hoja técnica



c) Carátula



- d) Memoria descriptiva
- e) Reivindicaciones firmadas
- f) Dibujos (Anexo III)
- g) Numero de figuras reducidas
- h) Resumen (Anexo I)
- i) Copia Certificada (Ley 17.011)
- j) Documento de Cesión
- k) Dibujos informales

IV Sociedades

10) Sociedad, representada por: Ing. Jorge Aníbal FERNÁNDEZ

.....

quien declara bajo juramento que inviste el carácter de Representante

que su mandato se encuentra vigente y que la Sociedad se halla inscripta en.....

Fecha.....N°.....F°.....Lib.....T°.....


V Mandato

- 11) Poder inscripto en Resolución CNEA N° 60/96.... Registrado en el INPI bajo N°.....
- Otro Registro:..... N°.....
- 12) En este acto, se autoriza a :
- para todas aquellas gestiones de mero tramite tales como practicar desgloses, retirar testimonios, certificados, títulos, copias y notificaciones en el expediente.
- 13) Se acompaña poder: Resolución CNEA N° 60/96 y Autorización INPI
- 14) Caja jubilación o AFJP..... N° CUIL o CUIT.....
- 15) Agente Nro.

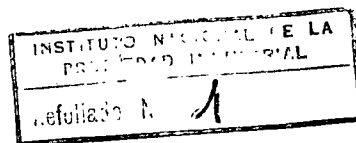
VI Observaciones.... INVENTORES: VICENTE,Eduardo, BALART, Silvia - BRUZZONI, Pablo - GRANOVSKY, Marta - GRIBAUDO, Luis - HERMIDA, Jorge - OVEJERO, José - RUBIOLO, Gerardo

.....

.....
(Firma del autorizado)


.....
(Firma del(los) Solicitante(s) y/o apoderado)

Ing. Jorge Aníbal FERNÁNDEZ
Responsable de Patentes
Comisión Nacional de Energía Atómica



Memoria Descriptiva de la Patente de Invención

denominada

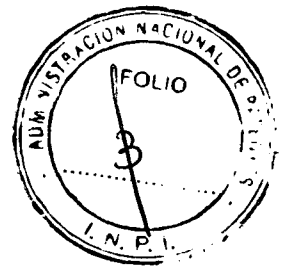
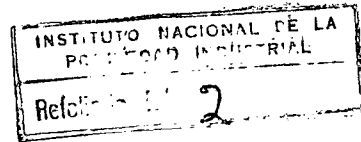
**"PROCEDIMIENTO PARA LA OBTENCIÓN DE POLVOS DE ALEACIONES
METÁLICAS DÚCTILES DE URANIO-MOLIBDENO"**

Solicitada por

**Comisión Nacional de Energía Atómica, residente en
Av. del Libertador 8250, Capital Federal, República Argentina.**

**Inventores: BALART, Silvia
BRUZZONI, Pablo
GRANOVSKY, Marta
GRIBAUDO, Luis
HERMIDA, Jorge
OVEJERO, José
RUBIOLO, Gerardo
VICENTE, Eduardo**

Por el plazo de 20 años

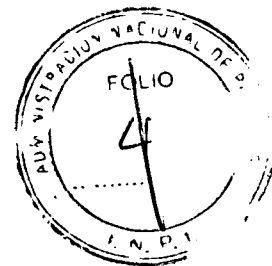
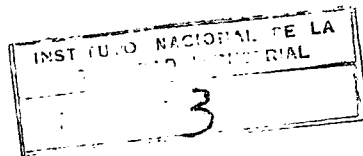


La presente invención se refiere a un procedimiento para la obtención de polvos de aleaciones metálicas dúctiles de uranio-molibdeno (U-Mo) con concentraciones comprendidas entre 5 y 10 % Mo en peso (siendo el balance U), y con estructura cristalina cúbica de cuerpo centrado o fase gamma (γ).

Una aplicación de los polvos de aleaciones metálicas de U-Mo obtenidos por el procedimiento de la presente invención es su empleo en la elaboración de combustibles nucleares de bajo enriquecimiento isotópico para reactores de investigación, de ensayo y de producción de radioisótopos.

La mayoría de los reactores nucleares de investigación y de producción de radioisótopos emplean como combustible uranio enriquecido. Se entiende por uranio enriquecido al elemento químico que presenta una proporción del isótopo fisible o fisionable uranio-235 (^{235}U) superior al que exhibe el uranio natural (0,711 % en peso). El Organismo Internacional de Energía Atómica clasifica al uranio enriquecido según su concentración isotópica como: uranio altamente enriquecido (UAE) con $^{235}\text{U} > 90$ % en peso; uranio medianamente enriquecido (UME) con 20 % $< ^{235}\text{U} < 90$ % en peso; y uranio levemente enriquecido (ULE) con $^{235}\text{U} < 20$ % en peso.

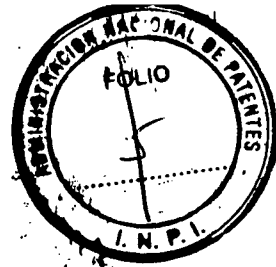
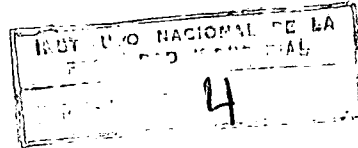
Hasta fines de la década del 70 el núcleo de los combustibles para los reactores mencionados se elaboraba fundamentalmente con UAE (típicamente 93 % ^{235}U en peso). En 1978, los principales países productores y exportadores de tecnología nuclear firmaron un acuerdo, por razones de no-proliferación de armas nucleares, que impuso prohibiciones y restricciones a la exportación de materiales nucleares fisionables especiales, entre ellos UAE. Esta medida tuvo como inmediata consecuencia la necesidad de rediseñar los elementos combustibles de los reactores nucleares para investigación y producción de radioisótopos que se encontraban en operación, en construcción o en etapa de proyecto en



varios países del mundo. Uno de los instrumentos que emergieron en 1978 para la difusión y la cooperación internacional en tecnologías nucleares no-proliferantes es el programa liderado por el Departamento de Energía de los Estados Unidos de América denominado Reduced Enrichment for Research and Test Reactors (RERTR). Desde entonces diversas alternativas han sido experimentadas para la elaboración de combustibles nucleares que utilizan ULE como materia prima (típicamente 20 % ^{235}U en peso).

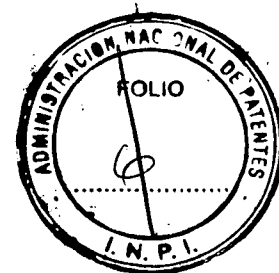
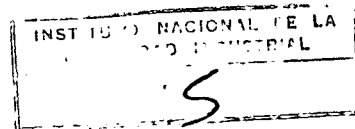
El empleo de U con menor proporción del isótopo fisible hace necesario aumentar la concentración total de U en el combustible, usualmente referida como "densidad de U" y expresada en gU/cm^3 . La ruta de fabricación apropiada para combustibles de ULE consiste esencialmente en la dispersión de polvos de una fase portadora de U (generalmente frágil) en una matriz de fase dúctil. Diversas alternativas han sido consideradas como fase portadora de U: aluminuros de uranio (U_xAl , expresando esta fórmula una aleación conteniendo las fases intermetálicas UAl_2 , UAl_3 y/o UAl_4), óxido de uranio (U_3O_8), siliciuros de uranio (U_3Si_2 y/o U_3Si). Así, el método de fabricación de los combustibles nucleares consiste en: a) Obtención de los compuestos por fundición (U-Al, U-Si) o mediante procesos químicos (U_3O_8); b) Pulverización de los compuestos mediante molienda o maquinado; c) Mezclado del polvo de la fase portadora de U con polvo de Al puro; d) Prensado de la mezcla hasta obtener un compacto, briqueta o pastilla; e) Colaminación o coextrusión de la pastilla entre placas o tubos de aleaciones de Al; f) Mecanizado del conjunto hasta obtener las características dimensionales apropiadas. Con esta técnica se alcanzan densidades típicas de: $2,3 \text{ gU}/\text{cm}^3$ para $\text{UAl}_x\text{-Al}$; $3,2 \text{ gU}/\text{cm}^3$ para $\text{U}_3\text{O}_8\text{-Al}$, y $4,8 \text{ gU}/\text{cm}^3$ para $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$, en las mezclas fase portadora-fase dúctil.

Sin embargo, algunos reactores diseñados para operar con altos flujos neutrónicos, no son convertibles a ULE empleando las dispersiones



mencionadas, sino que requieren densidades de U aún más altas: 8-9 gU/cm³. Por otra parte, los combustibles elaborados con altas densidades de U tienen menor volumen, con la consecuentemente reducción de los costos asociados al almacenamiento del combustible agotado fuera del reactor. Esta exigencia podría ser satisfecha incrementando el porcentaje en volumen de la fase portadora de U en la mezcla, o aumentando la concentración de U de la fase portadora. Sin embargo, la proporción de la fase portadora de U no debe exceder 55 % en volumen para evitar porosidades inaceptables durante la deformación plástica de la mezcla. Esta limitación impone el empleo de una fase portadora de U constituida por soluciones sólidas muy ricas en U con densidades superiores a 15 gU/cm³, dado que no existen compuestos intermetálicos de U con densidades tan altas (excepto U₆Fe, U₆Mn, U₆Co y U₆Ni, que exhiben insatisfactorio comportamiento bajo irradiación). Una de las aleaciones de U más prometedoras es uranio-molibdeno (U-Mo) con concentraciones de Mo entre 5 y 10 % Mo en peso, con estructura cúbica de cuerpo centrado o fase gamma (γ), estable a altas temperaturas. Esta fase puede ser retenida en forma metaestable a temperatura ambiente, y también a las típicas temperaturas de fabricación del combustible nuclear (hasta 400 °C) y de operación en el reactor (hasta 80 °C). Los combustibles nucleares elaborados con U-Mo dispersos en una matriz de Al están demostrando un comportamiento muy satisfactorio en los ensayos de irradiación efectuados hasta el presente. Sin embargo, las aleaciones de U-Mo con esta estructura cristalina son dúctiles a temperatura ambiente y no pueden ser adecuadamente pulverizadas mediante los métodos tradicionalmente empleados en la elaboración de combustibles nucleares de U-Al y U-Si; esto es, mediante molienda mecánica o maquinado.

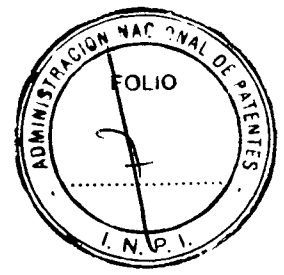
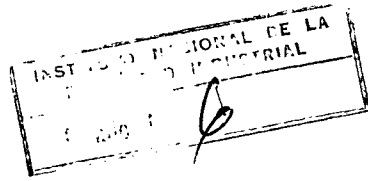
Diversos métodos alternativos han sido empleados para pulverizar aleaciones dúctiles de U.



Uno de ellos es la atomización centrífuga con disco rotatorio, divulgado por la Patente norteamericana US 4997477, en el cual el metal fundido incide sobre un disco que gira a altas velocidades y es fragmentado en pequeñas gotas las cuales son eyectadas centrífugamente solidificando durante su vuelo en una atmósfera de gas inerte. Para asegurar que las gotas solidifiquen antes de impactar con las paredes de la cámara de atomización ésta debe ser suficientemente grande. También se puede aumentar la velocidad de enfriamiento de las gotas usando He como medio refrigerante ya que éste es el gas inerte de mayor conductividad térmica. El método de atomización centrífuga implica un alto costo del equipamiento (atomizador) y empleo de grandes volúmenes de gases inertes. Además, produce partículas con morfología esférica las que presentan problemas de segregación cuando son mezcladas con polvo de Al de mucho menor densidad.

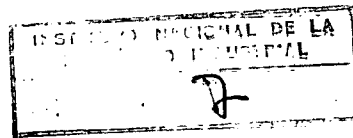
Otro de los procedimientos experimentados es el de molienda criogénica, basado en la transición dúctil-frágil que exhibe la mayoría de los materiales a bajas temperaturas. Aleaciones dúctiles de U-Mo fueron procesadas en molino de bolas de acero y tambor de acero enfriado con Ar líquido. La molienda criogénica exhibe bajo rendimiento obteniéndose partículas de forma irregular en forma de escamas ("flakes") la cual dificulta su posterior deformación plástica, y contaminadas con los materiales de los elementos molidores y del recipiente de molienda.

También ha sido ensayado el amolado, pero este método tiene bajo rendimiento y produce polvo contaminado con abrasivos o herramientas de corte, así como tamaños de partícula excesivamente altos. Por otra parte, los polvos presentan elevada deformación plástica, introduciendo de esta manera muy alta densidad de dislocaciones las cuales son sitios favorables para la nucleación de perjudiciales burbujas de gases de fisión durante la irradiación del combustible nuclear.



Finalmente, el método de hidruración-deshidruración ha sido exitosamente empleado para la pulverización de U puro. Este proceso, se basa en la propiedad del hidrógeno gaseoso (H_2) de reaccionar fácilmente con uranio-alfa ($U-\alpha$), fase estable a bajas temperaturas con estructura cristalina ortorrómbica. La reacción de H_2 con $U-\alpha$ forma hidruro de uranio (UH_3) a temperaturas inferiores a $400\text{ }^\circ\text{C}$. El UH_3 exhibe una densidad de $10,9\text{ g/cm}^3$, la cual es aproximadamente la mitad de la del $U-\alpha$ ($19,1\text{ g/cm}^3$). La hidruración gaseosa se lleva a cabo en reactor químico o cámara sometiendo el lingote de U a una atmósfera de hidrógeno puro o a una mezcla de gases inertes con alta presión parcial de hidrógeno. La absorción de hidrógeno produce un considerable aumento del volumen del lingote de U, provocando de esta manera su desintegración espontánea (decrepitación) a polvos de UH_3 . El hidrógeno incorporado es luego removido o deshidrurado mediante el proceso de desorción, el cual es llevado a cabo mediante un tratamiento térmico a temperaturas superiores a $400\text{ }^\circ\text{C}$ bajo vacío dinámico o en una atmósfera inerte. En cambio, la fase uranio-gamma ($U-\gamma$), estable a altas temperaturas y con estructura cristalina cúbica de cuerpo centrado, no exhibe tal tendencia a formar hidruros sino que coexiste en equilibrio con hidrógeno gaseoso. Asimismo, las aleaciones de U-Mo con estructura íntegramente γ no se hidruran, salvo a presiones muy altas, por lo cual este método no sería aplicable para obtener polvos.

La novedad de la presente invención es un procedimiento para modificar en forma apropiada y transitoria la microestructura de aleaciones U-Mo con contenidos de Mo comprendidos entre 5 y 10 % en peso, hasta obtener granos de la fase γ con la presencia de la fase α distribuida en los bordes de grano de la fase γ , y someter la aleación a hidruración (formación de UH_3), produciendo así la fractura intergranular y la transformación espontánea del material a polvo. El tamaño de las partículas se controla por el tamaño de grano inicial en el material. Este

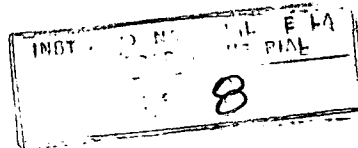


procedimiento resuelve el problema de la inaplicabilidad del proceso de hidruración-deshidruración para obtener un polvo homogéneo de aleaciones dúctiles de U-Mo con fase γ . Solucionado este inconveniente, el método de hidruración-deshidruración es ventajoso y preferible por las siguientes razones:

- a) El equipamiento que se utiliza es de bajo costo por ser común en cualquier laboratorio metalúrgico, como lo son los hornos eléctricos para tratamientos térmicos, la cámara de cuarzo o sílice, los cierres de bajo vacío, la bomba mecánica de vacío, el dispositivo para la introducción selectiva y controlada de gases, y los medidores de flujo gaseoso. Estos equipos no presentan inconvenientes para su instalación en cajas de guantes.
- b) El polvo producido no resulta contaminado con elementos moledores, abrasivos ni herramientas de corte.
- c) La morfología irregular de las partículas producidas resulta ventajosa frente a una morfología esférica en la etapa de mezclado con polvo de Al, minimizando la segregación.
- d) El tamaño de las partículas puede ser ajustadamente controlado mediante un apropiado tratamiento térmico de la aleación posterior a la fundición de la misma.

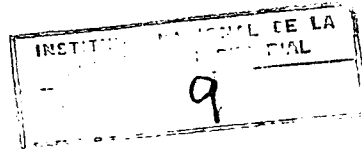
El procedimiento para la obtención de polvos de aleaciones metálicas dúctiles de uranio-molibdeno (U-Mo) con concentraciones comprendidas entre 5 y 10 % Mo en peso (siendo el balance U), y con estructura cristalina cúbica de cuerpo centrado o fase gamma (γ), de la presente invención, consta de la siguientes etapas:

1. Fundición de la aleación de U-Mo: Se fraccionan y pesan U y Mo en cantidades apropiadas para preparar aleaciones de U-Mo con concentraciones de 5 a 10 % Mo en peso, siendo el balance U. A través de la fundición se obtiene un lingote de la aleación.



2. Tratamiento térmico de homogenización: Someter a un lingote de la aleación a un tratamiento térmico de homogeneización, obteniendo de esta manera una estructura monofásica y policristalina de U-Mo con estructura γ , preferentemente con un tamaño de grano o cristal similar al tamaño de las partículas del polvo deseado.
3. Tratamiento térmico de precipitación: Someter a la aleación homogeneizada a un tratamiento térmico de precipitación a fin de lograr una microestructura bifásica constituida predominantemente por granos de la solución sólida U-Mo con estructura cristalina γ mayoritaria, y con la fase uranio-alfa (α) minoritaria con estructura cristalina ortorrómbica distribuida en los bordes de grano de la fase γ .
4. Hidruración gaseosa en un reactor químico: Someter la aleación precipitada a un tratamiento de hidruración gaseosa, provocando así la transformación de la fase α a hidruro de uranio (UH_3), con el consecuente aumento de volumen de esta transformación y la generación de fisuras intergranulares y/o transgranulares en la aleación, las cuales producen la decrepitación de la aleación.
5. Deshidruración: Deshidrurar el polvo de la aleación así obtenido mediante un tratamiento térmico en vacío o en una atmósfera inerte.
6. Tratamiento térmico de transformación y homogeneización: Someter al polvo así obtenido a un tratamiento térmico de recuperación y homogeneización de la fase γ , y retener esta estructura en estado metaestable a temperatura ambiente.

El objetivo principal de la presente invención es un procedimiento para modificar en forma apropiada y transitoria la microestructura de aleaciones U-Mo con contenidos de Mo comprendidos entre 5 y 10 % en peso, y la obtención de polvos de aleaciones metálicas dúctiles de uranio-molibdeno (U-Mo) con estructura cristalina cúbica de cuerpo centrado o fase gamma (γ).



Una aplicación de los polvos de aleaciones metálicas de U-Mo obtenidos por el procedimiento de la presente invención es su empleo en la elaboración de combustibles nucleares de bajo enriquecimiento isotópico para reactores de investigación, de ensayo y de producción de radioisótopos

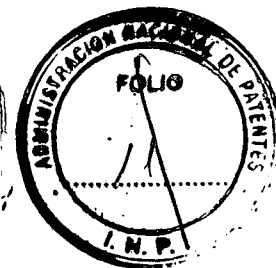
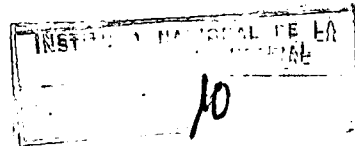
A fin de una mejor comprensión de la presente invención y mayor entendimiento de las ventajas comentadas, más las que los entendidos en la especialidad podrán agregar, se realiza a continuación la descripción detallada del procedimiento para la obtención de polvos de aleaciones metálicas dúctiles de uranio-molibdeno (U-Mo) de la presente invención. El mismo consta de la siguientes etapas:

- **Fundición de la aleación (Etapa conocida):**

Se fraccionan y pesan U y Mo en cantidades apropiadas para preparar aleaciones de U-Mo con concentraciones de 5 a 10 % Mo en peso, siendo el balance U. La aleación, en forma de lingote, se obtiene por fundición de estas materias primas mediante alguno de los procesos convencionales de fundición de U y sus aleaciones. Preferentemente se puede emplear un horno de inducción electromagnética bajo atmósfera inerte, o un horno de arco eléctrico bajo atmósfera inerte con electrodo no-consumible de tungsteno y crisol de cobre refrigerado por agua.

(a) - Tratamiento térmico de homogeneización:

Se somete el lingote obtenido a un tratamiento térmico de homogeneización en un horno eléctrico bajo atmósfera inerte a fin de lograr una microestructura esencialmente monofásica y policristalina de fase γ . Durante este tratamiento térmico se homogeniza la microsegregación de U en los bordes de grano de la fase γ originadas durante la solidificación de la aleación. También puede producirse crecimiento de grano de la fase γ . Este tratamiento térmico se realiza en el rango de temperaturas 800-1100 °C y por períodos de tiempo de



1 a 48 horas. Luego de este tratamiento térmico el lingote es enfriado rápidamente hasta temperatura ambiente a fin de retener en forma metaestable la fase γ . El lingote resultante debe exhibir una microestructura de granos equiaxiales, preferentemente con un tamaño de grano similar al tamaño de las partículas del polvo deseado.

(b) - Tratamiento térmico de precipitación:

El lingote homogeneizado es luego sometido a un tratamiento térmico de precipitación en atmósfera inerte en el rango de temperaturas de 520-580 °C durante 2 a 48 horas a fin de lograr la transformación de la microestructura monofásica γ a una microestructura bifásica $\gamma + \alpha$, mediante el mecanismo denominado "descomposición celular discontinua". Dicha microestructura está constituida por granos de la fase γ con colonias o conjuntos bifásicos en sus bordes de grano. Estas colonias están constituidas por finas láminas alternadas de la fase α (muy rica en U) y la fase γ más enriquecida en Mo que la fase γ original. Durante este tratamiento térmico las colonias se forman en los bordes de grano y crecen hacia el interior de los granos. Esta microestructura es luego retenida en forma metaestable mediante un enfriamiento rápido hasta temperatura ambiente.

(c) - Hidruración:

La aleación con microestructura bifásica $\gamma + \alpha$ así obtenida, es luego sometida a un tratamiento de hidruración gaseosa en un reactor químico en el rango de temperaturas 200-350 °C durante 1 a 6 horas bajo flujo continuo de H_2 . Durante la hidruración se produce la reacción entre la fase α y el H_2 para formar UH_3 , con el consecuente aumento en volumen del producto de la reacción. La dilatación del material produce la generación de tensiones internas en la aleación hidrurada, fracturas intergranulares y/o transgranulares y su desintegración espontánea a polvo o decrepitación.

(d) - Deshidruración:

El polvo así obtenido, constituido por partículas de fase γ y partículas de UH_3 , se somete a un tratamiento de deshidratación en el reactor químico arriba descrito a temperaturas comprendidas entre 400 y 750 °C durante aproximadamente 1 hora, haciendo vacío dinámico en la cámara o mediante un flujo continuo de gas inerte. El polvo obtenido luego de la deshidratación está constituido por partículas de la fase γ enriquecida en Mo (respecto de la composición inicial de la aleación) y partículas de fase α (rica en U).

(e) - Tratamiento térmico de transformación y homogeneización:

El polvo, constituido por partículas de fase γ (enriquecida en Mo) y de fase α (rica en U), es luego convertido o transformado íntegramente a fase γ , de idéntica composición química que la aleación original, mediante un tratamiento térmico a temperaturas comprendidas entre 750 y 1000 °C durante 3 a 6 horas en vacío o en una atmósfera inerte. El polvo homogeneizado es enfriado hasta temperatura ambiente mediante un enfriamiento rápido.

El polvo así obtenido es luego tamizado y clasificado mediante alguno de los procedimientos habituales empleados en pulvimetalurgia.

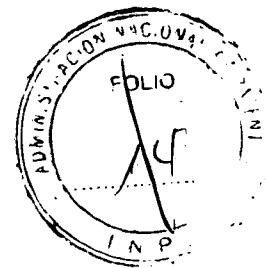
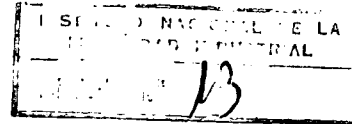
Es importante destacar que las etapas 2 hasta 6 inclusive pueden llevarse a cabo en un mismo dispositivo realizando los distintos tratamientos térmicos así también como los tratamientos de hidratación y deshidratación. Asimismo, las etapas 2 hasta 6 inclusive pueden efectuarse en forma consecutiva sin necesidad de enfriar la aleación hasta temperatura ambiente.

El procedimiento propuesto en la presente invención puede aplicarse a la fabricación de elementos combustibles tipo placa, con alta concentración de U (hasta 95 % en peso) de bajo enriquecimiento isotópico (aproximadamente 20 % ^{235}U en peso).

Para mayor aclaración del procedimiento la presente invención, y la manera que la misma ha de ser llevada a la práctica, se explica a continuación un ejemplo de realización de la invención:

Un lingote de 50 g de una aleación de 92 % U-8 % Mo en peso se funde en un horno de arco eléctrico bajo atmósfera de Ar, con electrodo no-consumible de tungsteno y crisol de cobre refrigerado con agua. Para ello se fraccionan y pesan 41 g de U natural y 4 g de Mo, se colocan dentro del crisol, se evacua el horno mediante bombas de vacío hasta una presión de $5 \cdot 10^{-3}$ torr y se permite el ingreso de Ar hasta lograr una presión en el horno de aproximadamente 150 torr, dejando estanco el recipiente. Se inicia el proceso fundición haciendo saltar un arco voltaico de corriente continua entre el electrodo (polaridad negativa) y la carga de los aleantes en contacto con el crisol (polaridad positiva) hasta fundirla, obteniendo así un lingote con forma de botón. El horno se opera con 15 V de tensión y 400 A de corriente durante aproximadamente 30 seg., desplazando el electrodo para permitir que el arco voltaico incida sobre toda la carga sin interrupción. El lingote se invierte sucesivamente cuatro o cinco veces (mediante un dispositivo mecánico o telemanipulador) a fin de obtener un lingote macroscópicamente homogéneo en composición química. El lingote se examina mediante metalografía óptica en una sección meridional verificando su homogeneidad por la ausencia de fragmentos de Mo sin disolver.

Posteriormente el lingote se encapsula en un tubo de sílice, evacuado hasta aproximadamente 10^{-5} torr, y se llena con Ar hasta aproximadamente 300 torr. La cápsula conteniendo el lingote se introduce en un horno de resistencia eléctrica de tipo tubo horizontal y se somete a un tratamiento térmico de homogeneización a una temperatura de 1000°C durante 24 horas. El tratamiento finaliza por templado de la cápsula en agua a temperatura ambiente sin rotura de la cápsula. Mediante difracción de rayos X, se verifica que la aleación presenta una estructura cristalina

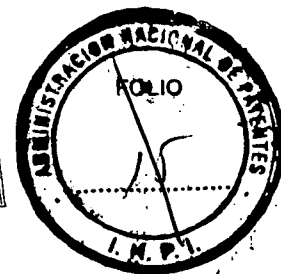
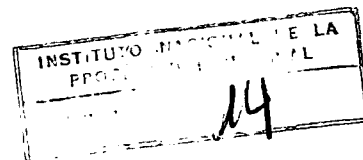


monofásica correspondiente a la fase γ retenida en forma metaestable. También, mediante metalografía óptica, se corrobora que la aleación presente una estructura monofásica y policristalina de granos equiaxiales con un tamaño de grano menor que 300 micrones.

La aleación homogenizada se encapsula nuevamente en Ar bajo idénticas condiciones que las descritas en el párrafo precedente, se la somete a un tratamiento térmico de precipitación en un horno eléctrico a 565 °C durante 24 horas, y se la temple en agua a temperatura ambiente sin rotura de la cápsula. Mediante un examen metalográfico se verifica que la fase γ vecina a los bordes de grano transformó a una fina estructura de láminas alternadas de las fases γ y α . El espesor de la zona que rodea los granos de la fase γ original es de 10 a 40 μm .

La aleación con esta modificación microestructural se somete luego a un tratamiento de hidruración gaseosa en un reactor químico. El hidrógeno proviene de un generador electrolítico con un nivel máximo de impurezas de 10 ppm en peso. Dicho reactor está constituido por un tubo vertical de sílice de 25 mm de diámetro y 300 mm de largo con el extremo inferior cerrado, y en cuyo fondo se coloca la muestra a hidrurar. El tubo vertical contiene interiormente otro tubo concéntrico de sílice de 4 mm de diámetro con su extremo inferior abierto, y posicionado justo sobre la muestra, por donde ingresa hidrógeno y/o Ar de alta pureza. Este dispositivo se aloja dentro de un horno vertical de resistencia.

La hidruración de 5g de aleación se realiza introduciendo hidrógeno gaseoso a temperatura ambiente manteniendo un flujo de 1 cm^3/s . La cámara de hidruración se introduce dentro del horno previamente calentado hasta 250 °C y se mantiene a esa temperatura durante 6 horas. Posteriormente la cámara se retira del horno y se enfría hasta temperatura ambiente, pudiéndose observar a través del tubo de sílice que la muestra se ha transformado a polvo (decrepitado). Sin apertura de la cámara, y bajo flujo de Ar, se introduce en el horno y se eleva la temperatura a 750

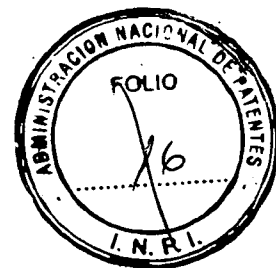
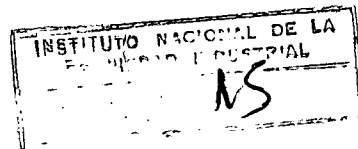


°C. El polvo de la aleación se deshidrura entre 500 y 600 °C, mientras que el flujo de Ar barre el hidrógeno desorbido.

El polvo deshidrurado se transforma luego íntegramente a fase γ calentándolo a 750 °C durante de 3 horas. Finalmente, se enfría hasta temperatura ambiente mediante el ingreso de un alto caudal de Ar, se abre la cámara y se retira el polvo. En caso de coalescencia o aglomeración de las partículas de polvo durante la etapa de deshidruración, se puede realizar una eventual molienda mecánica en mortero.

La estructura cristalina de fase γ se verifica mediante difracción de rayos X. Mediante microscopía electrónica de barrido se puede observar la morfología irregular de las partículas y comprobar que el tamaño de las partículas resulta inferior a 300 μm . La distribución granulométrica se mide mediante sedigrafía o clasificación por tamizado.

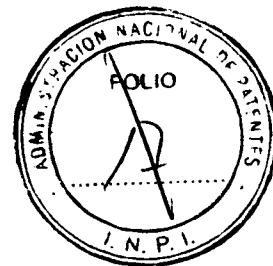
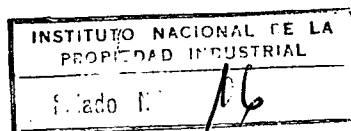
Siguen 8 reivindicaciones en página 15.



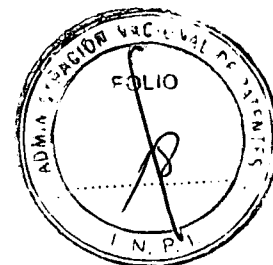
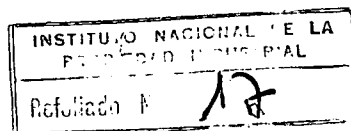
REIVINDICACIONES

Habiendo descripto y determinado la naturaleza y alcance de la presente invención, y la manera que la misma ha de ser llevada a la práctica, se declara lo que se reivindica como invención y de propiedad exclusiva :

1. Procedimiento para la obtención de polvos de aleaciones metálicas dúctiles de uranio-molibdeno (U-Mo), en el que luego de la etapa de obtención de un lingote de la aleación de U-Mo, con concentraciones de 5 a 10 % Mo en peso, siendo el balance U, es caracterizado por comprender, por lo menos, las siguientes etapas::
 - (a) - Tratamiento térmico de homogeneización, en la cuál se somete, a dicho lingote de la aleación de U-Mo, con concentraciones de 5 a 10 % Mo, a un tratamiento térmico de homogeneización, obteniendo de esta manera una estructura monofásica y policristalina de U-Mo con estructura γ .
 - (b) - Tratamiento térmico de precipitación, en la cuál se somete a la aleación homogeneizada a un tratamiento térmico de precipitación a fin de lograr una microestructura bifásica constituida predominantemente por granos de la solución sólida U-Mo con estructura cristalina γ mayoritaria, y con la fase uranio-alfa (α) minoritaria con estructura cristalina ortorrómbica distribuida en los bordes de grano de la fase γ .
 - (c) - Hidruración gaseosa en un reactor químico, en la cuál se somete a la aleación precipitada a un tratamiento de hidruración gaseosa, provocando así la transformación de la fase α a hidruro de uranio (UH_3), con el consecuente aumento de volumen de esta transformación y la generación de fisuras intergranulares y/o transgranulares en la aleación, las cuales producen la decrepitación de la aleación.



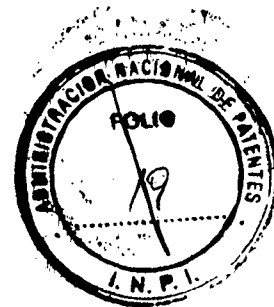
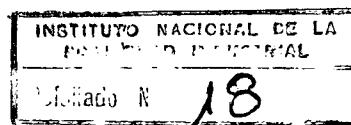
- (d) - Deshidruración, en la cuál se deshidrura el polvo de la aleación obtenido, mediante un tratamiento térmico en vacío o en un flujo de gas inerte.
- (e) - Tratamiento térmico de transformación y homogeneización, en la cuál se somete al polvo así obtenido a un tratamiento térmico de transformación y homogeneización de la fase γ , y se retiene esta estructura en estado metaestable a temperatura ambiente.
- 2.** Procedimiento para la obtención de polvos de aleaciones metálicas dúctiles de uranio-molibdeno (U-Mo), según la reivindicación 1, caracterizado porque dicha etapa de Tratamiento térmico de precipitación se realiza a temperaturas en el rango de temperatura de 520 a 580 °C y por un período de tiempo de 2 a 48 horas.
- 3.** Procedimiento para la obtención de polvos de aleaciones metálicas dúctiles de uranio-molibdeno (U-Mo), según la reivindicación 2, caracterizado porque dicha etapa de Hidruración gaseosa se realiza en un reactor químico en el rango de temperaturas de 200 a 350 °C, durante un tiempo mayor a 1 hora, bajo flujo continuo de hidrógeno.
- 4.** Procedimiento para la obtención de polvos de aleaciones metálicas dúctiles de uranio-molibdeno (U-Mo), según las reivindicaciones 1 a 3, caracterizado porque dicha etapa de Deshidruración se realiza en un reactor químico a temperaturas comprendidas entre 400 y 750 °C, haciendo vacío dinámico en la cámara o mediante un flujo continuo de gas inerte.
- 5.** Procedimiento para la obtención de polvos de aleaciones metálicas dúctiles de uranio-molibdeno (U-Mo), según las reivindicaciones 1 a 4, caracterizado porque dicha etapa de Tratamiento térmico de transformación y homogeneización se realiza a temperaturas comprendidas entre 750 y 1000 °C durante 3 a 6 horas en vacío o en



una atmósfera inerte y el polvo homogeneizado es enfriado hasta temperatura ambiente mediante un enfriamiento rápido.

6. Procedimiento para la obtención de polvos de aleaciones metálicas dúctiles de uranio-molibdeno (U-Mo), según las reivindicaciones 1 a 5, caracterizado porque dicha etapa de Tratamiento térmico de homogenización se realiza en atmósfera inerte en el rango de temperaturas de 800-1100 °C durante 1 a 48 horas, y un posterior enfriamiento rápido hasta temperatura ambiente.
7. Procedimiento para la obtención de polvos de aleaciones metálicas dúctiles de uranio-molibdeno (U-Mo), según cualquiera de las reivindicaciones anteriores, caracterizado porque dichas etapas de tratamientos térmicos (a), (b) y (e), de hidruración (c) y deshidruración (d) se realizan en el mismo reactor químico, ubicado dentro de un horno, en forma continua.
8. Procedimiento para la obtención de polvos de aleaciones metálicas dúctiles de uranio-molibdeno (U-Mo), según cualquiera de las reivindicaciones anteriores, caracterizado porque luego de dicha etapa de Tratamiento térmico de transformación y homogenización se somete al polvo obtenido a una etapa de tamizado y clasificado.

Ing. Jorge Anibal Fernández
Responsable de Patentes
Comisión Nacional de Energía Atómica



RESUMEN

La presente invención consiste en un procedimiento para la obtención de polvos de aleaciones metálicas dúctiles de uranio-molibdeno (U-Mo) con concentraciones comprendidas entre 5 y 10 % Mo en peso (siendo el balance U), y con estructura cristalina cúbica de cuerpo centrado o fase gamma (γ). El procedimiento consiste en:

- (a) - Someter a un lingote de la aleación a un tratamiento térmico de homogenización, obteniendo una estructura monofásica y policristalina de U-Mo con estructura γ .
- (b) - Someter a la aleación homogeneizada a un tratamiento térmico de precipitación para lograr una microestructura constituida por granos de U-Mo con estructura cristalina γ mayoritaria, y con la fase uranio-alfa (α) minoritaria distribuida en los bordes de grano de la fase γ ;
- (c) - Someter la aleación precipitada a un tratamiento de hidruración gaseosa, provocando la transformación de la fase α a hidruro de uranio (UH_3), produciendo la decrepitación de la aleación.
- (d) - Deshidrurar el polvo de la aleación así obtenido mediante un tratamiento térmico en vacío o bajo un flujo continuo de gas inerte.
- (e) - Someter al polvo así obtenido a un tratamiento térmico de transformación y homogenización de la fase γ , y retener esta estructura en estado metaestable a temperatura ambiente.

Una aplicación de los polvos de aleaciones metálicas de U-Mo obtenidos por el procedimiento de la presente invención es su empleo en la elaboración de combustibles nucleares de bajo enriquecimiento isotópico para reactores de investigación, de ensayo y de producción de radioisótopos.