



314799

MEMORIA DESCRIPTIVA

DE UNA PATENTE DE INVENCION, POR VEINTE AÑOS EN ESPAÑA, A FAVOR DE LA COMPAGNIE POUR L'ETUDE ET LA REALISATION DE COMBUSTIBLES ATOMIQUES-C.E.R.C.A., DE NACIONALIDAD FRANCESA, RESIDENTE EN PARIS-8 (Francia) 41, Avenue Montaigne

s o b r e:

"PROCEDIMIENTO PARA EL EMPLEO DE NUEVAS ALEACIONES DE URANIO EN COMBUSTIBLES NUCLEARES"

La presente invención se refiere a las aleaciones de uranio para combustibles nucleares o para cualquier otro uso, y, más en particular, a aquellas aleaciones a las que la adición de pequeñas proporciones de ciertos elementos, escogidos convenientemente, confiere, directamente después de vaciarse, una finura de estructura y una estabilidad bajo la irradiación que normalmente no se conseguirían si no era con unas proporciones notables de elementos de aportación o gracias a tratamientos metalúrgicos complementarios.

10

Se sabe que para los combustibles nucleares a base de

314799

30



uranio metálico, el grado de utilización del uranio, y, por  
consiguiente, la cantidad de energía que se puede extraer de  
él, están en la actualidad severamente limitados por el dete-  
rioro progresivo de los elementos combustibles al someterse  
5 a la irradiación. También se sabe que la duración de perma-  
nencia posible, sin un deterioro prohibitivo, de dichos ele-  
mentos combustibles a base de uranio metálico en el reactor  
depende, en gran parte, de su estructura poli-cristalina ini-  
cial y de la estabilidad de esta estructura en las condicio-  
10 nes de funcionamiento del reactor. Se sabe, en fin, que las  
mejores garantías de estabilidad las ofrece una estructura  
de granos finos, libre de violencias o tensiones y de orien-  
taciones preferenciales, y que no es posible en la práctica  
reunir estas características y sobre todo conservarlas en el  
15 uranio no aleado.

La afinación del uranio ligeramente aleado se obtiene  
actualmente siguiendo uno de los procedimientos siguientes:

- para las aleaciones diluídas en peso de elementos de adi-  
ción, mediante temple a la temperatura ordinaria desde el  
20 dominio de existencia de la fase beta o por descomposición  
isoterma de la fase beta en un intervalo reducido del  
dominio de existencia de la fase alfa.
- para las aleaciones intermedias, del tipo en particular  
de las aleaciones de dos fases (uranio-molibdeno, uranio-  
25 cromo, etc.) por recalentamiento y temple dulce.
- sólo las aleaciones más concentradas ( con más del 1% en  
peso de elementos de adición) se pueden abandonar al en-  
friamiento natural en el molde, después de ser vaciado.

Por consiguiente, la finura de la estructura cristalina  
30 se obtiene actualmente bien al precio de la operación suple-



mentaria que constituye un tratamiento térmico, o bien al precio de la incorporación al combustible de unas proporciones notables de elementos de aleación, lo que no se hace sin un consumo apreciable de la reactividad del combustible que  
5 puede necesitar su enriquecimiento en uranio 235. Por lo tanto, esta finura es, en definitiva, una característica que cuesta cara. Además, ciertos tratamientos tales como el temple directo después del dominio beta inducen en el elemento combustible unas violencias no despreciables y, verosimilmente,  
10 te, unas orientaciones preferenciales que resultan del paso de la fase beta a la fase alfa.

El vaciado de las barras de uranio es evidentemente el procedimiento de dar forma más sencillo y más económico, por eso se comprenderá el interés que tiene la puesta a punto  
15 de aleaciones de pequeñas proporciones de elementos de adición y que sin embargo presenten estructura cristalina deseada por simple enfriamiento después del vaciado, sin precisar ningún tratamiento térmico ulterior. Estas aleaciones, por otra parte, serán tanto más interesantes cuanto más amplias  
20 sean las gamas de composiciones y de velocidades de enfriamiento para las que se pueda obtener en la práctica dicha estructura cristalina.

La patente francesa 1.357.838, depositada el 26 de febrero de 1963 por la solicitante de la presente para proteger  
25 "aleaciones de uranio para combustibles nucleares", da las características de una primera familia de aleaciones de uranio con pequeñas proporciones de elementos de adición que presentan las condiciones anteriores. Estas aleaciones se caracterizan por la presencia de tres elementos de adición:  
30 cromo, silicio y zirconio, cuya proporción global en

314799



la aleación no pasa del 0,4% en peso sino que lo más frecuentemente se fija entre el 0,1 y el 0,2%, escogiéndose las concentraciones parciales de cada uno de los elementos de adición en función de la velocidad de enfriamiento prevista.

5 Sin embargo se sabe que la presencia de tal o tal elemento, aun en cantidades relativamente pequeñas, puede resultar inconveniente en ciertas aplicaciones particulares. Por eso la solicitante ha tratado de extender el dominio de composición de las aleaciones de uranio con ligeras proporciones de  
10 elementos de adición, susceptibles de adquirir la estructura isótropa de gránulos finos deseada por enfriamiento directo después del vaciado.

La presente invención se refiere a una nueva familia de tales aleaciones. Estas aleaciones se caracterizan por la presencia de tres elementos de adición, cromo, germanio y zirconio, cuya proporción global en la aleación queda comprendida entre  
15 el 0,05 y el 0,5 % en peso. Las principales características de estas nuevas aleaciones de auto-temple se describirán ahora con referencia a las figuras 1ª a 4ª adjuntas, que reproducen  
20 unas secciones metalográficas efectuadas sobre las muestras siguientes:

La figura 1ª reproduce la sección de una muestra de uranio sin aleación, obtenido por enfriamiento a razón de 25°C por minuto desde la temperatura de vaciado (1500°C). Ampliación alrededor de tres veces.  
25

La figura 2ª representa la sección de una muestra de una aleación cuaternaria que contiene el 99,7% de uranio, 0,15% de cromo, 0,10% de germanio y 0,05% de zirconio, y se obtuvo directamente después de vaciado por enfriamiento a razón de 8°C por minuto. Ampliación unastres veces.  
30



La figura 3ª reproduce la sección de una muestra de una aleación cuaternaria de la misma composición que la de la figura 2ª, obtenida directamente después de vaciado por enfriamiento a razón de 25°C por minuto. Ampliación unas tres veces.

5 La figura 4ª es una ampliación de una pequeña zona de la figura 3ª. Ampliación del orden de las cien veces.

Las aleaciones de uranio según la invención se caracterizan por la presencia de tres elementos de adición: cromo, germanio y zirconio, cuya proporción global en la aleación  
10 está comprendida aproximadamente entre el 0,05 y el 0,5% en peso, pudiendo variar las proporciones parciales entre 0,02 y 0,3% para el cromo y el germanio y entre 0,01 y 0,3% para el zirconio.

En el cuadro de los límites definidos anteriormente, las  
15 proporciones óptimas de cada uno de los diversos elementos depende de la ley de enfriamiento previsto para la pieza después del vaciado de la aleación. Si se debe abandonar la pieza al enfriamiento natural, se puede asimilar esta ley de enfriamiento a la velocidad media de enfriamiento entre 750 y 550°C, es  
20 decir aproximadamente entre las temperaturas de transformación gamma-beta y beta-alfa de este tipo de aleación. La elección de las proporciones parciales de cromo, germanio y zirconio se debe guiar por las observaciones generales siguientes:

- 25 -la proporción parcial de cromo deberá ser tanto mayor cuanto menos sea la velocidad de enfriamiento prevista.  
-para una velocidad de enfriamiento dada y una proporción de cromo escogida convenientemente, el contenido de germanio puede variar dentro de unos límites tanto más  
30 amplios cuanto menor sea la velocidad de enfriamiento.

314799



-para una velocidad de enfriamiento dada y unas proporciones de cromo y germanio convenientemente escogidas, la proporción de zirconio puede variar dentro de los límites definidos más arriba (0,01 a 0,3% en peso).

5 Los mejores resultados de finura se obtienen para velocidades de enfriamiento comprendidas aproximadamente entre 6 y 30°C por minuto, lo que corresponde al vaciado de las piezas que tienen una inercia térmica media o relativamente ligera. Como las proporciones de cromo, germanio y circonio son  
10 poco críticas, se pueden definir proporciones que conduzcan a resultados satisfactorios en toda la extensión de esta gama de velocidades:

	cromo	0,15 ± 0,025 % en peso
	germanio	0,10 ± 0,05 % "
15	zirconio	0,075 ± 0,05 % "

Mientras en el caso del uranio sin aleación los granos obtenidos por enfriamiento normal son gruesos, muy irregulares y picados (figura 1ª), los granos obtenidos con las aleaciones según la invención (figuras 2ª, 3ª y 4ª) son finos, desorientados, de contornos poligonales poco más o menos regulares y libres de violencias o tensiones.  
20

La comparación entre la figura 1ª, por una parte, y las figuras 2ª y 3ª por otra, que se han hecho a la misma escala, permite apreciar la calidad y homogeneidad de la finura que  
25 se obtiene con las aleaciones de la invención. La figura 4ª, por su parte, pone en evidencia la regularidad de los granos, cuya diámetro medio se puede comprobar que es inferior a cien micrones, mientras que los granos obtenidos con el uranio sin aleación en condiciones de enfriamiento análogas (25°C  
30 por minuto por ejemplo) pueden llegar y pasar de varios milí-



metros. La comparación de las figuras 2ª y 3ª, en fin, muestra que cuando se respeta la relación entre las proporciones los elementos de adición y la velocidad de enfriamiento, se mantiene excelente el grado de finura de las aleaciones según la invención en una gama bastante amplia de velocidades de enfriamiento.

La elaboración de las aleaciones según la invención no presenta dificultad alguna, a condición de que, cuando se utilicen crisoles de grafito, se evite al máximo la contaminación del baño por el carbono; para ello es suficiente una brasca espesa y resistente. Las pérdidas de cromo y de germanio son despreciables ante la latitud admisible de variación de las proporciones. Las pérdidas de zirconio, debidas a la fijación de este metal por el carbono, son muy inferiores a lo que se podría prever estequiométricamente y además se compensan también ellas por la amplia variación de proporciones permisibles. Por otra parte y por esta misma razón, la adición de zirconio se hará teniendo en cuenta la proporción de carbono que lleva el uranio utilizado.

Las aleaciones de auto-temple según la invención permiten, pues obtener unos elementos combustibles de cualquier forma y tamaño por la vía tecnológica más sencilla y más económica. La pérdida de reactividad debida a los elementos de adición es ínfima y generalmente del todo admisible en los reactores de uranio natural. Por otra parte, si por cualquier incidente de fabricación o por cualquier otro motivo, el elemento combustible no presentase la estructura deseada, siempre sería posible volverle a calentar y someterle después a un tratamiento de enfriamiento continuo desde la fase gamma o desde la fase beta. En efecto se ha observado que los tiempos de permanencia en los dominios de existencia de estas fases no ejercen influjo

314799



alguno sobre la estructura final, si nó es la de homogeneizar las dimensiones de los granos. Otra ventaja de tales aleaciones es la posibilidad de obtener un grano fino en las soldaduras, mientras que con aleaciones clásicas templables beta, siempre es necesario un temple después de la soldadura para afinar el grano.

NOTA

En resumen; la presente solicitud recaerá sobre la siguientes reivindicaciones:

10 1ª.-Procedimiento para el empleo de nuevas aleaciones de uranio en combustibles nucleares, caracterizado porque las aleaciones se refieren a las cuaternarias uranio - cromo - germanio - zirconio que presentan una estructura de granos finos de ejes iguales por enfriamiento continuo directamente después del vaciado, como también en el curso de cualquier tratamiento térmico ulterior, y estas aleaciones se pueden utilizar para los elementos combustibles nucleares de cualquier forma y tamaño o para cualquier pieza de uranio en aleación que precise una estructura poli-cristalina de granos finos.

20 2ª.-Procedimiento para el empleo de nuevas aleaciones de uranio en combustibles nucleares, según la reivindicación anterior, caracterizado porque dichas aleaciones se caracterizan porque los tres elementos de adición, cromo, germanio, y zirconio, están presentes a la vez y porque su proporción global está comprendida entre 0,05 y 0,5%, pudiendo variar las proporciones parciales entre 0,02 y 0,3% para el cromo y el germanio y entre 0,01 y 0,3% para el zirconio; Las proporciones óptimas de los elementos de aportación se escogen, dentro de los límites anteriores, en función de la velocidad de enfriamiento a que se someterán las piezas después de vacia-

25

30

314799



das, y la proporción de cromo se escoge tanto mayor cuanto menor es la velocidad de enfriamiento, donde para una velocidad de enfriamiento dada y una proporción de cromo escogida convenientemente, el contenido de germanio puede variar dentro de unos límites tanto más amplios cuanto menor es la  
5 velocidad de enfriamiento, siendo las utilizables de 6 a 30°C por minuto.

3ª.-PROCEDIMIENTO PARA EL EMPLEO DE NUEVAS ALEACIONES DE URANIO EN COMBUSTIBLES NUCLEARES.

10 Según se describe en la presente memoria que consta de nueve hojas escritas a máquina y dibujos.

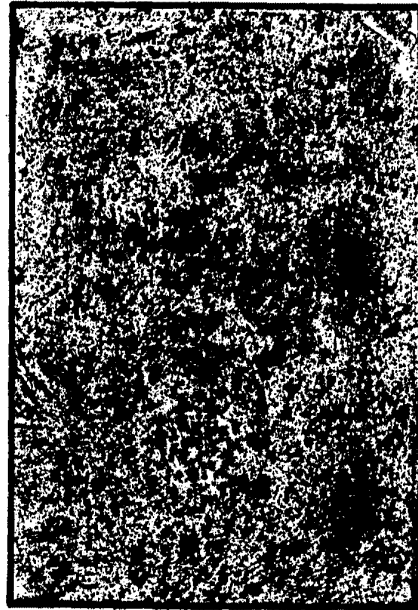
Madrid, 30 de junio de 1.965



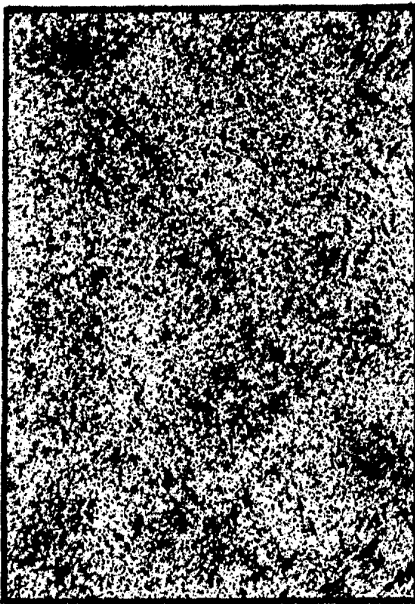
30



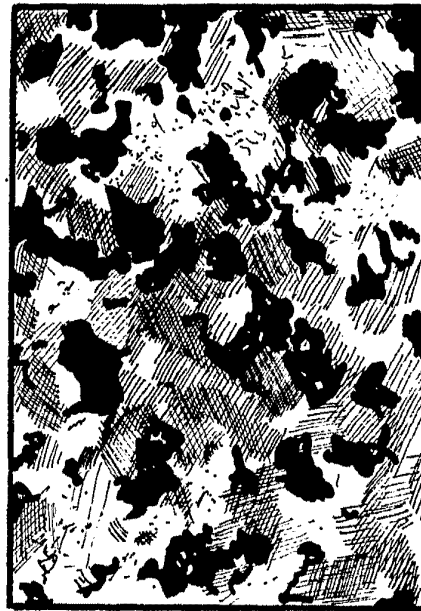
*fig.1*



*fig.2*



*fig.3*



*fig.4*

30 JUN 1965