



17 EN

PATENTE DE INVENCION

Dossiers 543-566-621

349400

*Memoria Descriptiva*

*sobre:*

" Procedimiento de enriquecimiento isotópico".

.=.=.=.=.=.=.=..

*Solicitante:* SOCIETE NATIONALE DES PETROLES D'AQUITAINE, entidad francesa, residente en Tour Aquitaine, 92, COURBEVOIE, Francia.

.=.=.=.=.=.=.=..

Es sabido que un cierto número de cuerpos se presentan en estado natural en forma de una mezcla de varias especies isotópicas.

5. Por el hecho de que las distintas especies isotópicas tienen grandes semejanzas químicas y solo



se diferencian, débilmente, por determinadas características físicas, en general es muy difícil separarlas, Para las aplicaciones industriales especiales, por tanto, es preciso obtener, partiendo de mezclas isotópicas generales, una de las especies isotópicas en estado puro o casi puro, o enriquecida en uno de los isótopos interesantes.

5.

Así ocurre, principalmente, para los elementos de los grupos O, III, IV, V, VI, de la clasificación de Mendeleief y, en especial, para los isótopos 10 y 11 del boro y los isótopos de masa 235 y 238 del uranio. Para realizar estas separaciones isotópicas, se ha recurrido principalmente, hasta nuestros días, a una técnica consistente en hacer difundir la mezcla isotópica, previamente puesta en forma gaseosa, a través de una pared porosa y en utilizar la diferencia entre las velocidades de difusión de las dos especies isotópicas, para obtener un enriquecimiento.

10.

15.

De acuerdo con otra técnica conocida, es también posible utilizar dispositivos de centrifugación para obtener un enriquecimiento en una de las especies isotópicas, a causa del hecho de que las fuerzas centrífugas actúan de modos distintos sobre las dos especies cuyas dos masas son ligeramente diferentes.

20.

Se conoce también el enriquecimiento isotópico por la técnica llamada del intercambio isotópico, en la que se realiza un equilibrio bifásico entre dos especies químicas. De ello resulta, un equilibrio isotópico diferente de las condiciones iniciales, cuando se hace variar la temperatura, obteniendo así un par

25.

30.



bitermo.

- Estos enriquecimientos son siempre muy reducidos y se ha observado que el fenómeno de enriquecimiento estaba directamente ligado al fenómeno de adsorción. Los dos isotópos presentan constantes de adsorción distintas. Por ejemplo, para dos isotopos de masas  $M_1$  y  $M_2$  se tienen dos constantes de adsorción,  $A$  y  $+\Delta A$ . La relación  $\frac{\Delta A}{A}$  ha podido medirse en el laboratorio, como igual a la variación relativa de la relación isotópica  $R$  representada por  $\rho = \frac{R^0 - R}{R^0}$ . Así es como, a título de ejemplo, se ha podido medir la relación  $\frac{\Delta A}{A}$  para los isotopos 10 y 11 del boro. Esta relación es de 0,02 aproximadamente en el caso de utilización de un par trifluoruro de boro-sulfuros orgánicos.
5. Es de 0,005 para los isotopos 12 y 13 del carbono en estado de óxido de carbono en contacto con el tamiz molecular. Esta relación varía con la temperatura.

- Se conoce también la cromatografía de desplazamiento en la que una mezcla gaseosa se introduce en un recinto lleno de un medio adsorbente. Se inyecta el medio a separar en este recinto y se le desplaza por un gas fuertemente adsorbido en el medio adsorbente, con más energía que el más adsorbido de los componentes de la mezcla. Esta cromatografía se ha utilizado para la separación de mezclas artificiales de hidrógeno, deuterio y tritio.
20. Es de 0,005 para los isotopos 12 y 13 del carbono en estado de óxido de carbono en contacto con el tamiz molecular. Esta relación varía con la temperatura.
25. Es de 0,005 para los isotopos 12 y 13 del carbono en estado de óxido de carbono en contacto con el tamiz molecular. Esta relación varía con la temperatura.

- Este invento se refiere a otro procedimiento en el que la relación de las constantes de adsorción se multiplica por un número importante, lo cual permite obtener enriquecimientos considerables; este procedi
30. Este invento se refiere a otro procedimiento en el que la relación de las constantes de adsorción se multiplica por un número importante, lo cual permite obtener enriquecimientos considerables; este procedi



amiento puede constituir el objeto de una repetición del enriquecimiento, y puede optimizarse.

5. Este procedimiento permite una preparación industrial económica de mezclas isotópicas artificiales que pueden dar lugar bien a la obtención de una especie isotópica pura o bien a mezclas de una concentración en un isótopo dado, distinta de la mezcla de partida.

10. El procedimiento de acuerdo con este invento, tiene la ventaja de poder ponerse en práctica de un modo extremadamente sencillo y con ayuda de aparatos relativamente económicos, siendo, sin embargo, capaz de tratar cantidades importantes de mezcla isotópica. De ello resulta que el procedimiento de acuerdo con este invento es especialmente apto para una separación isotópica a escala industrial.

15. Este invento tiene por objeto un procedimiento de enriquecimiento de una mezcla gaseosa de constituyentes de masas moleculares próximas en uno de sus constituyentes, caracterizado por introducirse la mezcla gaseosa en un recinto lleno de medio sorbente hasta que por lo menos una fracción, llamada fracción de cabeza, se recoja a la salida, por detenerse la inyección de la mezcla a separar cuando dicha fracción se ha recogido, porque se introduce inmediatamente un gas, llamado gas tampón, neutro con respecto a la mezcla gaseosa a separar y al medio sorbente, y por recogerse separadamente a la salida del recinto, las distintas fracciones.

20. De acuerdo con una característica de este in-

25.

30.



5.                    vento, las distintas operaciones se realizan en condiciones tales que la capacidad de retención determinada por el volumen del medio sorbente, y los mecanismos elementales de sorción de medio sorbente, contenido en el recinto, alcanzan un valor elevado.
- De acuerdo con una característica preferida de este invento, la relación de la capacidad de retención del medio sorbente contenido en el recinto, al volumen de la fracción de cabeza recogida, es superior á 2.
10.                   En efecto, se ha comprobado que durante la sorción de la mezcla de compuestos de masas atómicas próximas, tales como por ejemplo, los isotopos de un mismo elemento, se obtiene un enriquecimiento de la fracción de cabeza, en una parte de la mezcla como máximo igual a 20%.
15.                   De acuerdo con una característica de este invento la mezcla gaseosa de constituyentes de masas atómicas próximas, es una mezcla de isotópos de un mismo elemento.
20.                   De acuerdo con otra característica especial del invento, la mezcla de isotopos de un mismo elemento, es una mezcla natural de isotopos.
- De acuerdo con este invento, el medio sorbente está encerrado en un recinto que, con preferencia, tiene una forma alargada y posee un orificio de entrada y otro de salida.
25.                   Según una característica de este invento, puede elevarse el recinto a una temperatura más elevada, durante la inyección del gas tampón, superior a la
- 30.



temperatura a que el recinto se somete durante la saturación por la mezcla isotópica.

Según una característica del invento, el gas tampón es un gas inerte con respecto al medio sorbente.

5.

De acuerdo con otra característica del invento, el medio sorbente se llena de gas tampon con anterioridad a la inyección de la mezcla isotópica.

10. En un modo de aplicación de este invento, la mezcla isotópica se introduce en el medio sorbente a un flujo tal que el flujo de dicha mezcla en el medio sorbente, sea viscoso.

15. En un modo de aplicación práctica de este invento, la mezcla isotópica se introduce en el medio sorbente, a gasto constante.

En un tipo de aplicación preferido, se utiliza una mezcla isotópica gaseosa, purificada, o sea exenta al máximo de las impurezas sorbibles que pueda contener.

20. En un sistema de aplicación práctica del procedimiento a que este invento se refiere, se recogen a la vez y de modo independiente, la fracción de cabeza que se ha enriquecido en la especie menos fijada por el medio sorbente, y la fracción de cola, o sea la fracción de mezcla isotópica que sale finalmente de la columna, fracción que se ha empobrecido en la especie menos fijada por el medio sorbente.

25. En un modo de aplicación práctica más complicado, se recogen sucesivamente y de modo independiente, la fracción de cabeza enriquecida en la especie

30.



menos fijada, la fracción central cuya relación isotópica media ha variado poco, y la fracción de cola enriquecida en la especie más fijada.

5. En un modo de aplicación práctica todavía más complicado, se recogen sucesivamente de modo independiente, la fracción de cabeza, la fracción central y la fracción de cola, y se somete cada una de estas fracciones a una purificación en la que se separa de este modo la fracción del gas tampón que puede haberse mezclado.
- 10.

- De acuerdo con uno de los datos de este invento, se ha observado que la elección de los elementos en los que se llevan a cabo las conmutaciones de entrada y de salida de los gases en tres fracciones, aseguran una posibilidad de regular el grado de enriquecimiento en isotopos de diferentes fracciones el límite bastante elevados alrededor del valor obtenido fraccionando en el momento de la saturación completa de la columna.
- 15.

20. En un modo de aplicación preferido de esta purificación, se hace pasar la mezcla isotópica por un recinto que contiene partes metálicas enfriadas a una temperatura suficientemente baja para que la acción del vapor de la mezcla isotópica sea muy débil; luego se eleva este recinto a una temperatura tal, que la mezcla isotópica esté en forma gaseosa.
- 25.

- De acuerdo con este invento, puede inyectarse por lo menos una fracción de mezcla isotópica gaseosa enriquecida en una de las especies y saliente de una etapa, en una segunda etapa, y repetir el proce
- 30.



dimiento anterior; las distintas etapas están dotadas de las conexiones necesarias.

5. De acuerdo con este invento, se llevan así a cabo una sucesión de enriquecimientos unitarios, mediante columnas llenas del medio sorbente, colocadas en cascada.

10. En un modo de aplicación práctica de este invento, se realiza el enriquecimiento isotópico en cascada enviando a un primer recinto un flujo gaseoso de mezcla isotópica a enriquecer, recogiendo la fracción de cabeza; enviando ésta a la entrada de un segundo recinto, recogiendo la fracción central y enviando ésta a la entrada de dicho primer recinto, recogiendo la fracción de cola y enviando ésta a la entrada de un tercer recinto y haciendo experimentar a las fracciones citadas que entran en cada recinto, el tratamiento de acuerdo con el procedimiento unitario antes descrito, siendo preciso que el segundo y el tercer recinto estén colocados a uno y a otro lado del primer recinto y que se lleven a cabo los empalmes necesarios.

20. En este modo de aplicación del invento, se manda a un recinto dado una mezcla isotópica procedente de la fracción de cabeza del recinto situado en la parte superior de la cascada, una mezcla isotópica procedente de la fracción central de dicho recinto, y una mezcla isotópica procedente de la fracción de cola de un recinto situado después de la cascada.

25. Se define como medio sorbente, un medio susceptible de fijar, de cierto modo, una cierta cantidad de un compuesto gaseoso cualquiera que sea el modo de fija-

30.



ción del compuesto gaseoso en el medio citado.

La fijación puede ser reversible a una temperatura dada. Puede también servir a esta temperatura y transformarse en reversible a una temperatura superior.

5. Se ha convenido en llamar reciclado la operación que consiste en retirar una fracción cualquiera saliente de un recinto, para reinyectarla a la entrada de este mismo recinto. Por el contrario, se denomina reflujó la operación consistente en retirar una fracción cualquiera saliente de un primer recinto, para reintroducirla inmediatamente en la entrada de un segundo recinto distinto del primero y situado antes del primero con respecto al sentido del enriquecimiento creciente del isótopo menos sorbido.
- 10.
15. Se denomina purificación el hecho de separar la mezcla isotópica del gas tampón, de tal modo que no se inyecte en la etapa siguiente más que la mezcla isotópica pura.

Se entiende por etapa siguiente, la etapa situada más allá de la etapa considerada, con respecto al sentido del enriquecimiento creciente en el isótopo menos sorbido.
- 20.
25. Se entiende por etapa anterior, la etapa situada antes de la etapa considerada, con respecto al sentido del enriquecimiento creciente en el isótopo menos sorbido.

Para definir "anterior y posterior" se hace referencia al sentido del enriquecimiento creciente en el isótopo menos sorbido.
30. El grado de enriquecimiento, se define como la



7 ENE. 1968

diferencia relativa de las relaciones isotópicas de dicha fracción y de la mezcla inicial. Se recordará que se entiende por relación isotópica, la relación del número de individuos de una especie isotópica al número de individuos de otra especie isotópica. Resulta pues interesante aumentar el grado de enriquecimiento en uno de las especies isotópos, lo más posible, cuando se desea aislar la especie citada.

5. De acuerdo con un tipo de aplicación práctica del procedimiento a que este invento se refiere, es también posible, enviar la mezcla isotópica inicial a un recinto que contenga el medio sorbente situado alrededor del centro de la cascada; esta variante permite, en especial empobrecer cada vez, en la especie isotópica que se trata de separar, las fracciones de cola que se hacen refluir hacia los recintos situados antes del recinto en el que se ha introducido la mezcla isotópica inicial.

10. La cascada, de este modo, se separa en dos partes por el recinto de alimentación, una de aquéllas sirve para el enriquecimiento en el isotopo más sorbido.

15. De acuerdo con este invento, estas dos partes de la cascada se realizan del modo siguiente: la primera etapa, llamada etapa de alimentación, se alimenta en mezcla inicial; la fracción de cabeza que sale de esta etapa después de la purificación, se envía a la etapa siguiente; la fracción central, después de la purificación, se introduce de nuevo con el gas de alimentación, en la misma etapa de alimentación, y la fracción de cola después de la purificación, se manda a la etapa anterior.

20. En un modo de aplicación práctico preferido de

25.

30.



esté invento, el gas tampón pertenece a un grupo que comprende la familia de los gases raros, los compuestos halogenados y con preferencia fluorados, y gases tales como el nitrógeno y el fluor.

5. En un modo de aplicación práctico preferido del procedimiento de acuerdo con este invento, se retira a la salida de un recinto de medio sorbente y para inyectarla en el recinto de medio sorbente que le sigue en la cascada una fracción de cabeza comprendida entre 1 y 40% de la mezcla isotópica que satura el medio.

10. De acuerdo con este invento puede también recogerse a la salida de un recinto de medio poroso sorbente, para hacer refluir a la entrada del recinto de medio sorbente situado antes, en la cascada, una fracción de cola de la mezcla isotópica, comprendida entre 1 y 60% en volumen de la mezcla isotópica que satura la columna.

15. En un modo de aplicación práctico de este invento, para separar las distintas especies isotópicas, se utiliza un medio sorbente que posea propiedades susceptibles de poner en juego o en actividad las propiedades de vibración de las moléculas de las distintas especies isotópicas. Puede también utilizarse un medio sólido que se impregna mediante un líquido cuya molécula posee por lo menos un átomo intercambiador de electrones, haciéndose constar que se entiende por átomo intercambiador de electrones, un átomo donador o aceptor de electrones.

20. En un modo de aplicación del procedimiento de
- 25.
- 30.

7 ENE. 1968



- acuerdo con este invento, el medio poroso sorbente que llena los recintos, es un tamiz molecular pulverizado de granulometría sensiblemente homogénea y en el que el diámetro de los poros internos está comprendido entre
5. 3 y 100 Å. Este medio se utiliza ventajosamente para la separación de los isótopos del carbono dichos isótopos se ponen en forma gaseosa, por ejemplo al estado de monóxido de carbono, por el tratamiento de acuerdo con este invento. Este medio puede utilizarse también para la
10. separación isotópica del neon.

- En un segundo modo de aplicación práctica, se utilizan medios sorbentes constituidos por sólidos en forma dividida de granulometría sensiblemente homogénea, tales como los definidos por la fórmula general  $H_xM_y$  en
15. la que H representa un cuerpo de la familia de los halógenos, M un metal, y x e y son dos números enteros.

Este medio es utilizable para la separación de los isótopos del uranio; este último se encuentra en estado de hexafluoruro.

20. En un tercer método de aplicación, se utiliza un soporte sólido, en forma dividida, de granulometría sensiblemente homogénea, que se ha impregnado mediante un líquido.

- En una variante de este tercer método de aplicación,
25. el líquido utilizado es un compuesto orgánico que contenga por lo menos un átomo donador de electrones; la concentración en peso de dicho compuesto orgánico, está comprendida entre 5 y 90% del peso de soporte seco; los átomos donadores de electrones se eligen en el
30. grupo constituido por los elementos tales como azufre,



oxígeno, nitrógeno, elenio, telurio.

5. En un modo de aplicación práctica de esta variante, el compuesto orgánico contiene un átomo donador de electrones y el resto de la molécula está compuesto por, como mínimo, un grupo alquílico-arílico cuyo número de átomos de carbono se halla comprendido entre 2 y 30. Esta variante puede utilizarse ventajosamente para la separación de los isótopos del boro.

10. Se describe a continuación un modo de aplicación práctica del procedimiento aplicado a una mezcla gaseosa, por ejemplo isotópica.

15. En un medio sorbente encerrado en un recinto y previamente lleno de gas tampón, se introduce una mezcla gaseosa única en condiciones tales que exista sorción de los constituyentes de esta mezcla en el medio sorbente, y ello a caudal constante. Supóngase que esta introducción se realiza en el instante 0. En un primer período, el medio sorbente sorbe la mezcla gaseosa impulsando por delante de la misma, el gas tampón. Las moléculas del compuesto gaseoso, se fijan haciendo variar la pérdida de carga en la columna. Este primer período dura hasta que uno de los constituyentes de la mezcla gaseosa llega a la salida de la columna. Se descubre, por ejemplo, por un detector de alambre caliente, en el instante  $t_R$ . Se deja pasar una determinada fracción hasta el instante  $t_C$ , de tal modo que se recoja una fracción de enriquecimiento deseable. En el mismo instante  $t_C$ , se reemplaza en la entrada del recinto la alimentación en mezcla isotópica, por alimentación de gas tampón.

20.

25.

30. Durante un cierto tiempo, se deja pasar la mezcla que



17 ENF 1968

5. sale del recinto bajo el impulso del gas amortiguador. Esta fracción se denomina fracción central. Tiene una relación isotópica próxima a la relación isotópica de la mezcla de alimentación. Luego, en el instante  $t_B$ , mientras que el gas o caudal de la mezcla isotópica disminuye a la salida del recinto, se conmuta la salida hacia un tercer depósito. Se recoge, a continuación, la fracción de cola.

10. La relación de las concentraciones de los constituyentes en la fase gaseosa no fijada por una parte, y de la fase sorbida por otra parte, define la constante de sorción A.

15. Se define la capacidad de retención  $V_r$  del recinto, con respecto a un componente gaseoso, como el volumen de saturación del recinto, volumen expresado en las condiciones de temperatura y de presiones normales. La capacidad  $V_r$  medida en las condiciones normales, representa pues el volumen de un componente gaseoso de entrada en el recinto cuando el frente se detecta. Si en estas condiciones en lugar de inyectar un componente gaseoso único, se inyecta una mezcla de dos isotopos gaseosos de masa  $M_1$  y  $M_2$  que tengan coeficientes de sorción A y  $A + \Delta A$ , siendo  $\Delta A$  pequeño, se observan dos capacidades de retención  $V_r$  y  $V_r + \Delta V_r$

20. designándose el valor medio de estos dos valores, en adelante, por V.

25.

30. Así pues, existe un periodo durante el cual la concentración del compuesto de constante de sorción A en la mezcla que sale del recinto, es más elevada que la concentración de este mismo compuesto en la mezcla



de alimentación. Esto puede comprobarse utilizando un espectrómetro de masa.

5. En el instante en que la concentración de salida vuelve a ser igual a la concentración de entrada se ha recogido un volumen  $V^+$  de relación isotópica  $R^+$  diferente de la relación isotópica  $R_0$  de mezcla inicial.

Se define el grado de enriquecimiento por la variación relativa de la relación isotópica  $R$ . Pero de acuerdo con este invento se demuestra que

10.

$$\rho^+ = \frac{R^+ - R_0}{R_0}$$

15.

$$\rho^+ = \frac{V}{V^+} \frac{\Delta A}{A}$$

20.

En otros estudios de separación, se había observado  $\frac{\Delta A}{A}$ . En este caso, por el contrario, los solicitantes han ideado un procedimiento en el que el fenómeno elemental se multiplica por un coeficiente de amplificación  $\frac{V}{V^+}$ , procedimiento en el que el coeficiente de amplificación es regulable por el volumen retirado, el volumen de medio sorbente de la columna y los mecanismos elementales que determinan el volumen  $V^+$ .

25.

Se observa, correlativamente, que la fracción de cola se empobrece en isotopo  $M_1$  y por tanto, se enriquece en isotopo  $M_2$ .

Este invento se comprenderá mejor por la descripción siguiente adarada por los dibujos adjuntos.

30.

La figura 1 representa un elemento separador



o sea un recinto y sus elementos de entrada y de salida;

5. La figura 2 representa esquemáticamente los caudales o gastos observados a la salida del recinto en función del tiempo;

La figura 3 representa los caudales o gastos de los dos isotopos de masa  $M_1$  y  $M_2$  a la salida de la columna, en función del tiempo;

10. La figura 4 representa el enriquecimiento isotópico observado durante el fenómeno de desorción;

La figura 5 representa el enriquecimiento y el factor de amplificación observados en función de la sección del recinto, y

15. La figura 6 representa el factor de enriquecimiento en función del diámetro de los granos.

20. En la figura 1 se ha representado en 1, un recinto constituido por una columna de monel por ejemplo, de sección cilíndrica; las dimensiones de esta columna, que pueden ser variables, en el ejemplo elegido son 15 cm. de diámetro y 3 m de longitud. Este recinto 1 está lleno de medio sorbente que es, por ejemplo, una tierra recocida deshidratada a  $200^{\circ}$  en atmósfera de helio y en la que se ha fijado el 30% de su peso de sulfuro de dioctilo.

25. Esta columna se une, por unaparte a un conducto de entrada 2 en el que se coloca una llave de comunicación 3, unida a dos conductos 4 y 5 que sirven para la conducción, respectivamente, del gas tampón y de la mezcla isotópica a separar.

30. El medio separador se representa en 6 en el



17 ENF. 1966

- interior del recinto; éste está unido a un conducto de salida 7 cuyo segundo extremo está conectado a un dispositivo de comunicación 8 y a una llave de regulación todo o nada 9, cuya salida está acoplada
5. a un detector de alambre caliente 10. El dispositivo de conmutación 8 tiene cuatro salidas 11 á 14; la primera es, por ejemplo, la salida del gas tampón, que se une a un conducto de alimentación 15 en que se acopla una bomba de circulación 17; el detector de
10. alambre caliente 10 está por otra parte unido a un reloj 16 cuya puesta en marcha impulsa. Este reloj 16 regula la colocación del órgano de conmutación 8, a fin de dirigir el caudal de las distintas fracciones que sale del recinto, a través del conducto 7,
15. hacia las distintas canalizaciones 11 a 14. El funcionamiento de este dispositivo, es el siguiente:
- Antes del instante 0, el gas tampón llega, por la canalización 4, el dispositivo de conmutación 3 y el conducto 2, al recinto 1 cuyos poros llena.
20. Este gas pasa inmediatamente a través de la canalización 7, del conmutador 8 y sale de nuevo por la canalización 14, asegurando un circuito cerrado. En el instante 0, se corta la alimentación de gas tampón por conmutación de la llave 3 y se introduce a gasto
25. del orden de 200 cc por segundo, la mezcla isotópica a separar, que recorre el camino siguiente. Entrando por el conducto 5, atraviesa la llave de conmutación 3, el conducto de entrada 2, luego avanza al interior del recinto 1, saturando el medio sorbente e impulsando, por su parte anterior, el gas tampón.
- 30.



17 ENE. 1968

El avance se realiza según un frente que se desplaza por el interior de la columna, a modo de un pistón, expulsando por delante de él, el gas tampón. La mezcla isotópica satura el medio sorbente en el que avanza. Se asiste así a un fenómeno de intercambio o reemplazamiento de las moléculas de la especie menos sorbida por las de la especie más sorbida, y el fenómeno prosigue mientras el recinto no está completamente saturado, o sea mientras no se han observado moléculas de mezcla isotópica procedentes del recinto, por el conducto 7, moléculas que se detectan por el catarómetro 10.

En el momento en que se detectan moléculas por este aparato, se hace funcionar la puesta en marcha del reloj 16. Este da al conmutador 8 una orden que pone en relación la entrada 7 de este último con la salida 11. Transcurrido un tiempo determinado, el reloj 16 conmuta la llave 3 de tal modo que el gas tampón circula de nuevo. Al cabo de un tiempo determinado, modifica la posición del conmutador, lo cual pone en relación su entrada 7 con la salida 12. Después de un cierto tiempo, además, se pone en comunicación la entrada 7 del conmutador 8 con la salida 13, y luego, al cabo de un cierto tiempo, el reloj 16 pone en comunicación la entrada del conmutador 8 con una salida 14.

En un modo de aplicación, en cuanto el detector 10 ha descubierto la llegada de las primeras moléculas, se cierra una llave de interrupción 9, lo cual tiene por efecto aislar el catarómetro 10. La lla



ve 9 se abre de nuevo cuando se ha llevado a cabo la conmutación entre la entrada 7 del conmutador 8 y su salida 14. Estas maniobras de la llave 9 se realizan por el reloj 16.

5. Las distintas etapas de la conmutación van a definirse al describir las figuras siguientes:

10. En la figura 2 se han representado los caudales de los distintos gases al nivel del detector 10, en función del tiempo. Si se toma como instante de partida el instante 0, o sea, el instante en que se ha realizado la conmutación entre la entrada del gas tampón y la de la mezcla isotópica, ésta satura la columna durante un cierto tiempo, expulsando el gas tampón. Las primeras moléculas de mezcla isotópica

15. llegan al detector 10 en el instante  $t_R$ , definiendo así el volumen de retención tal como antes se describió. Este instante  $t_R$  es el instante de conmutación entre el circuito 7-14 del conmutador 8 y el circuito 7-11 del mismo conmutador. Entonces, la concentración de la mezcla isotópica en el gas aumenta para

20. alcanzar un máximo que permanecerá constante durante un tiempo dado. Este máximo se alcanza en el instante  $t_L$ . En el instante, a más tardar, se conmuta la llave 8 entre 7 y 12, la masa isotópica pasa entonces,

25. y luego su concentración en el gas tampón disminuye a contar del instante  $t_D$ , a partir del cual se conmuta la llave 8 entre 7 y 13. La mezcla gaseosa inicial ha salido totalmente en el instante  $t_N$ . En este instante se realiza la conmutación 7-14.

30. La figura 3 representa una parte de la figura



- ra 2, en la que se ha detallado el tiempo situado entre  $t_R$  y  $t_F$ . El instante 0 indicado corresponde, como en la figura 2, el principio de la inyección de mezcla isotópica. El instante  $t_R$  corresponde a la aparición
5. de las primeras moléculas de mezcla isotópica al nivel del detector 10. El instante  $t_F$  corresponde a la concentración máxima y constante de la mezcla isotópica. La primera curva  $M_1$  es la llegada del primer frente de las moléculas de especie  $M_1$ ; es, por ejemplo, la
10. llegada de las moléculas del isótopo 11 del boro. Se observa un segundo frente, llamado  $M_2$ , que corresponde a la llegada de moléculas de la especie  $M_2$ ; es, por ejemplo, la llegada de moléculas del isótopo 10 del boro. Entre el instante  $t_R$  y el instante  $t_F$ , se realiza
15. el corte de la fracción de cabeza en un instante  $t_C$ . Esto se lleva a cabo por la comunicación entre la entrada 7 y la salida 12 del conmutador 8. Este instante  $t_C$  es regulable y permite obtener fracciones de cabeza de la mezcla isotópica, más o menos enriquecidas. Si se toma el instante  $t_C$  muy próximo a  $t_R$ , se
20. obtiene una mezcla elevadamente enriquecida en el isótopo  $M_1$ , pero una cantidad enriquecida débil, mientras que si hace coincidir  $t_C$  con  $t_F$ , el enriquecimiento de la mezcla es más débil, pero la cantidad enriquecida es mucho más importante.

La figura 4 representa la parte comprendida entre  $t_D$  y  $t_N$  de la figura 2, En esta figura, la curva 21 representa la concentración en mezcla isotópica que sale, sola del recinto hasta  $t_D$ , y luego con el

30. gas tampón, entre los tiempos  $t_D$  y  $t_N$ .



5. La cantidad instantanea de mezcla isotópica que sale del recinto, según una ley de tipo gróseramente exponencial. Se observa en esta cola de mezcla isotopica un empobrecimiento representado en 22 en la figura y que hallado experimentalmente, varía de 0 a 6%.

En el caso del monóxido de carbono, los valores correspondientes se han indicado en ordenadas en la curva; se representan en porcentajes.

10. La figura 5 representa curvas experimentales halladas en el curso de experiencias con el monoxido de carbono. La recta 23 representa la variación del grado de enriquecimiento de la fracción de cabeza medida como

15. 
$$\rho^+ = \frac{R^+ - R_0}{R_0}$$

en función de la sección de la columna.

20. Esta recta es muy sensiblemente una recta paralela al eje de las abscisas y muestra que el grado de enriquecimiento de la fracción de cabeza es poco dependiente de la sección de la columna. Se han representado por círculos los puntos experimentales hallados; estos círculos están próximos a la recta 23. La recta 24 representa la variación del coeficiente de amplificación  $\frac{V}{V^+}$  tal como resulta de la fórmula

25. 
$$\rho^+ = \frac{V}{V^+} \frac{\Delta A}{A}$$

en función de la sección de la columna.

30. Se han representado por cruces los valores



experimentales hallados para el factor de amplificación del fenómeno elemental encontrado utilizando el procedimiento de acuerdo con este invento. Este factor de amplificación es sensiblemente independiente de la sección de la columna.

5. La figura 6 representa la curva 26 que es una variación del factor de enriquecimiento en función del diámetro de los granos del medio sorbente. Se observa en especial que el factor de enriquecimiento permanece constante para granos de diámetro inferior a 0,5 mm y además disminuye sensiblemente después.

10. Para aclarar el procedimiento antes descrito, a continuación y por vía de ejemplo se detalla el enriquecimiento isotópico de varias mezclas.

15. Se ha procedido al enriquecimiento isotópico del óxido de carbono. Para ello, se ha empleado un tamiz molecular 5 Å proporcionando por la sociedad Unión Carbide. Este tamiz se muele en granos cuyo diámetro está comprendido entre 0,14 y 0,28 mm y luego se deshidrata durante 15 horas, en atmósfera de helio, a 200°C.

20. Con ayuda de esta tamiz se llena un recinto o recipiente de cobre, de 4 mm de diámetro interior y de 3 m de longitud, que se mantiene a 22°C. El recipiente se llena de helio y luego, en el instante 0, se inyecta monóxido de carbono con un caudal de, aproximadamente, 1 cc/segundo.

25. Dejando las cosas en estas condiciones, el caudal o gasto varía ligeramente por sí mismo, y puede regularse ajustando un orificio. Al cabo de 550 segundos y por medio de un catarómetro colocado a la sali

30.



5. da de la columna, se descubre la aparición del óxido de carbono que ha expulsado el helio de la columna. El gasto del óxido de carbono se estabiliza 565 segundos después de empezar la inyección. De ello resulta un volumen de capacidad de retención de 426 cm<sup>3</sup>.

10. Si a partir del instante +550 segundos, se retiran fracciones que salgan del recipiente, se comprueba, por análisis en espectrometría de masa, que estas fracciones están enriquecidas en carbono 12. Esta variación de relación dura desde el instante +550 segundos al instante +590 segundos aproximadamente. Después de este instante, la relación isotópica adopta de nuevo su valor inicial.

15. En este caso han podido medirse las magnitudes características siguientes:

$$\rho^{\dagger} = 7\% \text{ (factor de enriquecimiento)}$$

$$v^{\dagger} = 30 \text{ cm}^3 \text{ (cantidad enriquecida)}$$

$$\frac{V}{v^{\dagger}} = 14,2 \text{ (coeficiente de amplificación)}$$

20. Se dejan desorber inmediatamente 370 cc de monóxido de carbono, cuya relación isotópica no ha variado, luego si se recogen los 150 cc de colas se hallan empobrecidos en carbono 12. El factor de empobrecimiento es de 1% aproximadamente, y el coeficiente de amplificación, de 2.

25. Pueden citarse otros ejemplos de separación isotópica de monóxido de carbono en tamiz molecular, haciendo variar la temperatura y manteniendo constantes las demás condiciones. El volumen y, paralelamente

30.



el tiempo de retención, varían sensiblemente como la inversa del logaritmo de la temperatura absoluta por debajo de  $30^{\circ}\text{C}$ , luego, según la misma ley, pero de pendiente diferente por encima. Se ha podido operar entre  $-100^{\circ}\text{C}$  y  $100^{\circ}\text{C}$ ,

5. El coeficiente de amplificación varía poco, entre 13,5 para  $100^{\circ}\text{C}$  y 15 para  $-100^{\circ}\text{C}$ , aumentado aproximadamente de modo regular, al descender la temperatura.

10. Tomando el mismo par monóxido de carbono-tamiz molecular, se ha podido hacer variar el diámetro de la columna a longitud constante, la longitud de la columna a sección constante y luego, a la vez, la longitud y el diámetro a volumen constante y, finalmente, el

15. caudal de monóxido de carbono. Se ha hecho variar la longitud de la columna de 0,75 m a 9 m, siendo la velocidad de circulación del monóxido de carbono  $16\text{ cm}^3$  segundo en la salida de la columna, cuando ésta se halla saturada.

20. Se han observado los fenómenos siguientes: el volumen de retención aumenta con la longitud de la columna, menos que linealmente; la cantidad enriquecida  $V^{\dagger}$  aumenta solamente poco, pasando de 25 cc para una columna de 0,75 m. a 55 cc para una columna de 9 m; el factor de enriquecimiento pasa de 3 a 11% y la variación relativa de los coeficientes de sorción, permanece constante.

25. Conservando constante la anchura de la columna, se ha hecho variar su sección de  $3\text{ mm}^2$  a  $5\text{ dm}^2$ . Se ha observado que si la velocidad del monóxido de carbo-

30.



no se aumentaba, el factor de enriquecimiento variaba poco en función del diámetro de la columna. Por el contrario, si el caudal se mantiene constante, el enriquecimiento permanece constante también.

5. La cantidad de gas enriquecida aumenta con la sección. Para un recipiente de  $1,14 \text{ dm}^2$  se obtienen 30 litros de gas para los cuales el coeficiente de enriquecimiento es de 8%.

10. Se ha observado que el volumen de retención disminuye cuando el caudal aumenta. Se ha podido demostrar que el fenómeno está ligado con la variación de presión media en la columna; las variaciones de caudal se producen forzosamente por alteraciones de presión, en igualdad de las demás circunstancias. Se ha observado que el volumen enriquecido aumenta con el caudal de óxido de carbono, y que el coeficiente de enriquecimiento disminuye ligeramente pasando de 8% para una velocidad de salida de  $8 \text{ cm}^3/\text{segundo}$  a 5% para  $80 \text{ cm}^3/\text{segundo}$ .

20. Se ha realizado otro enriquecimiento del monóxido de carbono en tamiz molecular, en las siguientes condiciones: Columna de 4 mm. de diámetro y 3 m. de longitud dotada de tamiz molecular de  $5 \text{ \AA}$ , de granulometría comprendida entre 0,42 y 0,50 mm, mantenida á menos  $125^\circ\text{C}$ . El caudal del monóxido de carbono, en columna saturada, medido a la salida, se mantiene constante e igual a  $1 \text{ cm}^3/\text{segundo}$ . La capacidad de retención en estas condiciones, es de unos  $2500 \text{ cm}^3$ .

30. 

Tempo de retención	2570 segundos
Factor de enriquecimiento	14,6%



17 E

- Cantidad enriquecida,  $220 \text{ cm}^3$   
Coeficiente de amplificación 11,4
- Recogiendo sólo la primera parte de la fracción de cabeza de  $10 \text{ cm}^3$ , el enriquecimiento era de 38%.
5. La capacidad de retención era la misma que anteriormente; el factor de amplificación en tal caso, es de 250.
- El enriquecimiento antes definido, es el enriquecimiento unitario. Pueden acoplarse entre sí varias etapas de enriquecimiento unitarias, el fenómeno de enriquecimiento, aumenta con el número de etapas.
10. Por ejemplo, utilizando a  $-125^\circ$  una cascada de 5 etapas unitarias de entrada central, de acuerdo con el procedimiento en cascada y en las condiciones antes definidas, se obtienen un monóxido de carbono cuya proporción de isótopo 12 a la salida, es de 99,7%.
15. En otra salida, se obtiene un monóxido de carbono cuya proporción de isótopo 13 puede alcanzar un 2,9%. En las condiciones menos buenas, la proporción de isótopo 13 es superior a 1,6%. Recuérdese que la relación natural es de 98,92% aproximadamente en carbono 12, y de 1,08% en carbono 13.
20. Se han realizado también ensayos de enriquecimiento del neon en neon 20 y neon 22.
25. A continuación se facilita un ejemplo de enriquecimiento en neon 20, de la mezcla de los isótopos 20 y 22 de neón.
30. Operando a la temperatura del nitrógeno líquido, se inyecta 1 litro de neon, en 16 minutos, en un re



5. recipiente (diámetro 0,4 cm., longitud 3 m.) lleno de tamiz molecular de granulometría comprendida entre 0,3 y 0,4 mm. El gas tampón utilizado, es el helio. Se recogen a la salida 50 cm<sup>3</sup> de neón con un enriquecimiento de 40% en neón 20. El factor de amplificación así obtenido es de 20.

- Puede repetirse la alteración tres veces por ejemplo, tomando como gas de alimentación el gas recogido durante la operación anterior. Al final de la tercera operación, se ha obtenido una mezcla de neón 20 y 22 en la que el contenido de neón 20 es superior a 98%.
- 10.

- Otro ejemplo es el enriquecimiento en isótopo 11, de la mezcla de los isótopos 10 y 11 del boro. Se opera a 10°C. Se ha podido comprobar que existía un máximo de enriquecimiento en función de la temperatura. Este máximo está situado entre menos 20°C y + 20°C. La operación de enriquecimiento se realiza en una columna de monel de sección hexagonal de 1 cm. de lado, llena de un medio inerte, cuyos granos tienen un diámetro comprendido entre 0,25 y 0,4 mm., de sulfuro de octilo simétrico a razón de 20 g. de sulfuro de octilo/100g. de cromosorb WAW. La inyección se hace en 16 minutos, y se inyectan 6,8 litros de trifluoruro de boro, a razón de alrededor de 7,5 cm<sup>3</sup>/segundo. A la salida de la columna, se retira una fracción de cabeza de 0,6 litros, con un enriquecimiento de 32% en boro 11. El factor de amplificación, en estas condiciones, es de 11,4.
- 15.
- 20.
- 20.

- Puede, también, no retirarse más que 0,15 l. El enriquecimiento en este caso es de 50%. En este último ejemplo, se ha recogido en una sola operación 0,15 l.
- 30.



de trifluoruro de boro, cuya proporción de isótopo 11 es superior á 81%, alrededor de 87%. En efecto, la relación isotópica natural es de alrededor de 4,3 y se convierte en 6,5.

5. Otro ejemplo referente al trifluoruro de boro, susceptible de proporcionarse se refiere a la utilización de una cascada de enriquecimiento en boro 11.

- La cascada está constituida por 3 elementos a, b, c. El primero es el elemento de alimentación.
10. La sección es de  $42 \text{ cm}^2$  y su longitud es de 4,50 m. El elemento b tiene una sección de  $28 \text{ cm}^2$  y 4,5 m. de longitud igualmente. El elemento c tiene una sección de  $14 \text{ cm}^2$  y una longitud de 4,50 m.; la unión de estos distintos elementos se consigue de acuerdo con el es-
15. quema de la cascada, oparte enriquecimiento. Las cantidades de gas en tratamiento son las siguientes, para una operación realizada á  $10^\circ\text{C}$ .

- Primera Etapa - Alimentación, 2,15 l. en 30 minutos, recicló primera etapa, 14,1 l. en 15
20. minutos; reflujo de la primera etapa (desecho) 1,6 l. en 25 minutos; reflujo de la segunda etapa a la prime-  
ra etapa; 1,08 l. en 25 minutos; fracción de cabeza 1,6 l. en 5 minutos. Esta fracción está enriquecida al 23%. La relación isotópica pasa de 4,3 á 5,3.

25. Segunda Etapa - Fracción procedente de la primera etapa, 1,6 l.; recicló de la segunda etapa, 9,5 l.; reflujo de la segunda etapa hacia la primera etapa, 1,08 l.; reflujo de la tercera etapa hacia la segunda etapa, 0,54 l.; fracción de cabeza recogida, 1,08 l. en
30. la que la relación isotópica de 5,3 á 6,5.

Tercera Etapa - Fracción procedente de la segunda etapa, 4,75 l.; reflujo de la tercera etapa hacia la segunda etapa, 1,08 l.; fracción de cabeza 0,54 l. en la que la relación isotópica pasa de 6,5 á 8.

5. Se retiran pues  $540 \text{ cm}^3$  de trifluoruro de boro en el que las concentraciones de los dos isótopos son, respectivamente, 89% de boro 11, y 11% de boro 10. La duración del ciclo es de 90 minutos, comprendiendo
10. 30 minutos de inyección durante los cuales se retira la fracción de cabeza en el transcurso de los 5 minutos últimos, 15 minutos de retirada de la fracción central empujada por inyección del nitrógeno á  $50^\circ\text{C}$  utilizado como gas tampón; 25 minutos de reflujo á  $50^\circ\text{C}$  y
15. 20 minutos de enfriamiento de los elementos hasta  $10^\circ\text{C}$ .

A título de ejemplo se hace figurar el enriquecimiento isotópico del uranio.

20. Se llena una columna de 4 mm. de diámetro y 3 m. de longitud, de granos de fluoruro sódico de diámetro comprendido entre 0,3 y 0,5 mm. La inyección se lleva a cabo á  $70^\circ\text{C}$ . La presión de entrada es de 1,1 bar absoluta, y el caudal, de  $0,5 \text{ cm}^3/\text{segundo}$ . La inyección se realiza durante 1000 segundo aproximadamente. La capacidad de retención de la columna es de  $450 \text{ cm}^3$ .
25. Retirando  $40 \text{ cm}^3$  de hexafluoruro de uranio a la salida de la columna, se ha hallado un factor de amplificación de 11, y un enriquecimiento superior á 6%. El gas tampón utilizado, es una mezcla de nitrógeno y de fluor. La fracción central se recoge a  $400^\circ\text{C}$ , lo mismo que la
30. fracción de cola.



17 EN

5. A continuación se facilitan a título indicativo, las características de una cascada que produce, partiendo del uranio natural, uranio enriquecido con 3,5% de isótopo 235. El desecho de esta cascada es uranio que contiene 0,23% de uranio 235.

10. La relación de reflujo, o sea la relación del volumen de la fracción de cola y del volumen de la fracción de cabeza, es de 1,17 en la parte de enriquecimiento y de 0,95 en la parte de empobrecimiento. Se utilizan 30 etapas distribuidas como sigue: parte enriquecimiento, 15 etapas; parte empobrecimiento, 14 etapas; las dos partes están acopladas por una etapa de entrada. El volumen de la parte de enriquecimiento es alrededor de 300 veces el volumen de la última etapa, y el
15. volumen de la parte empobrecimiento es de unas 460 veces el volumen de dicha última etapa.

N O T A

20. 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 unas solicitudes de patente presentadas en Francia con
25. los números PV.91.501 de 17 de Enero de 1967, PV.95.648 de 20 de Febrero de 1967 y PV.117.081 de 7 de Agosto de 1967, 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
30. lo que se solicita Patente de Invención por 20 años en



17 ENE 1908

España sobre: "PROCEDIMIENTO DE ENRIQUECIMIENTO ISOTÓPICO", caracterizándose por lo siguiente:

5. 1.- Procedimiento de enriquecimiento isotópico, mas particularmente de una mezcla gaseosa, de constituyentes de masas moleculares próximas en uno de sus componentes, caracterizado porque en una primera etapa, se introduce la citada mezcla gaseosa en un recipiente lleno del medio sorbente, previamente lleno de gas, llamado gas tampón, inerte con respecto a la mezcla gaseosa y al medio sorbente, hasta que se recoja, al menos, una fracción llamada de cabeza a la salida; en una segunda etapa, se detiene la inyección de mezcla gaseosa a separar, después de recoger dicha fracción; en una 10. tercera etapa, se introduce el gas tampón, y en una 15. cuarta etapa, se recoge separadamente a la salida del recipiente las distintas fracciones de la mezcla gaseosa.

20. 2.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque las distintas operaciones se realizan en condiciones tales que la capacidad de retención del medio sorbente, determinada por el volumen de este medio y los mecanismos elementales de sorción alcance un valor elevado.

25. 3.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque la relación de la capacidad de retención del medio sorbente al volumen de la fracción de cabeza recogida, es superior á 2.

30. 4.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque el régimen de circulación de la mezcla isotópica en el medio sorbente, es un régimen



viscoso.

17 ENE.

5. 5.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque como mezcla gaseosa de constituyentes de masas moleculares próximas, se emplea un compuesto gaseoso que contiene los isótopos de un mismo elemento.
10. 6.- Procedimiento según la reivindicación 5, caracterizado porque como compuesto gaseoso de los isótopos de un mismo elemento, se emplea un compuesto de mezcla natural de estos isótopos.
15. 7.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque durante el transcurso de la introducción de la mezcla gaseosa, se recoge una sola fracción de esta mezcla, y, después de recoger ésta fracción, se introduce el gas tampón en la entrada del recipiente.
20. 8.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque el fraccionamiento de la primera fracción de mezcla se realiza en función del tiempo transcurrido a partir del momento en que las primeras moléculas de la mezcla se descubren a la salida del recipiente de medio sorbente.
25. 9.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque a la salida de un recipiente lleno de medio sorbente, se recogen, de modo independiente, tres fracciones de mezcla isotópica, una fracción de cabeza enriquecida en uno de los isótopos, una fracción central cuya relación isotópica es sensiblemente igual a la relación isotópica inicial y una fracción de cola empobrecida en isótopo, cuya concentración es
- 30.

17 ENE.



más elevada en la fracción de cabeza.

5. 10.- Procedimiento según la reivindicación 9, caracterizado porque la fracción de cabeza se somete de nuevo a un ciclo de enriquecimiento, en un elemento situado en la parte inferior, se recicla la fracción central a la entrada del recipiente que ha servido para el fraccionamiento, y la fracción de cola se somete a reflujó en un recinto situado antes del recipiente que ha servido para el fraccionamiento, denominándose a este conjunto de operaciones enriquecimiento en cascada.

15. 11.- Procedimiento según la reivindicación 10, caracterizado porque en un recipiente dado se inyecta una fracción de cabeza procedente del recipiente situado antes de la cascada, una fracción central procedente de dicho recipiente, y una fracción de cola procedente del recipiente situado después de la cascada.

20. 12.- Procedimiento según la reivindicación 5, caracterizado porque el elemento que se enriquece en uno de sus isótopos, se elige del grupo consistente en un elemento del grupo III A, en particular el boro, un elemento del grupo V b, en especial el uranio, un elemento del grupo IV, en especial el carbono y un elemento de la familia de los gases raros.

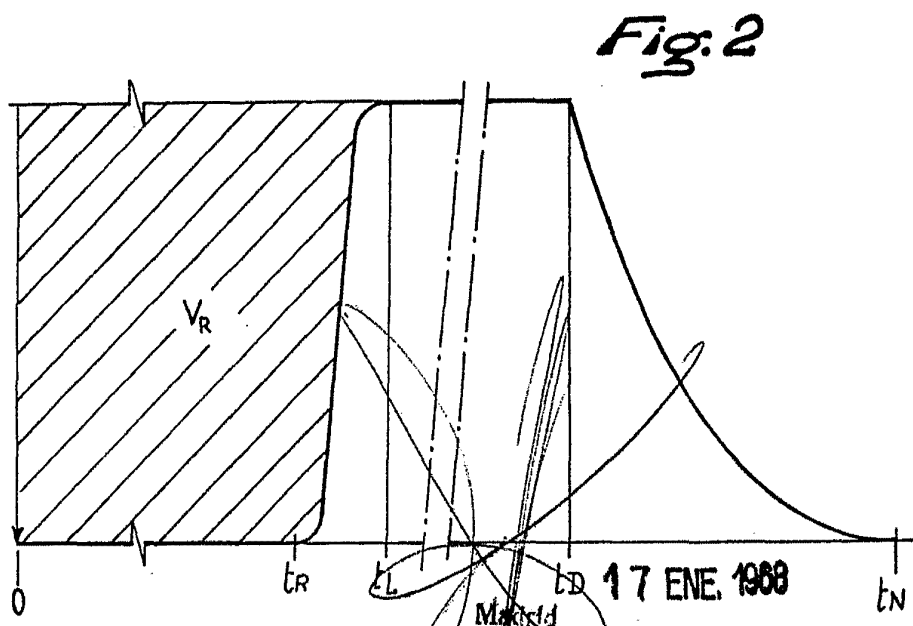
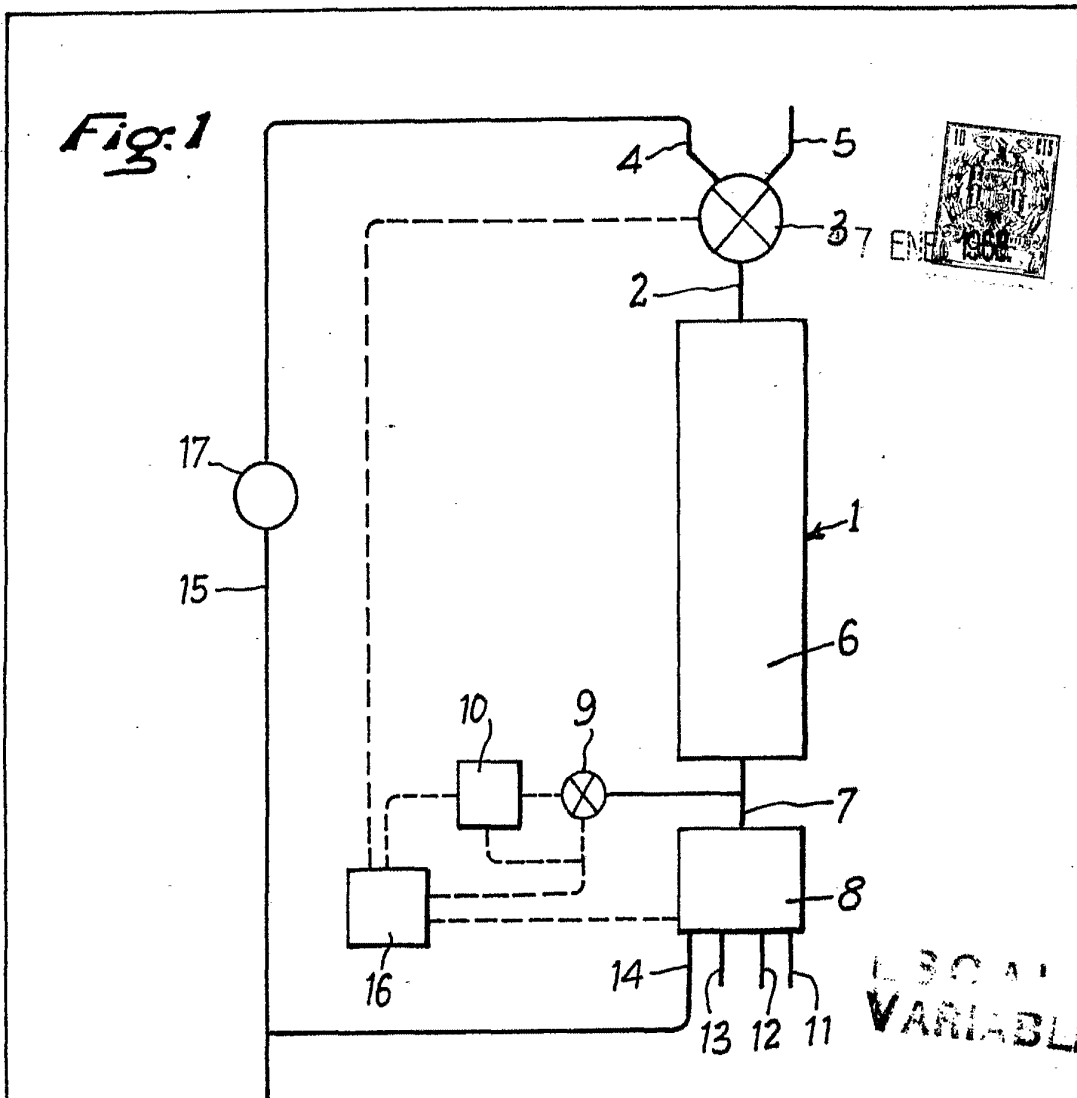
25. 13.- Procedimiento de enriquecimiento isotópico, tal y como queda descrito en la presente Memoria y en los dibujos adjuntos.

Esta Memoria consta de treinta y tres hojas escritas a máquina por una sola cara.

Madrid, 17 ENE 1968

SOCIÉTÉ NATIONALE DES PÉTROLES D'AQUITAINE.

J. GOMEZ ACEBO Y MODA  
p. p. Firmado: F. Hernández Ruiz



17 ENE. 1968

Madrid

K. GOMEZ ACEBO Y MODEJ  
C/ P. F. Ferrnandez Balle

Fig:3

17 ENE. 1968

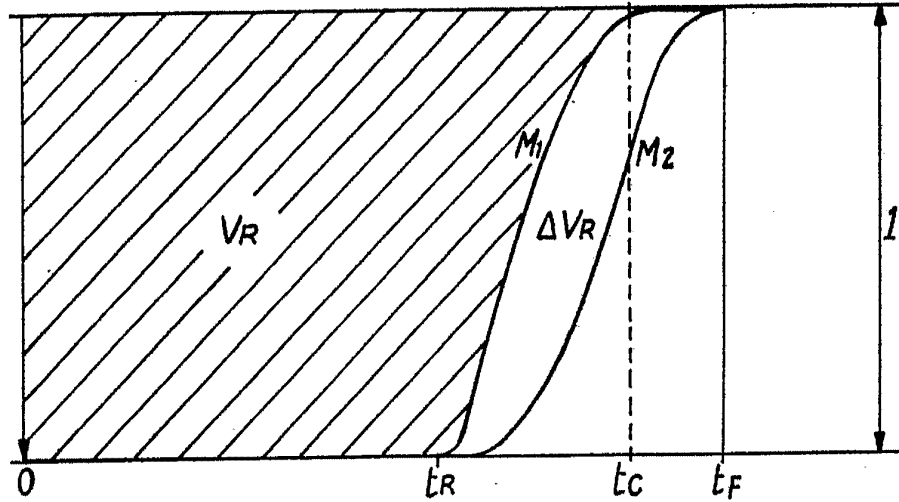
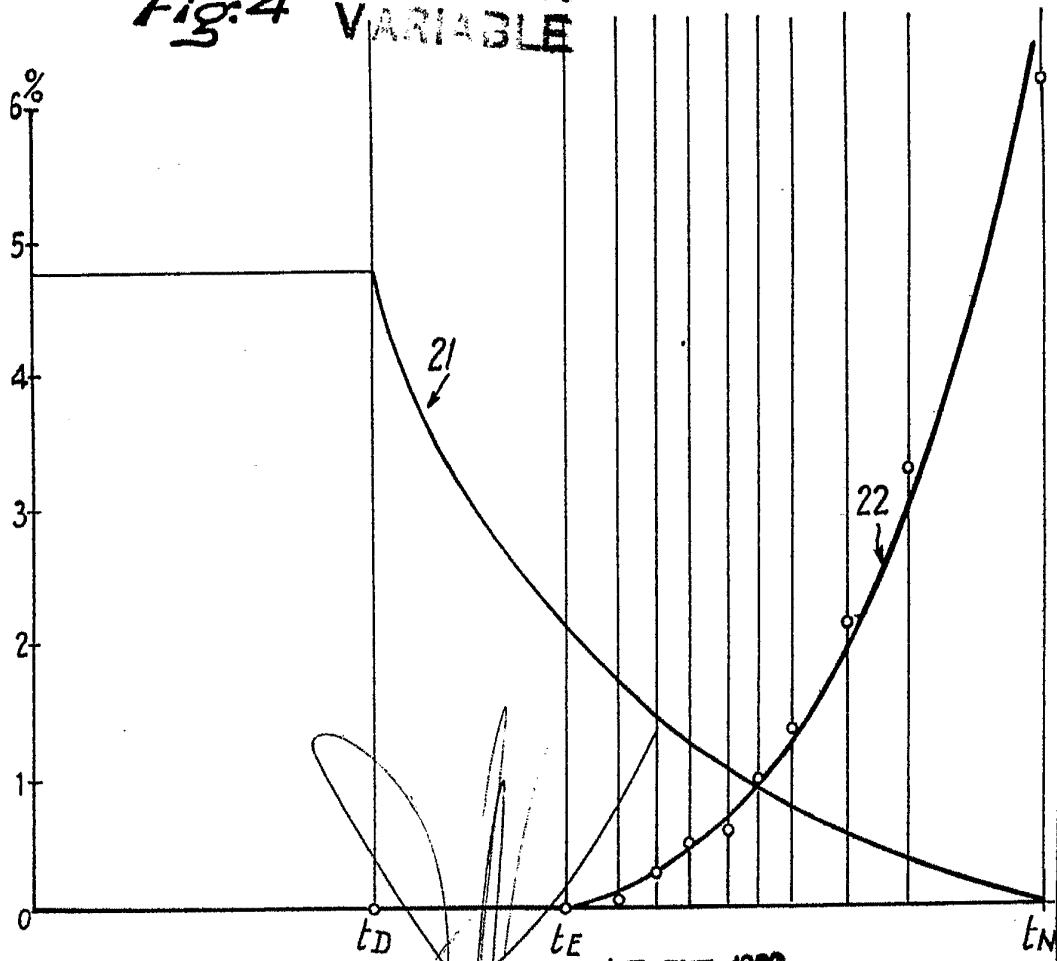


Fig:4 ESCALA VARIABLE



17 ENE. 1968

J. GOMEZ ACEBO Y MODEY

Fig. 5

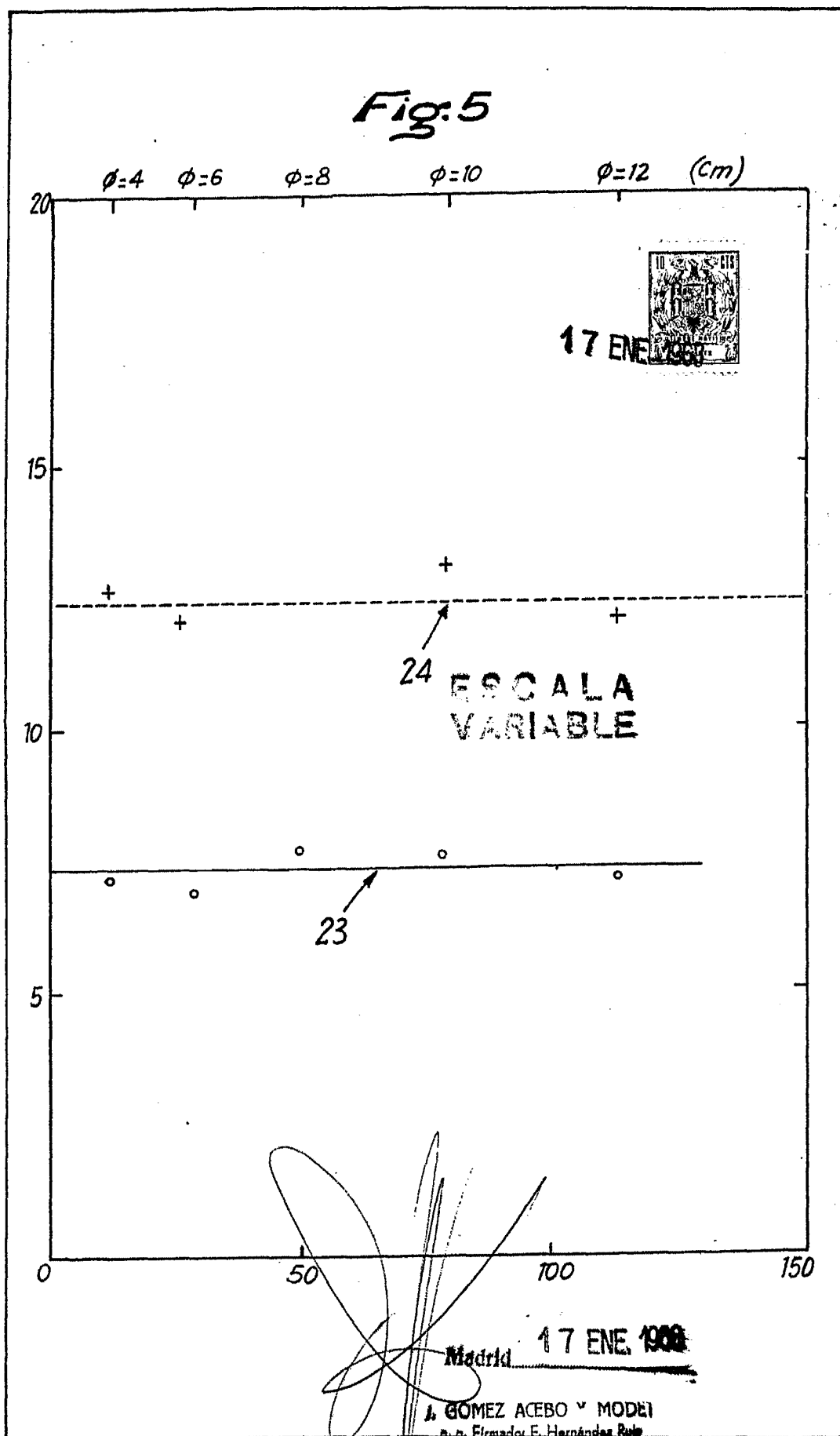
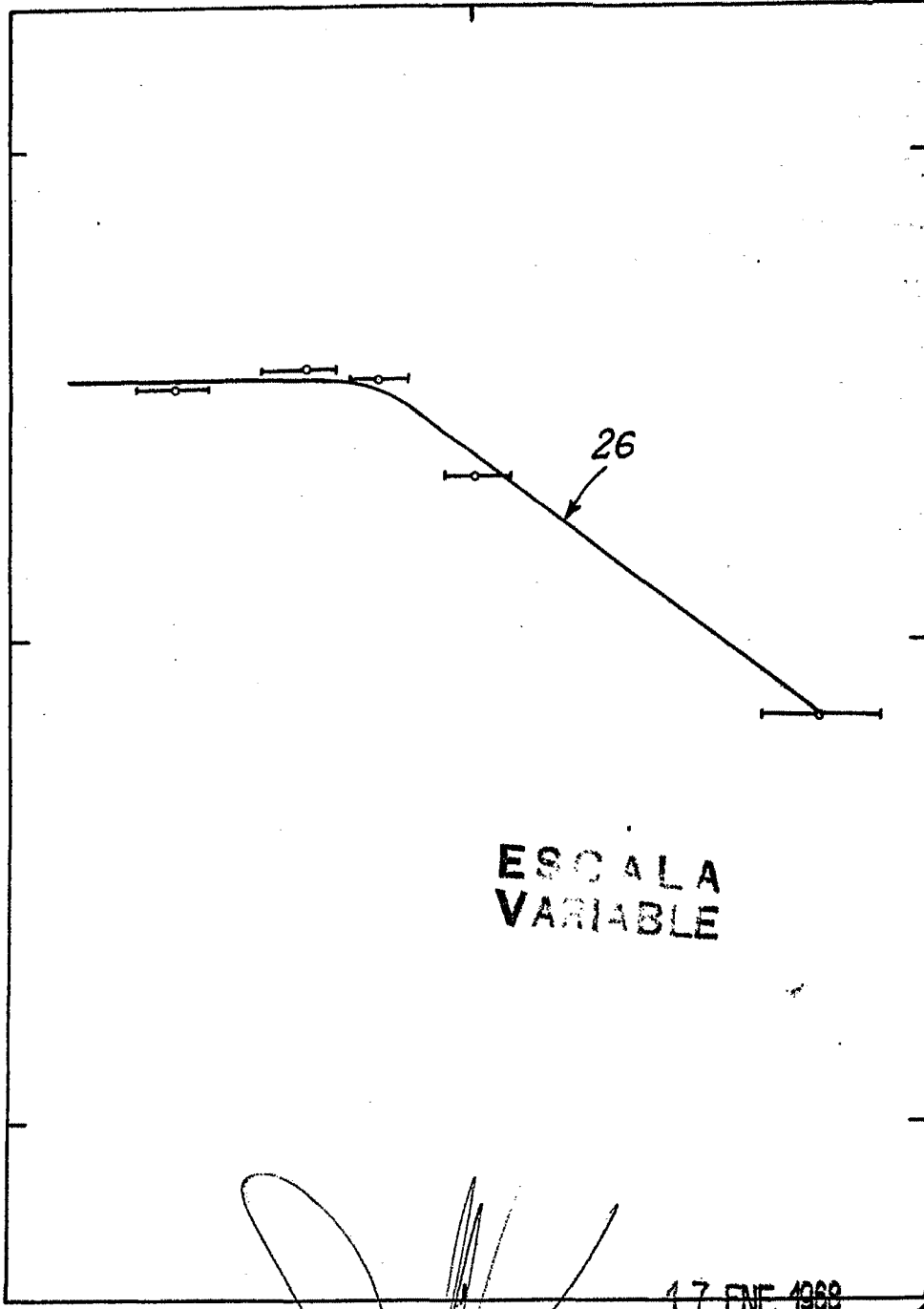


Fig. 6

7 ENE. 1968



ESCALA  
VARIABLE

17 ENE. 1968

Madrid

A. GOMEZ ACEBO Y MODEY  
p. p. Elmsados F. Hernández Ruiz