

POLVO DE URANIO-MOLIBDENO (PROCESO HMD). PUESTA A PUNTO FINAL

M. López^a ; E.E. Pasqualini^a; A. González^a

^a Departamento de Combustibles Nucleares, Comisión Nacional de Energía Atómica, Av. Del Libertador 8250
(1429), Buenos Aires, Argentina
Correspondencia electrónica: marlopez@cnea.gov.ar

La metalurgia de polvos ofrece diferentes alternativas para la obtención de partículas de la aleación Uranio-Molibdeno (UMo) en rangos de tamaño inferiores a 150 μm , característica necesaria en materiales dispersos en matriz de aluminio a ser utilizados para la fabricación de elementos combustibles nucleares empleados en los reactores de investigación y producción de radioisótopos (MTR).

Se ha desarrollado el proceso de hidruración en fase gamma de la aleación UMo, para lograr polvos que entren dentro de especificación.

En este trabajo se describen los pasos finales realizados para la obtención de este material por hidruración-molienda-deshidruración (HMD) y sus ventajas y desventajas al llevar este proceso a escala industrial; también se realiza una descripción de cada uno de los equipos empleados para su fabricación.

Se analiza la reacción exotérmica producida durante el pasivado del material mediante curvas obtenidas por termogravimetría; se describen los distintos principios de molienda para el material según el tamaño de partícula y se analiza la deformación del mismo .

Palabras claves: hidruración, uranio, molibdeno, combustibles nucleares, reactores de investigación, producción de radioisótopos.

1. INTRODUCCION

La necesidad de reducir el enriquecimiento de uranio para reactores de investigación y producción de radioisótopos MTR (material test reactors) al 20% de ^{235}U ha llevado al estudio de la aleación de uranio - 7% molibdeno (en peso), la cual se encuentra en la última etapa de prueba y calificación internacional.

Para poder ser utilizado como material nuclear, esta aleación debe presentarse en forma de polvo siguiendo una distribución específica de tamaño de partícula que será posteriormente mezclada con polvo de aluminio para la obtención de las placas combustibles.

Debido a la ductilidad de esta aleación los métodos de pulverización requieren equipamiento costoso cuya inversión muchas veces no se justifica debido a los pequeños volúmenes utilizados por razones de criticidad.. Este problema se ha resuelto fragilizando el material con la incorporación de hidrógeno (en fase gamma del uranio) hasta la formación de hidruro de estequiometría UH_n (donde $3 > n > 2$), la molienda del mismo y la correspondiente deshidruración del polvo obtenido para retornar a las características iniciales del material de origen.

2. DESARROLLO EXPERIMENTAL

El proceso HMD está gobernado fundamentalmente por tres etapas que consisten en:

- a) Proceso de hidruración: donde el material es fragilizado.
- b) Molienda: el material fragilizado es reducido por distintos procesos de molienda, dependiendo del tamaño de la muestra.
- c) Deshidruración: el material que ha llegado al tamaño adecuado se transforma nuevamente en la aleación dúctil de UMo.

2.1 Hidruración:

Esta etapa es crítica en función de la transformación del material dúctil a frágil, lo que permite su posterior tratamiento para la disminución de tamaño de partículas por métodos convencionales de reducción (molienda).

Se conoce que esta aleación posee una baja solubilidad de hidrógeno, pero para su hidruración masiva en la fase metaestable bcc es necesaria la disolución previa de bajas concentraciones de H_2 ; para ello se coloca el material en horno a 700°C durante una hora en atmósfera de hidrógeno a una presión de 1 bar. La temperatura seleccionada para la disolución del hidrógeno se ha elegido siguiendo las curvas de solubilidad del hidrógeno y de estabilidad de la fase gamma del uranio; sin embargo datos recientes obtenidos en nuestro laboratorio sugieren

un mecanismo de incorporación de hidrógeno donde las trampas juegan un rol importante. La aleación que se introduce en la cámara está particionada en trozos de tamaño 20 x 20 x 10 mm.

El dispositivo empleado para este proceso consiste en una cámara de acero inoxidable, que se evacúa a través de bombas mecánica y difusora, con un volumen aproximado de 1 litro, ubicada dentro de un horno valija vertical.

A partir de este material con hidrógeno disuelto se procede a la hidruración masiva a bajas temperaturas en atmósfera de hidrógeno [1,2]. En esta etapa del tratamiento el material es sometido a temperaturas entre 50 a 190°C , pero el pico de hidruración se observa a 120°C; la presión es aproximadamente de 1 atmósfera. La duración de esta etapa es de 36 horas y finaliza cuando no se observa más incorporación de hidrógeno al sistema. Es necesario, antes de quitar el material de la cámara la pasivación del mismo, para evitar su ignición en contacto con el aire; este proceso es exotérmico y ha sido analizado a través de curvas obtenidas por termogravimetría, determinando la entalpía de oxidación.

El material obtenido está fragilizado y fragmentado; se puede observar la presencia partículas pequeñas que entran en especificación sin necesidad de tratamiento de reducción.

El resto del material se somete a reducción por distinto tipo de molinos, dependiendo del tamaño de la misma a este proceso se lo denomina molienda.

2.2 Molienda.

La molienda permite la reducción del material al tamaño deseado para que pueda entrar en especificación, considerando que la cantidad de finos aumentará luego de la deshidruración debido al reordenamiento del material.

El material a ser molido se separa en dos fracciones, las partículas inferiores a 2 mm son molidas bajo atmósfera de 75% de Ar y 25 % de aire, evitando la oxidación violenta de las mismas y disminuyendo así la piroficidad. El molino utilizado está diseñado especialmente para este procedimiento y su esquema se observa en la figura 1.

Aquellas partículas cuyo tamaño sea superior a 2 mm son sometidas a una reducción previa antes de ingresar al molino cónico giratorio, pasando las mismas por un molino de rodillos, este proceso se realiza en atmósfera controlada.

Luego de ambos procedimientos, y regulando la apertura del molino vertical se puede obtener una distribución mínima de finos del 25% (< 45 :M).

Se busca reducir la presencia de partículas pequeñas, pues, si bien la cinética de reacción del U-Mo con la matriz de aluminio es mayor en el caso del material combustible de los siliciuros [3], puede existir mayor interacción a menor tamaño de partícula.

Se ha observado que la distribución fundamental de las partículas finas posee un pico que se debe a la distancia entre las fisuras transgranulares producidas por el gran cambio de volumen durante el tratamiento de hidruración.

2.3 Deshidruración

Esta es la etapa final del proceso, que incluye dos operaciones. La primera consiste en la deshidruración propiamente dicha y la segunda etapa es la pasivación del material.

La deshidruración se lleva a cabo en la misma cámara que la hidruración, pero el material es sometido a una temperatura de 700°C, durante una hora , para la evacuación completa del hidrógeno en la cámara se conecta la misma con un sistema de bomba y difusora. Para evitar la deshidruración violenta que produce fuga de polvos de la cámara, se realiza una rampa de temperatura con presión de hidrógeno que controla la velocidad descomposición. Una vez deshidrurado el material, se procede a la pasivación del mismo con el ingreso lento de aire en la cámara evacuada, a temperatura ambiente..

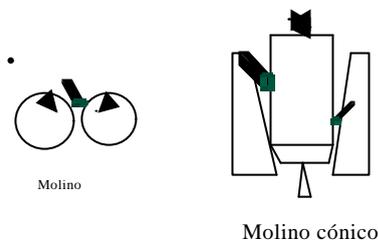


Figura 1. Descripción de los molinos de rodillos y el cónico giratorio.

3. CONCLUSIONES.

Este sistema está optimizado para producir lotes de un kilo, trabajando con uranio enriquecido al 20% . Se está estudiando los mecanismos de hidruración en función de optimizar el proceso en su integridad. Este método alternativo requiere equipos convencionales y poca inversión en comparación con los métodos ya utilizados de atomización centrífuga.

4. REFERENCIAS

- [1] E. E. Pasqualini, J. Helzel Garcia, M. López and E. Cabanillas. AATN, nov., 2001, Buenos Aires, Argentina.
- [2] E. E. Pasqualini, J. Helzel Garcia, M. López, E. Cabanillas and P. Adelfang. Proceedings RRFM, March 17-20, 2002. Ghent, Belgium.
- [3] M. K. Meyer, G. L. Hofman, R. V. Strain, C. R. Clark and J. R. Stuart. Proc. 2000 Int. Meeting

RERTR, Las Vegas, Nevada, USA. ANL/TD/TM01-12, pp. 202-213.