

336817



14 FEB 1951
PATENTE DE INVENCION

=====
AB/CV S.12
=====

Memoria Descriptiva

sobre:

"PROCEDIMIENTO Y APARATO PARA LA SEPARACION
DE ISOTOPOS"

Solicitante: SOCIETE NATIONALE DES PETROLES D'AQUITAINE,
entidad francesa, residente en: 16, Cours
Albert 1^{er}, PARIS 8^{ème}, Francia.

Sabido es que los isótopos son elementos
químicos muy próximos que no pueden generalmente
diferenciarse más que por procedimientos físicos que
de ordinario recurren a la ligera diferencia de masa
que presentan.

5.

- 2 -
336817

14 FEB.



Se designan bajo el nombre de especies isotópicas los compuestos químicos de estructura idéntica, pero que difieren solamente por el hecho de que al menos uno de sus elementos se presenta en forma de isótopos de diferentes masas.

5.

Se conocen ya diferentes procedimientos para obtener en estado puro o al menos fuertemente enriquecido una especie isotópica determinada partiendo de una mezcla isotópica, tal como por ejemplo, la que se encuentra en estado natural.

10.

Un primer procedimiento conocido recurre a la difusión de especies isotópicas en estado gaseoso a través de una pared porosa, procurándose el enriquecimiento gracias a la diferencia que existe entre la velocidad de difusión de las dos especies isotópicas.

15.

Se conoce igualmente un procedimiento, según el cual se procede a la centrifugación a gran velocidad de una mezcla isotópica para obtener, en razón de la acción de la fuerza centrífuga, un enriquecimiento de una de las dos especies.

20.

Se ha propuesto igualmente utilizar técnicas que se derivan de la cromatografía en fase gaseosa para separar los isótopos del hidrógeno con un fin de análisis.

25.

Sin embargo, en estos últimos procedimientos, se ha propuesto generalmente partir de hidrógeno previamente enriquecido en uno de sus isótopos.

Conviene además hacer observar que estas técnicas cromatográficas solo han sido propuestas para la separación de los isótopos del hidrógeno que

30.



336817

son de masas atómicas notablemente diferentes y cuya separación es por tal motivo relativamente fácil.

Por el contrario, el presente invento se refiere a un procedimiento de separación y de enriquecimiento de especies isotópicas constituídas a

5. partir de elementos más pesados cuyas diferencias entre masas atómicas respectivas son relativamente escasas.

El presente invento tiene por objeto un nuevo procedimiento para el enriquecimiento o la separación de al menos una especie isotópica, caracterizado por el hecho de que comprende al menos una fase según la cual se inyecta periódicamente la mezcla isotópica en forma gaseosa por cantidades relativamente

10. pequeñas en un gas vector que circula de manera continua, se hace circular el gas vector así
15. periódicamente cargado de mezcla isotópica por un recinto que contiene un medio poroso absorbente, inerte con relación al gas vector, se detecta la aparición de la mezcla isotópica o de uno de sus componentes a la salida
20. del recinto y se utiliza esta detección para regular la recogida de las diferentes fracciones sucesivas de la mezcla isotópica en distintos colectores.

Según una forma de realización preferida del

25. invento, se reciclan en un mismo recinto las diferentes fracciones recogidas como se ha indicado anteriormente.

En una variante preferida se procede, para cada una de las fracciones recogidas que contienen

30. especies isotópicas, a la separación de éstas y del gas



336817

vector antes de introducir solamente las especies isotópicas en un nuevo recinto absorbente o antes de reciclarlas en el mismo recinto.

5. Según una forma de aplicación preferida del invento, se utiliza, para detectar la mezcla isotópica que sale del recinto de separación, un espectrómetro de masas que permite determinar de una manera continua el factor de enriquecimiento instantáneo de la mezcla en una de las especies isotópicas a fin de poder dirigir las fracciones recogidas hacia diferentes colectores en función del citado enriquecimiento.

10. Se denomina factor de enriquecimiento instantáneo la diferencia entre las integrales normalizadas de los números de individuos de especies isotópicas de dos masas diferentes que salen en función del tiempo, en un momento determinado.

15. Se recuerda que se designa bajo el término de integral normalizada la relación de la integral de una función tomada en el intervalo de tiempo $-\infty$ a t a la integral de la misma función tomada en el tiempo $-\infty$ a $+\infty$.

20. En otros términos, la integral normalizada en un instante t corresponde a la relación del número de individuos de una especie isotópica ya salidos al número total de los individuos de esta misma especie isotópica antes de salir del recinto.

25. Según una forma de realización preferida del procedimiento, según el invento, en la cual se utiliza el factor de enriquecimiento instantáneo para regular la separación previa de diferentes fracciones de mezcla
- 30.

336817



isotópica que surge del recinto, puede obtenerse una gran precisión en lo que concierne a los instantes que determinan las recogidas de las diferentes fracciones, lo cual resulta indispensable para conseguir repetidamente un grado apreciable de enriquecimiento.

5.

Según esta forma de aplicación preferida del invento, puede procederse a la separación de especies isotópicas de elementos pesados cuyas masas no difieran relativamente más que en algunos porcentajes como máximo.

10.

El presente invento tiene igualmente por objeto, el producto industrial nuevo que constituye una instalación para la aplicación del procedimiento definido anteriormente, caracterizándose esta instalación esencialmente por el hecho de que comprende en combinación: un recinto que contiene un medio poroso absorbente, inerte con relación al gas vector a separar, un medio para hacer circular un gas vector por el interior de dicho recinto, un medio para inyectar periódicamente en el gas vector cantidades determinadas de mezcla isotópica a separar, un detector que permite denunciar la llegada de la mezcla isotópica o de una especie isotópica a la salida del recinto y que regula la separación previa de diferentes fracciones de la referida mezcla isotópica.

15.

20.

25.

De acuerdo con el invento, el recinto que contiene el producto absorbente puede estar con preferencia constituido por una columna tubular que tenga una longitud importante con relación a su diámetro.

30.

El cuerpo poroso absorbente puede estar cons



336817

tituido, por ejemplo, por un tamiz molecular cuyos poros internos tengan dimensiones comprendidas, por ejemplo, entre 1 y 300 Å o por carbón activo o por un gel de sílice activado.

5. El gas vector puede estar constituido, por ejemplo, por un gas noble como el helio, el argón o el neón.

10. El desplazamiento del gas vector puede realizarse mediante cualquier dispositivo conocido, tal como una bomba o una fuente de gas vector a presión.

15. La introducción periódica de mezcla isotópica gaseosa en el gas vector puede obtenerse fácilmente con ayuda, por ejemplo, de una espita de varios conductos colocada en la canalización de traída de gas vector al recinto, permitiendo esta espita interrumpir periódicamente, durante un breve instante, la circulación del gas vector, para introducir en este último una cantidad determinada de mezcla isotópica a separar.

20. En una forma de realización preferida del invento, el detector está constituido por un espectrómetro de masas de varios colectores de iones que engendra una señal eléctrica proporcional a la concentración instantánea de cada una de las especies isotópicas.

25. Cada corriente así producida por el espectrómetro de masas puede estar integrada por medios comunes, pudiendo normalizarse cada una de estas integrales procediendo a su división por el valor fijo constituido por la integral completa correspondiente a la misma especie isotópica, integral que ha sido
- 30.

336817



medida en el curso de un paso anterior de una muestra idéntica.

5. Obsérvese que, gracias a esta forma de realización preferida del invento, es posible obtener de modo permanente una intensidad eléctrica proporcional al factor de enriquecimiento instantáneo de una especie isotópica con relación a otra especie.

10. En una variante de esta forma de realización, se utiliza un espectrómetro de masas con un solo colector de iones que no proporciona permanentemente corriente eléctrica proporcional a la concentración instantánea de cada una de las especies isotópicas sino que, gracias a una conmutación automática apropiada, permite facilitar sucesivamente, y a intervalos de tiempo aproximados, indicaciones eléctricas proporcionales a la concentración instantánea de las diferentes especies isotópicas.

15. Las extracciones de las diferentes fracciones de la mezcla puede efectuarse por medios corrientes accionados por las indicaciones eléctricas del espectrómetro de masas tratadas por medios analógicos o transformadas en cálculos numéricos para ser tratadas por métodos digitales.

20. Con el fin de hacer comprender mejor el invento, se describen a continuación, a título de ilustración y sin ningún carácter limitativo, varias formas de realización representadas en el plano, en el cual:

25. La figura 1 representa la producción de dos especies isotópicas registradas a la salida de una

30.

336817



columna de separación en función del tiempo.

La figura 2 representa esquemáticamente el conjunto de una fase de separación, según el dispositivo conforme al invento.

5. La figura 3 representa los elementos de un detector utilizado de acuerdo con el invento, juntamente con un espectrómetro de masas con dos colectores de iones.

10. La figura 4 representa los elementos de un detector utilizado conjuntamente con un espectrómetro de masas con un solo colector de iones.

15. En la figura 1 puede verse una curva 1 en trazo continuo que representa la variación del volumen de una especie isotópica A medida a la salida de la columna en función del tiempo, representando la curva 2 en trazos discontinuos las variaciones del volumen de la especie isotópica B en función del tiempo a la salida de la misma columna. Estas dos curvas, que presentan cada una un máximo, se denominan a menudo "picos".

20.

En el caso representado en la figura 1 se observa que los dos picos 1 y 2 están poco separados y que se recoge siempre una mezcla de dos especies isotópicas A y B.

25. Es importante, por tanto, para efectuar un enriquecimiento, tomar una fracción de la mezcla que sale de la columna en la cual la proporción relativa de uno de los isótopos sea más elevada que la proporción del mismo isótopo en la mezcla de partida.

30. En la figura 2 puede verse la canalización

336817

14 FEB 1954



21 de admisión del gas vector y la canalización 22 de admisión de la mezcla isotópica a enriquecer; el dispositivo 23 unido a las canalizaciones 21 y 22, que permite la introducción periódica de una pequeña cantidad de mezcla isotópica en el gas vector, está acoplado a la columna de separación 24 llena de un medio poroso absorbente, tal como un tamiz molecular.

5. La salida de la columna de separación 24 va unida a un distribuidor 25 dependiente y susceptible de dirigir la corriente de gas que sale de la columna, bien sea por una canalización de reciclado de gas vector 26, o bien por colectores de fracción 27.

10. La salida de la columna está igualmente unida a un detector 28 capaz de detectar la aparición de la mezcla isotópica enriquecida, estando el propio detector conectado eléctricamente a un órgano de accionamiento provisto de un reloj susceptible de regular la posición del distribuidor 25.

15. Se introduce en la corriente de gas vector que entra en la columna una pequeña muestra de mezcla isotópica por medio del órgano 23, las diferentes especies isotópicas presentes en la mezcla no son arrastradas por el gas vector a través de la columna 24 exactamente a la misma velocidad y llegan a la salida de la columna con un ligero desajuste (ver figura 1).

20. El detector 28 que es, por ejemplo, un espectrómetro de masas cuyo funcionamiento será explicado a continuación permite detectar la aparición de las especies isotópicas a la salida de la columna y actuar sobre el sistema de accionamiento 29.

25.

30.

- 10 -
336817



- Una primera prueba permite al espectrómetro de masas 28 indicar al órgano de accionamiento 29 los momentos entre los cuales es preciso recoger la fracción que sale de la columna para que ésta sea la más enriquecida en uno de los isótopos que se desea separar.
- 5.

En el caso de mezcla de dos isótopos, podrá separarse la mezcla que sale de la columna en tres fracciones, una de ellas denominada de cabeza, una segunda de núcleo y una tercera de cola.

10. En el caso en que la fracción de núcleo sea la más enriquecida de la especie isotópica que se desea separar, la prueba preliminar permitirá conocer entre qué momentos es conveniente tomar esta fracción de núcleo y el órgano de accionamiento 29 podrá estar regulado en este caso para accionar automáticamente el distribuidor con el fin de recoger las tres fracciones en el instante apropiado en los tres recipientes 27.
- 15.

- Si se envía entonces una sucesión de muestras idénticas a la que ha servido en el curso de la regulación en la columna 24, el detector 28 y el órgano de accionamiento 29 repiten de una manera idéntica las operaciones anteriormente descritas y se recoge en uno de los recipientes 27 una fracción enriquecida en uno de los isótopos.
- 20.

- Puede verse en la figura 3 dos colectores de iones 31 y 32 de un espectrómetro de masas. El colector 31 está unido por intermedio de un amplificador 33 y de un potenciómetro 34 y de un integrador 35 a un borne de un registrador 36, estando unido el colector 32 por intermedio de un amplificador 37 y de un integrador 38
- 25.
- 30.



336217

a un segundo borno del registrador 36.

El registrador 36 registra la diferencia de las corrientes que le son dadas por los integradores 35 y 38.

5. Las corrientes producidas por los colectores de iones 31 y 32 son proporcionales al volumen de cada uno de los dos isótopos de una mezcla isotópica binaria que se desee enriquecer. Después de ser amplificadas por los amplificadores 33 y 37, estas corrientes son integradas por los dispositivos integradores 35 y 38, habiendo sido dividida, sin embargo, la corriente procedente del colector 31 por un dispositivo potenciométrico 34 en un número determinado previamente y que corresponde a la relación isotópica de la especie isotópica detectada por el colector 31. Se toma esta precaución para obtener directamente a la salida de los integradores 35 y 38 corrientes integradas normalizadas cuyas variaciones en función del tiempo están representadas por las curvas diseñadas al lado de los integradores 35 y 38.
- 10.
- 15.
20. El registrador 36, que registra la diferencia de las corrientes integradas proporcionadas por los órganos 35 y 38, permite conocer la variación del factor de enriquecimiento instantáneo en función del tiempo y la curva representada a la derecha del órgano 36 muestra que este factor pasa por un máximo que es el factor de enriquecimiento de la separación.
25. Es interesante no recoger la fracción que sale de la columna más que cerca del instante en que este factor de enriquecimiento pase por su máximo.
- 30.



Esta elección se efectúa en el curso de la regulación preliminar que se explica anteriormente.

5. En la figura 4 puede verse un colector de iones único de un espectrómetro de masas 41 unido por un amplificador 42 a un dispositivo potenciométrico 43.

10. El dispositivo 43 va unido a un convertidor analógico digital 44 unido a dos totalizadores independientes 45 y 46. El totalizador 45 está unido por intermedio de un convertidor digital analógico 47 a un registrador 48, en tanto que el totalizador 46 va unido por intermedio de un convertidor digital analógico 49 al registrador 48.

15. En esta forma de realización se procede, con ayuda del colector único 41, a medidas cíclicas del volumen de cada una de las dos especies isotópicas contenidas en la mezcla que sale de la columna por variación cíclica del campo magnético analizador del espectrómetro de masas.

20. Las corrientes proporcionadas por el colector 41 son amplificadas por el amplificador 42 y divididas de forma conveniente en el dispositivo potenciométrico 43 con el fin de normalizarlas antes de enviarlas al convertidor analógico-digital 44 que
25. transforma estas corrientes en un número de impulsos proporcional a las citadas corrientes. Estos impulsos se envían alternativamente al totalizador 45 y el totalizador 46 a cada ciclo de medida del colector 41.

30. Se observa en la curva representada en la parte superior a la derecha de la figura los momentos

336817



5. en que se efectúan las medidas correspondientes a la especie isotópica A, representadas en trazos verticales continuos, en tanto que los momentos en que se efectúan las medidas correspondientes a la especie isotópica B están indicados en trazos verticales discontinuos.

10. Los convertidores digitales analógicos 47 y 49 transforman de nuevo el número de los impulsos contenidos en los totalizadores 45 y 46 en corriente cuyas variaciones en escalera están representadas al lado de los órganos 47 y 49. Las variaciones por trazo son debidas a la discontinuidad introducida en las medidas con este procedimiento. Basta multiplicar el número de medida, lo cual puede realizarse fácilmente para que estas curvas en escalera puedan ser fácilmente asimilables a curvas reales.

15. El registrador 48 permite registrar la diferencia de las corrientes proporcionadas por los convertidores 47 y 49, es decir, medir el factor de enriquecimiento en función del tiempo y determinar el momento en que este factor de enriquecimiento es máximo.

20. Se realizó un enriquecimiento isotópico de la mezcla de óxido de carbono natural $C_{12}O$ $C_{13}O$ de masas 28 y 29, operando en las condiciones siguientes:

25. Un tamiz molecular de 5 \AA reducido a polvo cuyos granos tenían dimensiones comprendidas entre 0,42 mm y 0,50 mm, deshidratado durante 15 horas a $200^{\circ}C$ bajo corriente de helio, fue introducido en una columna de 6 metros de largo y 4 mm de diámetro y

30.

336817



5. mantenido a una temperatura de 248°K. El gas vector era helio que circulaba con un volumen de 1,1 cm³ por segundo. Cada minuto se introdujeron 2 cm³ de mezcla isotópica. La columna permitió obtener en un solo paso de la mezcla isotópica un enriquecimiento máximo de un 13%.

10. Repitiendo la operación gran número de veces sobre columnas montadas en serie, o sea reciclando la mezcla enriquecida en la primera columna, se puede bien sea aumentar considerablemente el factor de enriquecimiento, o incluso separar por completo los isótopos.

15. La Tabla siguiente da a conocer los resultados obtenidos por paso único por una columna de una mezcla isotópica de óxido de carbono natural en una columna idéntica a la descrita anteriormente en diferentes condiciones.

	Naturaleza de la fase estacionaria	Granulometría (mm)	Temperatura columna (°K)	Factor de enriquecimiento	Tiempo de retención (seg)
20.	Tamiz molecular (5 Å)	0,22-0,31	77	11,5	3 000
	Tamiz molecular (5 Å)	0,22-0,31	63	22	14 700
25.	Carbón activo	0,22-0,31	77	5,0	5 520
	Silicagel	0,22-0,31	77	2,3	1 560

336017
-NOTA-



- Descrita suficientemente la naturaleza del invento, así como la manera de realizarlo 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 Francia, con fecha 15 de febrero de 1966, bajo el número PV.49.575, acogiéndose por lo 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: "PROCEDIMIENTO Y APARATO PARA LA SEPARACION DE ISOTOPOS"; caracterizándose por lo siguiente:
5. 1ª.- Procedimiento para la separación de isótopos, caracterizado porque comprende al menos una fase, según la cual, se añade periódicamente la mezcla isotópica en forma gaseosa, en cantidades relativamente pequeñas a un gas vector que circula de manera continua, se hace circular así periódicamente el gas vector cargado de mezcla isotópica por un recinto que contiene un medio poroso absorbente inerte con respecto al gas vector, se detecta la aparición de la mezcla isotópica o de uno de sus componentes a la salida del recinto y se utiliza esta detección para regular la recogida de diferentes fracciones sucesivas de la mezcla isotópica en diferentes colectores.
10. 2ª.- Procedimiento, según la reivindicación
- 15.
- 20.
- 25.
- 30.

336817



5. 1ª, caracterizado porque se repite cierto número de veces la citada fase de absorción, utilizando diferentes recintos que contienen cuerpos absorbentes o reciclando en el mismo recinto las fracciones de mezcla isotópica enriquecida.

10. 3ª.- Procedimiento, según la reivindicación 2ª, caracterizado porque para cada una de las fracciones que contienen especies isotópicas que han sido recogidas, se procede a la separación de las especies isotópicas y del gas vector antes de introducir solo las especies isotópicas en un nuevo recinto absorbente o antes de reciclarlas en el mismo recinto.

15. 4ª.- Procedimiento, según cualquiera de las reivindicaciones anteriores, caracterizado porque para regular la recogida de las diferentes fracciones de la mezcla isotópica que salen del recinto absorbente se utiliza una intensidad proporcional al factor de enriquecimiento instantáneo de la mezcla en función del tiempo, intensidad obtenida a partir de un espectrómetro de masas.

20. 5ª.- Procedimiento, según la reivindicación 4ª, caracterizado porque se recoge por separado la fracción de mezcla isotópica que sale cerca del momento en que el factor de enriquecimiento en una de las especies isotópicas es máximo.

25. 6ª.- Aparato para la aplicación del procedimiento, según cualquiera de las reivindicaciones anteriores, caracterizado porque comprende en combinación: un recinto que contiene un medio poroso absorbente inerte con respecto al gas vector, un medio para

- 17 -
336817



- hacer circular un gas vector por el interior de dicho recinto, un medio para inyectar periódicamente en el gas vector cantidades determinadas de mezcla isotópica a separar, un detector que permite denunciar la
5. llegada de la mezcla isotópica a la salida del recinto y que regula la extracción de diferentes fracciones de dicha mezcla isotópica.
- 7^a.- Aparato, según la reivindicación 6^a, caracterizado porque el recinto que contiene el producto absorbente es una columna tubular que posee una longitud importante con relación a su diámetro.
- 10.
- 8^a.- Aparato, según una al menos de las reivindicaciones 6^a y 7^a, caracterizado porque el cuerpo poroso absorbente está constituido por un compuesto que pertenece al grupo que constituye los tamices moleculares cuyos poros internos tienen dimensiones comprendidas entre 1 y 300 Å, el carbón activo y el gel de sílice de capacidad absorbente.
- 15.
- 9^a.- Aparato, según una al menos de las reivindicaciones 6^a a 8^a caracterizado porque el gas vector se toma del grupo constituido por los gases nobles.
- 20.
- 10^a.- Aparato, según una al menos de las reivindicaciones 6^a a 9^a, caracterizado porque el detector está constituido por un espectrómetro de masas de varios colectores de iones para cada uno de los cuales la corriente puede ser integrada y eventualmente registrada.
- 25.
- 11^a.- Aparato, según la reivindicación 10^a, caracterizado porque cada colector de iones está unido
- 30.



5. por intermedio de un amplificador, eventualmente de un potenciómetro de normalización y de un integrador, a un comparador que suministra una señal proporcional a la diferencia de las corrientes de iones integradas.
10. 12ª.- Aparato, según cualquiera de las reivindicaciones 6ª a 9ª, caracterizado porque el detector es un espectrómetro de masas de un solo colector de iones que suministra sucesivamente y a intervalos de tiempo próximos, corrientes proporcionales a los volúmenes instantáneos de cada una de las diferentes especies isotópicas, pudiendo ser estas corrientes integradas y eventualmente registradas.
15. 13ª.- Aparato, según la reivindicación 12ª, caracterizado porque el colector de iones está unido por intermedio de un amplificador, eventualmente de un potenciómetro de normalización, a un convertidor analógico digital, cuyo convertidor está unido por
20. dos series que comprenden cada una un totalizador de impulso y un convertidor digital analógico a los dos bornes de un comparador capaz de suministrar una señal proporcional a la diferencia de las dos corrientes de iones integradas medidas sucesiva y periódicamente por el colector de ión único.
25. 14ª.- Aparato, según cualquiera de las reivindicaciones 6ª a 13ª, caracterizado porque el detector actúa por intermedio de un órgano de mando sobre un distribuidor capaz de dirigir a los colectores diferentes las diferentes fracciones de mezcla isotópica enriquecida.
- 30.

3308 14



15ª.- "Procedimiento y aparato para la separación de isótopos"; tal y como queda substancialmente descrito en la presente Memoria e ilustrado en los dibujos que se acompañan.

5. Esta Memoria consta de diecinueve hojas, escritas a máquina por una sola cara.

Madrid,

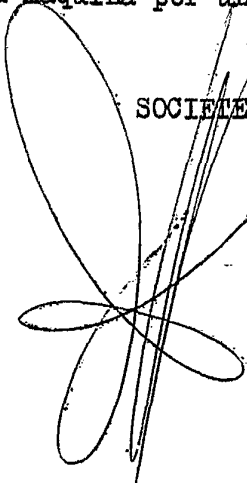
1901 FEB 14

SOCIETE NATIONALE DES PETROLES

D'AQUITAINE,

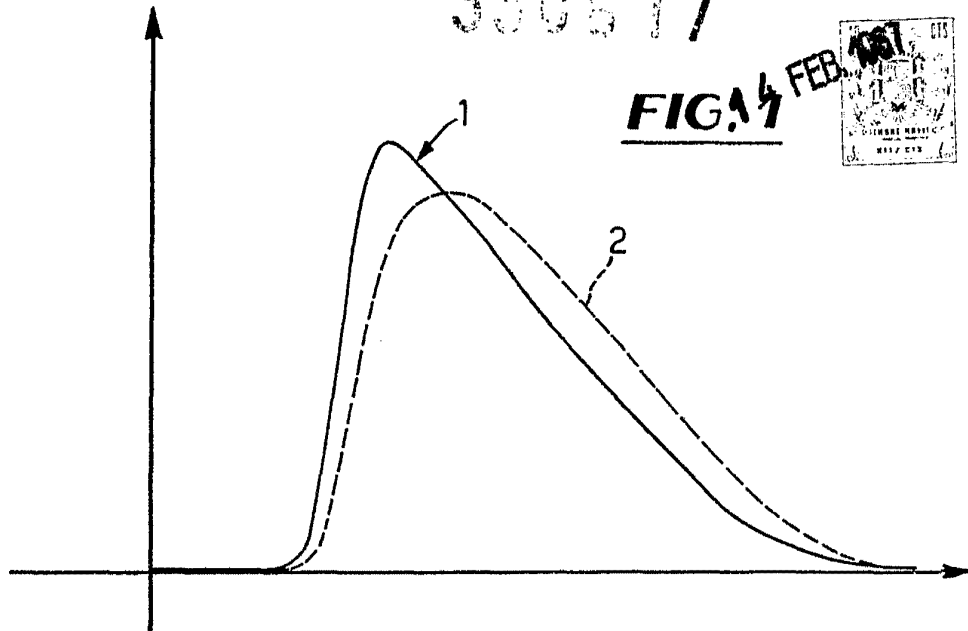
M. GOMEZ ACIBO Y MODEJ

p. p. Firmado: F. Hernández Ruiz



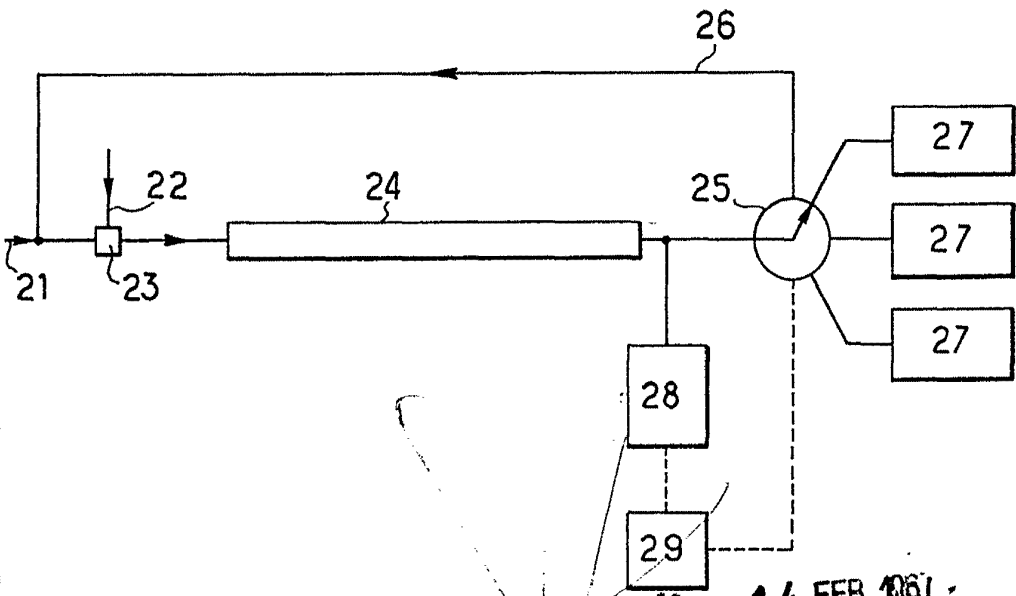
336817

FIG. 1



ESCALA
VARIABLE

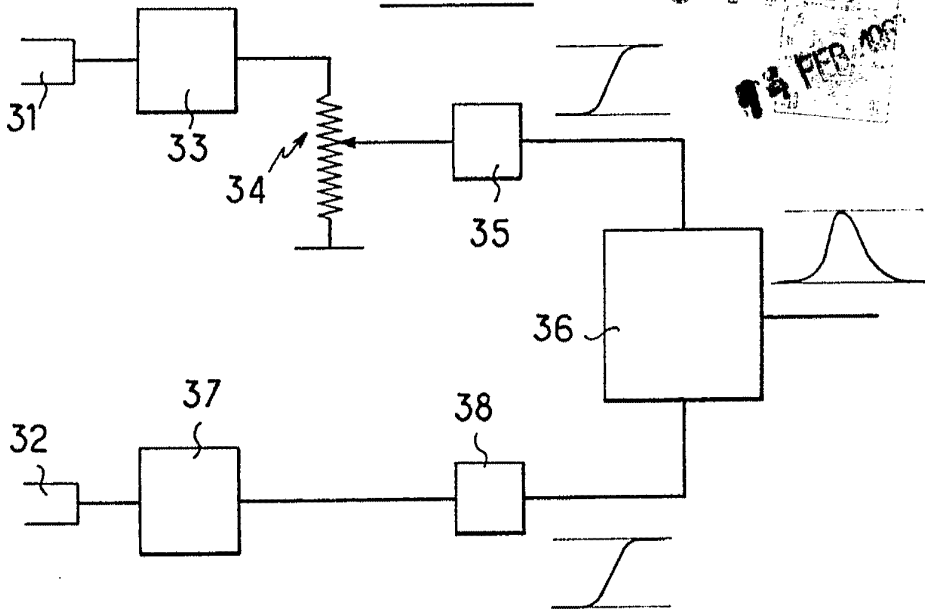
FIG. 2



Madrid 14 FEB. 1961

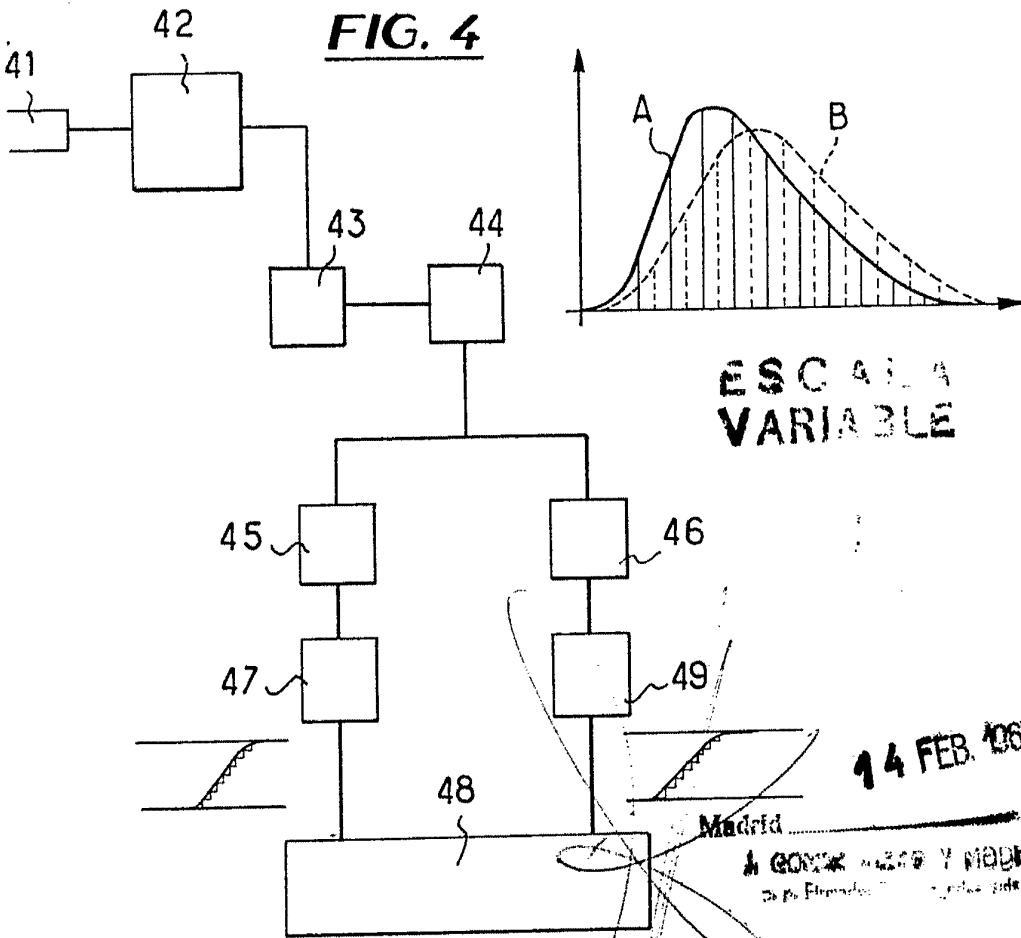
29 61 29 61 29 61 29 61 29 61

FIG. 3 336017



14 FEB 1967

FIG. 4



ESCALA VARIABLE

14 FEB. 1967

Madrid
A GOBERNADOR Y NIDEL
de la Empresa