

310151



MAR. 1965

PATENTE DE INVENCION

Your Ref: Pats 24/6033/22
=====

Memoria Descriptiva

sobre

"Procedimiento de obtención de uranio metálico".

Solicitante: UNITED KINGDOM ATOMIC ENERGY AUTHORITY, entidad británica, residente en 11, Charles II Street, Londres, S. W. 1., Inglaterra.

Este invento se refiere a procedimientos para la obtención de uranio metálico.

Un procedimiento conocido para la preparación de uranio, implica la reducción de tetrafluoruro de uranio a uranio metálico, utilizando como -

5.



agente reductor el calcio o el magnesio metálicos. La Patente británica nº 780,974 describe este procedimiento.

- En este procedimiento, una mezcla de
5. los reactivos, a saber, tetrafluoruro de uranio en polvo y limaduras de magnesio, se compactan en forma de nódulos que se cargan en un recipiente de reacción revestido con una sustancia inerte adecuada, tal como grafito o fluoruro de magnesio sinterizado o aglomerado. Dicho recipiente y el contenido
10. se introducen en un horno y se insufla argón en el interior de aquel, a una presión de hasta 1,05 Kg/cm² por encima de la atmosférica, manteniéndose el caldeo hasta que se inicia la reacción. El uranio
15. fundido que se obtiene por la reacción, se recoge en una vasija de acumulación situada en la base del recipiente de reacción y se solidifica en forma de tocho de reducción.

- La Patente británica nº 933,436, describe una modificación del proceso a que se refiere
20. la patente nº 780,974, antes indicada, en la que los reactivos se calientan en el recipiente de reacción, a la temperatura de iniciación de la misma, por lo menos en dos etapas: la primera, a la temperatura de reacción, mientras se vacía el recipiente,
25. y la segunda, continuando el caldeo en una atmósfera de gas inerte, a la temperatura de iniciación.

- Para la fabricación de elementos de
30. combustible para reactor nuclear, partiendo del ura-



nio metálico así obtenido, el tocho de reducción, después de separar las escorias adheridas, se funde nuevamente y se moldea en forma de varillas.

5. La Patente británica nº 863,492, describe un método para añadir hierro y aluminio al uranio metálico y a continuación someter al temple beta y el revenido alfa, un elemento de combustible nuclear obtenido por fusión del metal citado para proporcionar una estructura de grano refinado, dotada de otras propiedades metalúrgicas satisfactorias.
10. En el método anterior, en el que el tocho de reacción se funde de nuevo para moldear en forma de varillas, la adición de hierro y aluminio se lleva a cabo, convenientemente, durante la etapa de nueva fusión.
15. Como variante del método anterior de producción de varillas moldeadas, fundiendo de nuevo el tocho de reducción, se propone obtener elementos de combustible nuclear en forma de varillas, por extrusión directa del tocho de reducción, que se extruye aproximadamente a las dimensiones precisas de la varilla. Con este método, no existe oportunidad para ajustar el hierro y el aluminio del uranio metálico, después de la reacción de reducción.
20. De acuerdo con este invento, en un método para la producción de uranio metálico por reducción de tetrafluoruro de uranio en un recipiente de reacción, utilizando un agente reductor metálico tal como calcio o magnesio, se incluye a los reactivos, en dicho recipiente, una cantidad de compuesto reducible de hierro, y una cantidad de compuesto re-
- 25.
- 30.



MAR. 1935

- ducible de aluminio, siendo las cantidades introducidas incluidas de compuestos reducibles de hierro y de aluminio, las necesarias para proporcionar el grado preciso de ajuste de hierro y aluminio en el uranio metálico obtenido por la reacción de reducción.
- 5.

- En un método distinto, de acuerdo con este invento, se incluyen una cantidad de hierro y una cantidad de aluminio, ambos de forma metálica, sin combinar, a los reactivos del recipiente de reacción; las cantidades de hierro y de aluminio incluidas, son las necesarias para proporcionar un grado requerido de ajuste de estos dos metales en el uranio obtenido, por la reacción de reducción.
- 10.

- A continuación figuran métodos por medio de los cuales pueden incluirse a los reactivos, en el recipiente de reacción, las adiciones de hierro y de aluminio.
- 15.

- (a) Las adiciones se realizan en forma de trifluoruros hidratados de hierro y de aluminio, o al estado de trifluoruros anhidros de los dos metales. La cantidad total de trifluoruros de hierro y de aluminio necesarios, se distribuye igualmente entre todos los nódulos de tetrafluoruro de uranio y agente reductor metálico de la carga, de tal modo que cada nódulo - contenga la proporción adecuada de cada fluoruro, para proporcionar los niveles precisos de hierro y de aluminio en el uranio obtenido por su reacción.
- 20.

- (b) La cantidad total de trifluoruros de hierro y de aluminio precisos en la carga, para proporcionar los niveles deseados de hierro y aluminio en el uranio
- 25.
- 30.



- metálico obtenido por la reacción, se mezcla, separadamente, con un exceso de magnesio metálico, en forma de partículas, por ejemplo 8% superior a la cantidad estequiométrica necesaria para la reducción
5. de dichos trifluoruros, y luego se nodula la mezcla. Los nódulos obtenidos se distribuyen uniformemente entre los nódulos normales de tetrafluoruro de uranio y de agente metálico reductor, durante la preparación de la carga en el recipiente de reacción.
10. (c) Las adiciones se realizan en forma de hierro y aluminio pulvulentos, que pueden distribuirse en toda la carga, como en (a) anterior, o usarse en forma de nódulos separados, como en (b) último.
- (d) Las adiciones se realizan en forma de panes o
15. alambres de hierro y aluminio incluyendo el peso adecuado de cada uno de los nódulos de tetrafluoruro de uranio/magnesio, durante la preparación de la carga en el recipiente de reacción.
- A continuación figuran Ejemplos de métodos de acuerdo con este invento.
20. Se preparó una carga de reducción, de tetrafluoruro de uranio/magnesio, mezclando entre sí 2,39 kg de polvo de tetrafluoruro de uranio y 0,402 kg de limaduras de magnesio, Las adiciones de hierro y de aluminio se introdujeron en la carga por
25. adición de 0,72 g de trifluoruro anhídrido de hierro (FeF_3) y 4,23 g de trifluoruro anhídrido de aluminio (AlF_3), a la mezcla de tetrafluoruro de uranio y limaduras de magnesio, y a continuación se mezcló íntimamente. La mezcla de tetrafluoruro de uranio/mag-
- 30.

310151



15 MAR 19

- nesio, con la cantidad ajustada de hierro, así obtenida, se compactó en un molde o matriz, en forma de nódulos cilíndricos de 120,65 mm de diámetro y 69,85 mm de altura, utilizando una presión de compactación de 12,6 a 15,75 kg/mm².
5. El peso de 0,402 kg de magnesio utilizado en la mezcla, incluye una cantidad adicional para la reducción de los trifluoruros de hierro y de aluminio.
10. A continuación se cargaron 91 nódulos en un recipiente de reacción de la clase descrita en la Patente británica nº 780,974, o sea, susceptible de resistir la presión desarrollada durante la reacción y revestido de una sustancia inerte apropiada, tal como grafito o fluoruro de magnesio aglomerado.
15. El recipiente de reacción, con su contenido, se cargó a continuación en un horno, y las condiciones de calefacción del mismo se regularon de tal modo que la iniciación de la reacción se verificó aproximadamente 110 minutos después de empezar el caldeo del recipiente de reacción. Esta se realizó de acuerdo con el método descrito en la Patente británica nº 933,436 en el que, durante la mayor parte del período desde el comienzo del caldeo (por ejemplo durante los primeros 77 minutos) se dispuso de tal modo que el recipiente de reacción se conservó sometido a evacuación continua, a una presión inferior a 1 cm de mercurio, y durante el resto del período de calefacción, hasta la iniciación de la reacción, (o sea, los últimos 33 minutos) se admitió argón en el recipiente
- 20.
- 25.
- 30.



- de reacción, a 4,536 - 6,804 kilos por encima de la presión atmosférica. La evacuación se interrumpió al llegarse a una temperatura de 400°C, o sea 250°C, o sea por debajo de la temperatura de la reacción
5. (650°C). El uranio metálico obtenido por este método se comprobó, por análisis, que contenía 240 partes por millón de hierro, y 1200 partes por millón de aluminio, proporciones comprendidas entre los límites de 200-500 partes por millón de hierro y 800-
10. 1200 partes por millón de aluminio, especificados en la Patente británica nº 863,492.

- En un método análogo al anterior, las adiciones de hierro y aluminio pueden hacerse a la mezcla de tetrafluoruro de uranio/magnesio, en forma de hierro y aluminio metálicos, pulverizados. En
15. este caso, el peso de limaduras de magnesio usados en la mezcla, es solamente el necesario para la reducción del tetrafluoruro de uranio.

- En otro método de acuerdo con este invento, se preparó una carga de reducción de tetrafluoruro de uranio/magnesio, mezclando entre sí 345,1 kg de polvo de tetrafluoruro de uranio y 57,62 kg de limaduras de magnesio. Como en los ejemplos anteriores, la mezcla se prensó en una matriz para formar nódulos de 120,65 mm de diámetro y 69,85 mm de altura.
- 20.
- 25.

- Se mezclaron 146 g de trifluoruro de hierro y 938 g de trifluoruro de aluminio, con 322 g de limaduras de magnesio (8% en exceso de la cantidad estequiométrica precisa para la reducción de los fluoruros de hierro y de aluminio). La mezcla se compri-
- 30.

310151

- 8 -



- mió para formar cuatro nódulos de diámetro análogo al de los nódulos de tetrafluoruro de uranio/magnesio. Los nódulos de tetrafluoruro de uranio/magnesio, se colocaron en el recipiente de reacción con los que contenían fluoruro de hierro/fluoruro de aluminio, uniformemente distribuidos en el montón de nódulos de tetrafluoruro de uranio/magnesio. Como en los ejemplos anteriores, la reacción de reducción se realizó de acuerdo con el método de la Patente británica nº 933,346, o sea el recipiente de reacción se calentó en un horno y durante la mayor parte del período de caldeo (o sea durante los 77 minutos primeros) el caldeo se realizó con el recipiente de reducción en evacuación continua, a una presión de 1 cm de mercurio. Para el resto del período de caldeo, hasta la iniciación de la reacción, (o sea durante 33 minutos aproximadamente), se admitió argón en el recipiente de reacción, a una presión de 4,536 a 6,804 kilos por encima de la atmosférica. Al llegar a una temperatura de 400°C aproximadamente, se interrumpió la evacuación, aproximadamente 250°C por debajo de la temperatura de iniciación de la reacción. El uranio metálico producido, contenía alrededor de 320 partes por millón de hierro y 850 partes por millón de aluminio, aproximadamente.
- 5.
- 10.
- 15.
- 20.
- 25.

Este último método puede modificarse de dos modos.

- En primer lugar, como variante de la inclusión de nódulos de una mezcla de trifluoruros de hierro y de aluminio con magnesio en la carga de
- 30.



reacción, pueden incluirse nódulos de un montón de aluminio y hierro metálicos, pulverizados, en el montón de nódulos de tetrafluoruro de uranio/magnesio del recipiente.

5. Como segunda variante a la inclusión de nódulos de una mezcla de trifluoruros de hierro y aluminio con magnesio, en la carga de reducción, pueden añadirse a ésta alambres o panes de hierro y de aluminio. Para una carga de reducción tal como antes se ha descrito, constituida por nódulos de una mezcla que contenga 217,5 kg de tetrafluoruro de uranio y 39,4 kg de limaduras de magnesio, se incluyeron en el monton de nódulos de tetrafluoruro de uranio/magnesio, del recipiente de reacción, un peso total de 66 g de alambre de hierro, y un peso total de 130 g de pan de aluminio. Los panes de hierro y aluminio, se distribuyeron en todo el montón de nódulos de tetrafluoruro de uranio/magnesio colocándose en dicho montón sobre la superficie superior de nódulos separados. El uranio metálico obtenido por este proceso, se comprobó que contenía, aproximadamente, 350 partes por millón de hierro y alrededor de 895 partes por millón de aluminio.

15. Al utilizar fluoruros en los métodos antes descrito, pueden emplearse las sales hidratadas igual que las anhidras, pero se prefieren éstas a las primeras, dado que el empleo de los fluoruros hidratados da origen a reacciones violentas.

N O T A

20. Descrita suficientemente la naturaleza

30.



- del invento, así como la manera de realizarió en la práctica debe hacerse constar que las disposiciones anteriormente indicadas son susceptibles de modificaciones de detalle en cuanto no alteren su principio fundamental. También se hace constar que el invento corresponde a una solicitud de patente presentada en Inglaterra, con fecha 6 de marzo de 1.964, bajo el número 9737/64, acogiéndose por tanto a los beneficios que conceden los Convenios Internacionales en vigor, siendo lo que constituye la esencia del referido invento y por lo que se solicita Patente de Invención por 20 años en España sobre: "PROCEDIMIENTO DE OBTENCION DE URANIO METALICO"; caracterizándose por lo siguiente:
5. 15. 1^a.- Procedimiento de obtención de uranio, metálico, por reducción, en un recipiente de reacción de tetrafluoruro de uranio, utilizando un agente reductor metálico, tal como calcio o magnesio, incluyendo una cantidad de compuesto reducible de hierro y una cantidad de un compuesto reducible de aluminio en los reactivos, en el recipiente de reacción; las cantidades de compuestos reducibles de hierro y de aluminio incluidas, son las necesarias para proporcionar un grado preciso de ajuste del hierro y el aluminio en el uranio metálico obtenido por la reacción de reducción.
10. 20. 2^a.- Procedimiento de obtención de uranio metálico, según reivindicación 1, en el que el compuesto reducible de hierro es trifluoruro de hierro, y el compuesto reducible de aluminio es trifluoruro
25. 30.



hidratado de aluminio.

5. 3^a.- Procedimiento de obtención de uranio metálico, según reivindicación 1, en el que el compuesto reducible de hierro es trifluoruro anhidro de hierro, y el compuesto reducible de aluminio es trifluoruro anhidro de aluminio.

10. 4^a.- Procedimiento de obtención de uranio metálico según reivindicación 1, en el que los reactivos, tetrafluoruros de uranio y un agente reductor metálico en forma de partículas, se mezclan entre si y la mezcla se comprime para formar nódulos que se introducen como carga en el recipiente de reacción; el compuesto reducible de hierro, que se incluye en los reactivos, es trifluoruro hidratado de hierro; el compuesto reducible de aluminio, que se incluye con los reactivos, es trifluoruro hidratado de aluminio; la cantidad total de trifluoruro hidratado de hierro y de trifluoruro hidratado de aluminio, se distribuye igualmente entre todos los nódulos de trifluoruro de uranio y agente reductor metálico de la carga, de tal modo que cada nódulo de ésta contenga la proporción adecuada de trifluoruroshidratados de hierro y de aluminio, para suministrar las proporciones necesarias de hierro y aluminio en el uranio obtenido por su reacción.

30. 5^a.- Procedimiento de obtención de uranio metálico, según reivindicación 1, en el que los reactivos tetrafluoruros de uranio y un agente reductor metálico en forma de partículas, se mezclan entre si y la mezcla se comprime para formar nódulos que se introducen, como carga, en el recipiente de



- reacción; el compuesto reducible de hierro incluido con los reactivos, es trifluoruro anhídrico de hierro; el compuesto reducible de aluminio, incluido con los reactivos, es trifluoruro anhídrico de aluminio; la cantidad total de trifluoruro anhídrico de hierro y trifluoruro anhídrico de aluminio incluida, se divide igualmente entre todos los nódulos de tetrafluoruro de uranio y agente reductor metálico de la carga, de tal modo que cada nódulo de la carga contenga la proporción adecuada de trifluoruro anhídrico de hierro y de aluminio, para proporcionar el hierro y el aluminio en las proporciones precisas, en el uranio obtenido por su reacción.
- 5.
- 10.

- 6ª.- Procedimiento de obtención de uranio metálico, según reivindicación 1, en el que los reactivos, tetrafluoruro de uranio y agente metálico reductor, en forma de partículas, se mezclan entre sí y la mezcla se comprime para formar nódulos que se introducen, como carga, en el recipiente de reducción;
- 15.
- 20.
- 25.
- 30.



fluoruros hidratados de hierro y de aluminio, y la mezcla se comprime para formar nódulos; los nódulos así obtenidos se distribuyen uniformemente entre los nódulos normales de tetrafluoruro de uranio y agente reductor metálico, durante la constitución de la carga de nódulos en el recipiente de reacción.

5. 7ª.- Procedimiento de obtención de uranio metálico, según reivindicaciónl, en el que los reactivos, tetrafluoruros de uranio y un agente reductor metálico en forma de partículas, se mezclan entre sí y la mezcla se comprime para formar nódulos que se depositan como carga en un recipiente de reacción; los compuestos reducibles de hierro y de aluminio, incluidos con los reactivos, son respectivamente trifluoruro de hierro y trifluoruro de aluminio, anhidros; la cantidad total de estos cuerpos, necesaria en la carga para proporcionar los niveles deseados de hierro y de aluminio en el uranio metálico obtenido por la reacción, se mezcla separadamente con una cantidad de agente reductor metálico en forma de partículas, superior a la cantidad estequiométrica precisa para la reducción de los trifluoruros anhidros de hierro y de aluminio, y la mezcla se comprime para formar nódulos; los nódulos así producidos se distribuyen uniformemente entre los nódulos normales de tetrafluoruro de uranio y de agente reductor metálico, durante la constitución de la carga de nódulos en el recipiente de reacción.

10. 8ª.- Procedimiento de obtención de uranio metálico, por la reducción, en un recipiente de

15. 20. 25. 30.



- reacción, de tetrafluoruro de uranio utilizando un agente reductor metálico tal como calcio o magnesio, una cantidad de hierro y una cantidad de aluminio, ambos en forma metálica sin combinar, que se incluyen con los reactivos en el recipiente de reacción;
5. las cantidades de hierro y de aluminio incluidas son las necesarias para proporcionar un grado requerido de ajuste del hierro y del aluminio en el uranio metálico obtenido por la reacción de reducción.
10. 9ª.- Procedimiento de obtención de uranio metálico, según reivindicación 8, en el que los reactivos, tetrafluoruro de uranio y agente reductor metálico en forma de partículas, se mezclan entre sí con una cantidad de polvo de hierro y polvo de aluminio en las proporciones precisas para proporcionar un nivel deseado de ajuste de hierro y de aluminio en el uranio metálico obtenido por la reacción de reducción; la mezcla de tetrafluoruro de uranio, agente reductor metálico y polvos de hierro y de aluminio,
15. se comprime para formar nódulos que se introducen como carga en el recipiente de reacción.
20. 10ª.- Procedimiento de obtención de uranio, metálico, según reivindicación 8, en el que los reactivos tetrafluoruros de uranio y agente reductor metálico, en forma de partículas, se mezclan entre sí y la mezcla se comprime para formar nódulos que se introducen como carga con el recipiente de reacción; una mezcla de los polvos de hierro y aluminio metálicos, en cantidad precisa para proporcionar un nivel de
25. seado de ajuste del hierro y el aluminio en el uranio
- 30.



5. metálico obtenido por la reacción de reducción, se prensa para formar nódulos. Los nódulos de los polos mezclados de hierro y aluminio, se distribuyen uniformemente entre los nódulos de tetrafluoruro de uranio y agente reductor metálico, durante la constitución de la carga de nódulos en el recipiente de reacción.

10. 11ª.- Procedimiento de obtención de uranio metálico, según reivindicación 8, en el que los reactivos, tetrafluoruro de uranio y un agente reductor metálico en forma de partículas, se mezclan entre si y la mezcla se comprime para formar nódulos que se introducen como carga en el recipiente de reacción; en la carga de nódulos de tetrafluoruro de uranio y agente metálico reductor, cuando se introducen los nódulos en forma de carga en el recipiente de reacción, se distribuyen uniformemente panes o alambres de hierro y de aluminio, en pesos totales adecuados para proporcionar un nivel deseado de ajuste de hierro y aluminio en el uranio metálico obtenido por la reacción de reducción.

15.

20.

12ª.- Procedimiento de obtención de uranio metálico, tal y como queda sustancialmente descrito en la presente Memoria.

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

Madrid,

5 MAR. 1965

UNITED KINGDOM ATOMIC
ENERGY AUTHORITY,

J. GÓMEZ ATEBO X MOEST