

23 FFR 1957

P.- 28.578

B. 893-3



FFR 1957

309695

MEMORIA DESCRIPTIVA

para solicitar

P A T E N T E            D E            I N V E N C I O N

e n

E S P A Ñ A

por VEINTE años

a nombre de COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE, entidad francesa, establecida en 29, rue de la Fédération, Paris, Francia, por:

» UN PROCEDIMIENTO DE REDUCCION DE HEXAFLUORURO DE URANIO A TETRAFLUORURO «

---

El presente invento tiene como objeto un procedimiento de reducción del hexafluoruro de uranio a tetrafluoruro de uranio.

Se sabe que el tetrafluoruro de uranio, además de su  
5 utilidad como intermediario en la preparación del hexafluoruro de uranio, puede constituir también, después de la separación isotópica, una etapa en la transformación del hexafluoruro a uranio metálico o a cualquier otro compuesto uranífero. Puede



constituir igualmente un modo practico de almacenamiento de los compuestos uraniferos empobrecidos en  $U_{235}$ .

El tetrafluoruro de uranio se prepara habitualmente por reducci3n del hexafluoruro de uranio por hidrogeno. Esta reducci3n se efectua en un reactor constituido por ejemplo  
5 por un cilindro alargado en cuya parte superior se inyectan el hidrogeno y el hexafluoruro de uranio previamente caldea- dos. Si bien esta reducci3n del hexafluoruro de uranio por el hidrogeno conduce a la preparaci3n de un producto relativa-  
10 mente puro, presenta dificultades de puesta en pr3ctica. Unos depositos de compuestos del tipo  $U_x F_y$ , en los cuales  $x$  es igual a 4 e  $y$  tiene un valor comprendido entre 16 y 20, se forman rapidamente en el interior del reactor y m3s especial- mente en la proximidad de los inyectores. Estos depositos son  
15 debidos, bien a la degradaci3n termica del hexafluoruro, bien a la reducci3n incompleta del hexafluoruro o tambien a una reacci3n entre el hexafluoruro y el tetrafluoruro de uranio. Este fenomeno entraña el engrasamiento de las diversas partes del reactor, provoca taponamientos u obstrucciones y se opo-  
20 ne a la continuidad del funcionamiento del reactor. Por otra parte, en el circuito que sirve para la alimentaci3n del he- xafluoruro de uranio, que va desde el almacenamiento hasta el reactor, en cuyo circuito est3 integrado generalmente un precalentador, se puede comprobar la formaci3n de un deposi-  
25 to que puede ser, bien el  $UO_2F_2$  debido a las trazas de hume- dad, bien un compuesto de formula  $U_x F_y$  debido a una degra- daci3n t3rmica del hexafluoruro en el precalentador, estando ligada la importancia de esta descomposici3n con la naturale- za del metal que constituye las paredes del aparato. A la lar-  
30 ga, los depositos puede ser una causa de parada del reactor.

3 096 95



Para remediar estos inconvenientes se ha propuesto  
añadir fluor al hexafluoruro de uranio (ver en particular las  
patentes USA 2.907.629 y belga 842.500 solicitadas respecti-  
vamente el 7 de mayo de 1.953 y el 31 de enero de 1.958). Las  
5 cantidades de fluor a añadir para llegar a resultados satis-  
factorios son no obstante relativamente importantes.

El presente invento tiene como objeto un procedimiento  
de reducción del hexafluoruro de uranio a tetrafluoruro por  
un gas reductor tal como el hidrogeno o amoniaco craqueado,  
10 en condiciones muy buenas de rentabilidad, que permiten evi-  
tar la formación de depositos en el reactor o en su circuito  
de alimentación, asegurar una reducción cuantitativa del he-  
xafluoruro a tetrafluoruro y obtener un tetrafluoruro de al-  
ta pureza.

Este procedimiento está caracterizado esencialmente  
por que se añade al hexafluoruro de uranio una cantidad de  
trifluoruro de cloro en una proporción que va de 0,1 a 3 %,   
15 y de una manera preferente de 0,3 a 1 %.

Según el procedimiento conforme al invento, se preca-  
20 lienta separadamente hasta una temperatura comprendida entre  
150 y 400° C el gas reductor que puede ser hidrogeno o amonia-  
co craqueado y la mezcla hexafluoruro de uranio-trifluoruro  
de cloro con una concentración de 0,1 a 3 % de  $ClF_3$ .

En la puesta en marcha, los dos gases son inyectados  
25 en la parte superior del reactor con un cierto retraso uno con  
relación al otro, sin que sea primordial el orden de inyección.  
El tetrafluoruro de uranio formado es recogido por gravedad en  
la parte inferior del reactor, y el gas reductor que no ha  
reaccionado y el acido fluorhídrico formado escapan por un  
30 orificio de evacuación practicado en la parte inferior del

3 096 95



reactor.

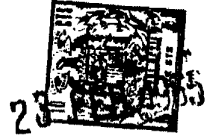
Se obtienen resultados satisfactorios cuando el exceso del gas reductor utilizado para la reacción varía entre 100 y 400 % de la cantidad estequiométrica. La temperatura de la zona de reacción es del orden de 500 a 600° C. Al aumentar la adición de trifluoruro de cloro fuertemente la exotermicidad de la reacción, es necesario refrigerar el reactor.

Según un modo de realización preferido, el gas reductor y la mezcla de hexafluoruro de uranio-trifluoruro de cloro precalentados separadamente a la temperatura de 250° C son introducidos en el arranque de la instalación, en el orden mezcla de hexafluoruro de uranio-trifluoruro de cloro y después gas reductor. La cantidad de hidrógeno o de amoníaco craqueado empleada representa tres veces la cantidad teórica, y la concentración de trifluoruro de cloro en el hexafluoruro de uranio oscila entre 0,1 y 1 %.

En cualquier caso se obtiene un producto, cuyo contenido de  $UF_4$  es muy próximo al 100 %, su proporción de uranio hexavalente es prácticamente nula, su contenido en cloro es inferior a 50 ppm, y su pureza nuclear conveniente. La densidad del producto obtenido es variable con el contenido en  $ClF_3$  de la mezcla hexafluoruro de uranio-trifluoruro de cloro.

En efecto, según una de las particularidades interesantes del procedimiento conforme al invento, la adición de trifluoruro de cloro en proporciones más o menos grandes, pero que permanecen dentro de los límites indicados, permite obtener un tetrafluoruro de uranio de densidad deseada. Es de esta manera como una adición de 0,1 % de trifluoruro de cloro

3 096 95



al hexafluoruro de uranio permite hacer pasar la densidad del producto no comprimido o apelmazado de 1 a 0,7 y como una adición de 0,2  $\mu$  conduce a una densidad de 0,5.

Se va a describir anora a titulo no limitativo, un  
5 ejemplo de realización del procedimiento conforme al invento, tal como se puede llevar a la práctica a escala industrial.

Ejemplo: 762 kg. de hexafluoruro de uranio han sido reducidos por hidrogeno a tetrafluoruro, con un caudal hora-  
rio de 23,8 kg/h. Han sido inyectados 4,57 kg. de trifluoruro  
10 de cloro en el circuito de alimentación de hexafluoruro, con un caudal medio de 143 g/hora. La mezcla gaseosa de alimentación tenia pues un contenido de 0,6 de trifluoruro de cloro. La proporción molar  $H_2/U F_6$  era proxima a 3.

Después de 32 horas de marcha continua del reactor,  
15 éste ha sido desmontado. Se ha podido comprobar la limpieza perfecta del reactor propiamente dicho, de los inyectores ( $UF_6-H_2$ ), así como de las tuberías que sirven para la alimentación del hexafluoruro de uranio.

El tetrafluoruro obtenido tenia un contenido de uranio  
20 entre 75,1 y 76  $\mu$ , o sea un producto que no contiene ningún compuesto intermedio. La densidad de apelmazamiento era de 2,1 o sea, aproximadamente el doble de la densidad aparente.

La reducción del hexafluoruro a tetrafluoruro es total.

25 La presente solicitud que corresponde a la presentada en Francia el 20 de febrero de 1.964 con el número PV 965.055 se acoge a los beneficios del artículo 31 del vigente estatuto sobre Propiedad Industrial.



## N O T A

5            Los puntos de invención propia y nueva que se presentan para que sean objeto de esta solicitud de Patente de Invención en España por VEINTE años son los siguientes:

1<sup>a</sup>.- Un procedimiento de reducción del hexafluoruro de uranio a tetrafluoruro por un gas reductor tal como hidrógeno o amoníaco craqueado, caracterizado por que se añade, 10 al hexafluoruro de uranio, trifluoruro de cloro en una proporción que varía entre 0,1 y 3 %, y de una manera preferente entre 0,3 y 1 %.

2<sup>a</sup>.- Un procedimiento de reducción del hexafluoruro de uranio según la reivindicación 1, caracterizado por que 15 se obtiene un tetrafluoruro de uranio cuya densidad está determinada por la proporción de trifluoruro de cloro en el hexafluoruro de uranio, variando esta proporción entre 0,1 y 3 %.

3<sup>a</sup>.- Un procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado por que la cantidad de gas reductor utilizado representa de 1 a 4 veces la cantidad estequiométrica. 20

4<sup>a</sup>.- Un procedimiento de reducción de hexafluoruro de uranio a tetrafluoruro.

25            Tal y como se ha descrito en la Memoria que antecede y para los fines que se han especificado.

3 096 95



Esta Memoria consta de siete hojas escritas a máquina  
por una sola cara.

Madrid,

23 FEB. 1965

P. A.

Alberto de Euzkadi  
Por Poderes

mt r/. JM 024