

SECCION TECNICA  
CLASIFICACION I. P. C.  
CLASE Col  
SUBCLASE G

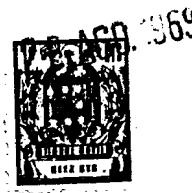
P.- 42.309

Nº 29688 IVa/12n  
Nº 30086 IVa/12n

369085

28 AGO. 1969

**Memoria descriptiva**



para solicitar PATENTE DE INVENCION por 20 años

a nombre de NUKEM NUKLEAR-CHEMIE UND-METALLURGIE G.m.b.H.

entidad / ~~de nacionalidad~~ alemana

con domicilio en Wolfgang, cerca de Hanau/Main, República  
Federal Alemana

por: "METODO DE PREPARAR DIOXIDO DE URANIO"  
(Clase Internacional COLg)

20.8.69



5  
10  
15  
20  
25  
30

La presente invención se refiere a un método para convertir hexafluoruro de uranio ( $UF_6$ ), o soluciones acuosas de nitrato de uranilo  $[UO_2(NO_3)_2]$ , en uranil-carbonato amónico  $(NH_4)_4 [UO_2(CO_3)_3]$  y conversión de este producto en un polvo de  $UO_2$  muy puro, que fluye libremente, y que, sin más tratamiento, es comprimido y sinterizado dando cuerpos cerámicos de alta calidad. En la actual generación de reactores nucleares moderados con agua ligera se usa principalmente como combustible nuclear  $UO_2$  sinterizado denso que contiene hasta 5% de U-235.

Actualmente, el material de partida es, casi sin excepción, hexafluoruro de uranio ( $UF_6$ ), el cual, tras conversión química a polvo de  $UO_2$ , es elaborado formando cuerpos de  $UO_2$  de alta densidad y calidad de superficie, por métodos cerámicos de óxido.

Los procedimientos químicos húmedos desarrollados hasta ahora para preparar polvos de  $UO_2$  a partir de  $UF_6$  y soluciones de nitrato de uranilo comprenden numerosas operaciones, con una capacidad de producción específica parcialmente limitada. Así, por ejemplo, se hace reaccionar  $UF_6$  con agua, dando una solución acuosa  $UO_2F_2 + 4HF$ , de la cual, por adición de amoníaco, se precipita el uranio como diuranato amónico  $(NH_4)_2 U_2O_7$  (DUA). En operaciones sucesivas, estos precipitados serán filtrados, secados, calcinados y reducidos, con lo que, durante la calcinación y/o reducción a temperaturas próximas a  $700^\circ C$ , el óxido es tratado con vapor de agua para eliminar las grandes cantidades de fluor (2 a 4%) que están inevitablemente contenidas en el pre-



5  
cipitado.

Este procedimiento de múltiples operaciones, con mano de obra grande, con pequeña capacidad de producción específica, origina un  $UO_2$  producto de calidad no satisfactoria, especialmente respecto a sus propiedades de compresión y sinterización, así como a su pureza.

10  
Este  $UO_2$  no puede ser comprimido directamente, sino que ha de ser molido, granulado con adición de algún tanto por ciento de un aglutinante orgánico, desmenuzado y tamizado, antes de la compresión. Antes de sinterizar los gránulos obtenidos por compresión a partir de este granulado, el aglutinante orgánico ha de ser eliminado en una operación independiente de eliminación de ceras. Para mejorar la mala aptitud para sinterización de este polvo, la molienda se ha de efectuar en un molino de chorro, si no es suficiente un tratamiento de oxidación/reducción del polvo.

15  
Esta descripción muestra claramente la complicada forma en que se ha preparado hasta ahora el polvo de  $UO_2$  de buenas propiedades de compresión y sinterización. La multitud de estas operaciones del procedimiento, cuyos parámetros apenas se pueden mantener constantes, origina perceptibles diferencias de calidad de las cargas independientes de  $UO_2$ , lo cual, de nuevo, es causa de considerables dificultades durante la compresión y sinterización.

20  
Ahora se ha desarrollado un procedimiento químico húmedo para convertir  $UF_6$  en  $UO_2$ , con  $(NH_4)_4UO_2$   
25  
 $(CO_3)_3$  como producto intermedio, que no presenta nin-



guna de estas dificultades.

Este procedimiento se lleva a cabo convirtiendo vapor de  $UF_6$  con  $NH_3$  gaseoso,  $CO_2$  y agua, o con una solución acuosa de carbonato amónico, o con carbonato amónico sólido, con lo que precipita UCA.

Introduciendo continuamente estos componentes en una cantidad medida de agua, el contenido de uranio en la suspensión se puede aumentar hasta 250 g de uranio por litro, sin ningún aumento del componente uranio soluble más allá de 20 g de uranio por litro, con el resultado de que no se forman fluoruros dobles de amonio y uranilo. Por tanto, el producto precipitado solo contiene una cantidad muy pequeña de fluor. Para que los componentes puedan ser mezclados uniformemente y absorbidos completamente por el agua, ha resultado ser ventajoso circular por las boquillas de mezcla el agua contenida en un recipiente de reacción adecuado, e introducir los gases en estas boquillas de mezcla.

Aunque se puede usar una boquilla de mezcla para cada componente, también se puede introducir sin dificultad el vapor de  $UF_6$  y el  $CO_2$  gaseoso juntos, en una boquilla de mezcla común. El método de precipitación según la invención se muestra esquemáticamente en la fig. 1.

El uso de  $NH_3$  y  $CO_2$  gaseosos, en vez de solución de carbonato amónico o carbonato amónico sólido tiene ventajas tecnológicas. Por ejemplo, estos gases, en su mayor parte, no solo son más puros que la sal o la solución, lo que es factor de importancia decisiva en lo que se refiere al grado de pureza nuclear requerido,

20.8.69

20 AG



sino que también se miden con más facilidad al introducirlos en el recipiente de precipitación.

5 Los cristales se hacen más pequeños a medida que aumenta la velocidad de precipitación, y mayores al aumentar la temperatura de precipitación. La mayor  
tendencia que tiene el UCA a descomponerse a temperaturas de 60°C hacia arriba impone un límite superior de aproximadamente 70°C en la temperatura de precipitación. Variando tanto la velocidad de precipitación como la  
10 temperatura de precipitación, entre 45 y 65°C, se puede variar el tamaño de grano del producto precipitado, entre 10 y 200 micras, lo que satisface la mayoría de la variedad de requisitos para el dióxido de uranio (UO<sub>2</sub>) obtenido de él.

15 El mantenimiento de un intervalo de pH relativamente estrecho, de 7,8 a 8,6, tiene particular importancia en lo que se refiere a la calidad del precipitado y a la producción de un filtrado con poco uranio. Aunque el UCA es particularmente suelto y fácilmente  
20 filtrable a un valor del pH igual a 7,8, la suspensión, de todas maneras, tiene tendencia a formar espuma a la temperatura de precipitación preferida, de aproximadamente 60°C, lo que conduce a dificultades de operación. Además, el filtrado de tal precipitación contiene hasta  
25 200 mg de uranio por litro. La calidad del precipitado, realmente, no está afectada en el intervalo de pH de 8 a 8,3, que es mantenido muy fácilmente por el marcado efecto tampón de la suspensión. Sin embargo, al mismo tiempo, el contenido de uranio en el filtrado disminuye  
30 hasta menos de 100 mg de uranio por litro, lo que corres-



ponde a una pérdida menor del 0,05%, a una concentración de precipitación de 200 a 250 g de uranio por litro. Otra ventaja de trabajar en el intervalo alcalino es que no hay problemas de corrosión debidos a la presencia de iones fluor, con el resultado de que se pueden usar recipientes hechos de acero de alta calidad.

Una ventaja principal del procedimiento de precipitación según la invención es que la precipitación se puede continuar hasta concentraciones finales de alrededor de 250 g de uranio por litro, sin deterioro de la calidad del precipitado. Se forma una suspensión relativamente concentrada de cristales de UCA, los cuales, durante la recirculación de la suspensión, se fro-  
tan los unos contra los otros, quedando así redondeados, dando un  $UO_2$  que fluye con particular libertad. Esta alta concentración de precipitación permite reducir muy apreciablemente el consumo de productos químicos. Por ejemplo, a 200 g de uranio por litro, el exceso requerido de carbonato amónico formado todavía comprende solo la cuarta parte del requerido para la precipitación de UCA con carbonato amónico sólido a 100 g de uranio por litro, para obtener más de 200 mg de uranio por litro en el filtrado. Sin embargo, dado que la cantidad de filtrado, en las precipitaciones con 100 g de uranio por litro, es el doble de grande, la pérdida de uranio es el doble de grande.

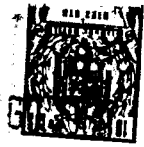
El procedimiento de precipitación según la invención se puede llevar a cabo también ventajosamente de forma continua. Tras haber alcanzado la concentración final requerida, de 200 a 250 g de uranio por litro, se



5 introduce en el recipiente de precipitación agua o so-  
luciones acuosas, mientras que la suspensión, de con-  
centración uniforme, se deja fluir continuamente por  
un rebosadero, hasta un recipiente de refrigeración  
que también está provisto de un rebosadero por el que  
10 pasa la suspensión enfriada (20°C) hasta un filtro. Du-  
rante el enfriamiento, el valor del pH de la suspen-  
sión se eleva preferiblemente por encima de 9. Dado  
que, en el tratamiento de uranio que está enriquecido  
en isótopo U-235, más ligero, los diámetros geométrica-  
mente admisibles se determinan dependiendo del nivel de  
enriquecimiento, se puede obtener una capacidad de pro-  
ducción realmente alta, por cada sistema de boquilla  
de mezcla, efectuando la precipitación continuamente,  
15 de esta forma.

Los productos de precipitación se filtran fá-  
cilmente, por ejemplo en un filtro de vacío o filtro de  
tambor. El precipitado puede ser lavado fácilmente,  
sometiéndole a pulverización de solución de carbonato  
20 amónico saturada a temperatura ambiente, y después de  
secar bajo vacío contiene aún solo de 2 a 6% de agua  
adherida. Un UCA tratado de esta forma tiene un conte-  
nido de fluor menor del 0,05%, y muestra las siguientes  
propiedades adicionales:

25 Superficie específica (BET)      menos de 0,2 m<sup>2</sup>/g  
Forma de los cristales              Cristales prismáticos con  
vértices y bordes redon-  
deados, cuya relación,  
longitud/diámetro está  
comprendida entre 1:1 y  
3:1  
30



Tamaño medio de grano	20 a 40 micras (tamizado)
Densidad aparente	1,0 a 1,5 g/cc
Densidad aparente tras vibración del polvo	1,2 a 1,7 g/cc
Contenido de uranio	40 a 45%

5

También se halló que, de forma muy similar, se precipita un uranilcarbonato amónico  $(NH_4)_4UO_2(CO_3)_3$  de las mismas propiedades químicas y físicas, a partir de soluciones acuosas de nitrato de uranilo  $UO_2(NO_3)_2$  que se origina en procedimientos de recuperación de desechos, o en el nuevo tratamiento de elementos de combustible nuclear irradiados.

10

La precipitación de UCA a partir de soluciones de nitrato de uranilo se efectúa discontinua o continuamente, usando  $NH_3$  y  $CO_2$  gaseosos, o solución de carbonato amónico, o carbonato amónico sólido, como agente de precipitación.

15

El método del procedimiento de precipitación, y el aparato usado, son principalmente los mismos que en el caso de la antes descrita conversión de  $UF_6$ .

20

Se ha hallado ahora que se puede efectuar la preparación de polvos de  $UO_2$ , que son adecuados para compresión directa sin aglutinantes, y que además presentan buena aptitud para sinterización y una pureza excepcional, introduciendo el UCA húmedo así precipitado, a una temperatura de 500 a 600°C, en un lecho fluidizado de  $UO_2$  y atmósfera de vapor de agua/hidrógeno.

25

El lecho fluidizado trabaja muy por encima de la velocidad de gas a la que se inicia la fluidización, pa-

30



asegurar una mezcla rápida y evitar la aglomeración de partículas y el apelmazamiento del lecho fluidizado.

Debido a la buena transmisión de calor en un lecho fluidizado, se hace posible el secado y descomposición de las partículas de UCA, así como la subsiguiente reducción a  $UO_2$ , bajo condiciones extremadamente suaves, lo que significa la conservación de la forma de la partícula y con desarrollo de una superficie interior relativamente grande. Así, la conversión del UCA origina propiedades deseables en el polvo, es decir, bajo contenido de fluor, fluidez libre, elevada superficie específica, etc. Estas propiedades pueden ser conservadas durante la siguiente pirohidrólisis del polvo de  $UO_2$  por aplicación de temperaturas relativamente bajas,  $650^{\circ}C$  como máximo. De acuerdo con la composición, casi estequiométrica, y la elevada superficie específica, el polvo de  $UO_2$  así producido es pirofórico en el aire atmosférico a temperatura ambiente. Por tanto, el  $UO_2$  es estabilizado en un lecho fluidizado a  $600^{\circ}C$ , por introducción de aire en el vapor de agua fluidizador, de manera que el  $UO_2$  experimente una oxidación limitada controlada hasta  $UO_{2,06}-UO_{2,16}$ . La preparación de  $UO_2$  a partir de UCA se puede efectuar discontinua o continuamente.

#### Ejemplo 1

Se introducen 500 litros de agua desionizada en un recipiente de precipitación geoméricamente seguro, y son circulados por boquillas de mezcla. Luego se introducen continuamente en una boquilla de mezcla 72 kg de



5

vapor de  $UF_6$  por hora y 44,2 kg de  $CO_2$  gaseoso por hora, mientras se introducen continuamente 43 kg de  $NH_3$  gaseoso por hora a la segunda boquilla de mezcla. Al cabo de 2,75 horas se ha completado una tanda de 196 kg de  $UF_6$ . Se interrumpe la introducción de  $UF_6$  mientras se continua la introducción de  $CO_2$  y  $NH_3$ , para obtener un filtrado con bajo contenido de uranio soluble (200 mg de uranio por litro), de manera que no se pierde en el filtrado más del 0,1% del uranio.

10

Finalmente, la suspensión es enfriada por debajo de  $20^{\circ}C$ , filtrada, y la torta de filtración es lavada 3 veces con 33 litros de una solución de carbonato amónico 1M.

15

Ejemplo 2

20

En este método de precipitación, el  $NH_3$  y  $CO_2$  gaseosos pueden ser reemplazados parcial o totalmente por soluciones de carbonato amónico o carbonato amónico sólido, si se asegura una introducción continua de estos agentes de precipitación. De esta forma, se usan de nuevo los agentes de precipitación que son recuperados del filtrado y gases secundarios de las operaciones de precipitación y reducción.

25

Ejemplo 3

30

Se ponen 150 litros de agua desionizada en un recipiente de precipitación geoméricamente seguro, y son circulados por boquillas de mezcla. Se introducen en la

20.8.69



suspensión, por separado, 44,2 kg de  $\text{CO}_2$  gaseoso por hora y 50 kg de  $\text{NH}_3$  gaseoso por hora, mediante dos boquillas de mezcla. Se introduce solución de nitrato de uranilo por una tercera boquilla de mezcla.

5

En el curso de 3 horas se añaden continuamente 133 kg de uranio como solución de nitrato de uranilo que contiene 400 g de uranio por litro y es 1M en ácido nítrico libre. Además, la suspensión es tratada como se describe en el ejemplo 1. El UCA precipitado de soluciones de nitrato de uranilo tiene las mismas propiedades que el UCA originado de  $\text{UF}_6$ .

10

#### Ejemplo 4

15

La conversión de tanto  $\text{UF}_6$  como nitrato de uranilo disuelto, a UCA, como se describe en los ejemplos 1 a 3, se efectúa de manera continua en un procedimiento de precipitación en dos operaciones. Así, los reaccionantes son introducidos continuamente en el primer recipiente de precipitación, mientras que la suspensión de UCA rebosa a un segundo recipiente de enfriamiento. En la fig. 2 se muestra un dibujo esquemático del aparato. El UCA así precipitado tiene las mismas propiedades que el producto precipitado discontinuamente.

20

25

#### Ejemplo 5

En un horno de lecho fluidizado calentado (la fig. 3 muestra un dibujo esquemático de este horno), con diámetro seguro, se introducen los gases de fluidización

30

28 AGO.



calientes, a 600°C, por ejemplo 30 m<sup>3</sup>N de vapor de agua por hora y 4,5 m<sup>3</sup>N de H<sub>2</sub> por hora, a través de una placa de fondo de metal sinterizado.

5 En el curso de 4 horas se introducen en el horno, a velocidad uniformemente en aumento, aproximadamente 330 kg de torta de filtración húmeda de UCA, correspondientes a 150 kg de UO<sub>2</sub>. El UCA húmedo, con menos de 10% de agua adherida, es cortado, según el método de la invención, desde un filtro de placa de vacío, que gira horizontalmente, mediante una cuchilla de cizalla que se desplaza lentamente desde el centro a la periferia. Luego se transfiere el UCA al horno de lecho fluidizado, por una manguera de succión. El UCA es introducido por porciones, cada 20 seg, por inyección neumática, al lecho fluidizado.

10 El tiempo entre dos inyecciones sucesivas se elige de manera que se asegure una descomposición total del UCA, con lo que se desprenden grandes cantidades de gases. Los gases que salen del lecho fluidizado pasan por filtros de metal sinterizado, para retener el polvo de UO<sub>2</sub> arrastrado, antes de entrar en un lavador.

15

20

Después del periodo de introducción, la temperatura del lecho fluidizado es mantenida durante 1 hora más a 600°C, para reducir el contenido de fluor en el UO<sub>2</sub> hasta menos de 50 ppm. Después de este periodo de piróhidrólisis, se corta la corriente de hidrógeno, para introducir aire en cantidad tal que la relación O:U aumente en media hora hasta valores prefijados entre 2,06 y 2,16. Tras la estabilidad del UO<sub>2</sub> mediante esta oxidación parcial, toda la tanda es descargada a un recipiente de enfriamiento. El polvo de UO<sub>2</sub> así obtenido presenta las

25

30



siguientes propiedades:

	Superficie específica	5 a 6 m <sup>2</sup> /g
	Densidad aparente	2,0 a 2,2 g/cc
5	Densidad aparente tras vibrar el polvo	2,5 a 2,8 g/cc
	Características de flujo (definidas por el flujo libre de polvo desde un embudo metálico con 4 mm de diámetro de salida y un ángulo de abertura de 60°)	3 a 8 g/seg
10	Relación O:U	2,06 a 2,16
	Contenido de agua	0,1 a 0,25%
	Contenido de uranio	87,40%
	F	menos de 50 ppm
	Fe	10 ppm
15	Cr	10 ppm
	Ni	6 ppm
	V	3 ppm
	W	2 ppm
	N	6 ppm
20	Distribución típica del tamaño de grano (análisis de sedimentación)	
	menos de 6 micras	20%
	6 a 10 micras	25%
	10 a 14 micras	25%
	14 a 18 micras	15%
25	más de 18 micras	15%

26A



Ejemplo 6

5 La preparación de  $UO_2$  a partir de UCA húmedo se efectúa en un procedimiento en dos operaciones, discontinuo, inyectando UCA, por porciones, en un lecho de  $UO_2$  fluidizado con vapor de agua, a  $300^{\circ}C$ , bajo las cuales con-  
10 diciones el UCA se descompone espontáneamente dando un polvo de  $UO_3$  muy reactivo. Este polvo de  $UO_3$  es introduci-  
do luego, por porciones, en un lecho fluidizado de  $UO_2$  con atmósfera de vapor de agua/hidrógeno a  $600^{\circ}C$ , donde es re-  
15 ducido rápidamente a  $UO_2$ , conservando sus propiedades favorables de polvo. El  $UO_2$  es tratado luego como se describe en el ejemplo 5. La capacidad media de producción de este  
procedimiento, en hornos de lecho fluidizado geométrica-  
mente seguros, de 300 mm de diámetro, es aproximadamente  
60 kg de  $UO_2$  por hora, mostrando las mismas propiedades  
características descritas en el ejemplo 5.

Ejemplo 7

20 La preparación continua de  $UO_2$  a partir de UCA se efectúa de tal manera que el UCA húmedo es recogido de un filtro continuo, en cantidad de 100 kg de UCA por hora, e inyectado en pequeñas porciones en un primer lecho fluidi-  
25 zado, donde es calcinado a  $300^{\circ}C$ , dando  $UO_3$  o reducido directamente con hidrógeno a  $600^{\circ}C$ ; dando  $UO_2$ .

30 En un segundo lecho fluidizado, el  $UO_3$  es reducido a una temperatura de  $600^{\circ}C$  con hidrógeno. El tratamiento del  $UO_2$  con vapor de agua en este lecho fluidizado elimina las últimas trazas de fluor.

20.8.69



En el tercer lecho fluidizado, el  $UO_2$  es estabilizado a  $600^{\circ}C$  por oxidación limitada controlada, con aire, hasta valores comprendidos entre 2,06 y 2,16. (La fig. 4 muestra un dibujo esquemático de los aparatos). El polvo de  $UO_2$  preparado según este procedimiento de producción continuo muestra las mismas propiedades características descritas en el ejemplo 5.

#### REIVINDICACIONES

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

1.- Método de preparar dióxido de uranio ( $UO_2$ ) de buen comportamiento en la compresión y sinterización, que comprende la reacción, en fase acuosa, de hexafluoruro de uranio ( $UF_6$ ) en forma de vapor, o una solución acuosa de nitrato de uranilo, con  $NH_3$  y  $CO_2$  gaseosos, o con una solución acuosa de carbonato amónico, o con carbonato amónico sólido, para precipitar uranilcarbonato amónico, y la reducción directa de este uranilcarbonato amónico  $(NH_4)_4 [UO_2(CO_3)_3]$ , en un procedimiento en horno, para obtener un polvo de dióxido de uranio puro.

2.- Método según la reivindicación 1, donde la precipitación de dicho uranilcarbonato amónico se efectúa a temperaturas de hasta  $70^{\circ}C$  y a un valor del pH comprendido entre 7,8 y 8,6.



3.- Método según las reivindicaciones 1 y 2, donde la precipitación se completa enfriando la suspensión hasta temperatura ambiente, durante lo cual el valor del pH se eleva hasta 9.

5 4.- Método según las reivindicaciones 1, 2 y 3, donde los componentes de reacción son introducidos en boquillas de mezcla a través de las cuales se recircula la solución o suspensión acuosa, lo que tiene como resultado un aumento de la capacidad de producción y velocidad de absorción de gas.

10

5.- Método según las reivindicaciones 1 a 4, donde de la precipitación se efectúa continuamente, con lo que la suspensión que contiene el UCA rebosa desde el recipiente de precipitación a un recipiente de enfriamiento.

15 6.- Método según la reivindicación 1, donde el precipitado (uranilcarbonato amónico) es introducido en un horno, preferiblemente un lecho fluidizado, que consiste en polvo de  $UO_2$  en una atmósfera de vapor de agua/hidrógeno.

20 7.- Método según las reivindicaciones 1 y 6, donde el precipitado es introducido en el lecho fluidizado en porciones, de manera que entre dos introducciones sucesivas se complete la descomposición espontánea del precipitado.

25 8.- Método según las reivindicaciones 1 y 6, donde de la cantidad de hidrógeno se elige de manera que el producto introducido sea reducido completamente a  $UO_2$ .

30 9.- Método según las reivindicaciones 1 y 6, donde de la reducción a  $UO_2$  tiene lugar a temperaturas de 500 a 600°C, a las cuales temperaturas la velocidad de reacción



es suficiente, sin dañar al producto.

5           10.- Método según las reivindicaciones 1 y 6, donde la reacción se efectúa en un lecho fluidizado, al cual se hace trabajar muy por encima de la velocidad a la que se inicia la fluidización, de manera que, respecto a la velocidad de reacción del producto introducido, se obtiene una mezcla suficientemente rápida, y al mismo tiempo se evitan la aglomeración de partículas de  $UO_2$  y el apelmazamiento del lecho fluidizado.

10           11.- Método según las reivindicaciones 1 y 6, donde las últimas trazas de fluor son eliminadas del  $UO_2$  por pirohidrólisis, según el método de la invención, a temperaturas relativamente bajas, próximas a  $600^{\circ}C$ .

15           12.- Método según las reivindicaciones 1 y 6, donde el  $UO_2$  es estabilizado por oxidación limitada controlada, introduciendo en el lecho fluidizado de  $UO_2$ /vapor de agua aire a una temperatura de  $600^{\circ}C$ , con lo que la composición del  $UO_2$  producto puede ser fijada a voluntad entre  $UO_{2,06}$  y  $UO_{2,16}$ .

20           13.- Método según las reivindicaciones 1 y 6 a 12, donde la conversión del precipitado se efectúa en dos operaciones separadas, de tal manera que el precipitado es descompuesto espontáneamente a  $300^{\circ}C$  en un lecho fluidizado constituido por  $UO_3$  y vapor de agua, dando  $UO_3$ , el cual producto es reducido directamente a  $UO_2$ , a una temperatura de  $600^{\circ}C$ , en un lecho fluidizado constituido por  $UO_2$  y una atmósfera de vapor de agua/hidrógeno.

30           14.- Método según las reivindicaciones 1 y 6 a 13, donde el método de la invención se lleva a cabo con-



tinuamente en tres hornos de lecho fluidizado en serie, con lo que en el primerhorno tiene lugar la descomposición y/o reducción del precipitado para dar  $UO_3$  o  $UO_2$  respectivamente, en el segundo horno la reducción y pirohidrólisis, y en el tercer horno la estabilización a temperaturas de 300 a 600°C.

15.- Método de preparar dióxido de uranio.

Tal y como se ha descrito en la Memoria que antecede, representado en el dibujo que se acompaña, y con los fines que se han especificado.

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

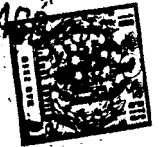
28 AGO. 1969

Madrid,

P.A.

Alberio de Ezaburo  
Por Poder.

28 APR



LEYENDAS EN LOS DIBUJOS

FIGURA 1

Representa un dibujo esquemático de un procedimiento discontinuo para la precipitación de uranilcarbonato amónico.

A = Bomba.

B = Boquillas mezcladoras.

C = Entrada de  $UF_6$  ó  $UO_2(NO_3)_2$  aquo +  $CO_2$ .

D = Entrada de  $NH_3$ .

F = Salida para filtrar

$H_2O+UCA$  = Agua + uranilcarbonato amónico.

FIGURA-2

Representa un dibujo esquemático de un procedimiento continuo para la precipitación de uranilcarbonato amónico.

A = Bomba.

B = Boquillas mezcladoras.

C = Entrada de  $UF_6$  ó  $UO_2(NO_3)_2$  aquo +  $CO_2$ .

D = Entrada de  $NH_3$

E = Recipiente de enfriamiento.

F = Salida para filtrar.

P = Recipiente de precipitación.

$(UCA)_s$  = Suspensión de uranilcarbonato amónico.

FIGURA - 3

Representa un dibujo esquemático de un horno de lecho fluidizado para la reducción de uranilcarbonato amónico a dióxido.



xido de uranio,  $UO_2$ .

M = Mezcla de vapor de agua/hidrógeno, aire.

S = Gas de escape.

UCA = Uranilcarbonato amónico.

$(UO_2)_p$  = Polvo de dióxido de uranio.

FIGURA - 4

Representa un dibujo esquemático de un procedimiento continuo en lecho fluidizado para la reducción de uranilcarbonato amónico a dióxido de uranio,  $UO_2$ .

M' = Mezcla de vapor de agua/hidrógeno.

M'' = Mezcla de vapor de agua/aire.

S = Gas de escape.

g = Conducción de gas de escape.

UCA = Uranilcarbonato amónico.

$(UO_2)_p$  = Polvo de dióxido de uranio.

1 = Etapa 1: comprende las operaciones de: descomposición, reducción y pirohidrólisis.

2 = Etapa 2: comprende la operación de: pirohidrólisis.

3 = Etapa 3: comprende la operación de: oxidación controlada.

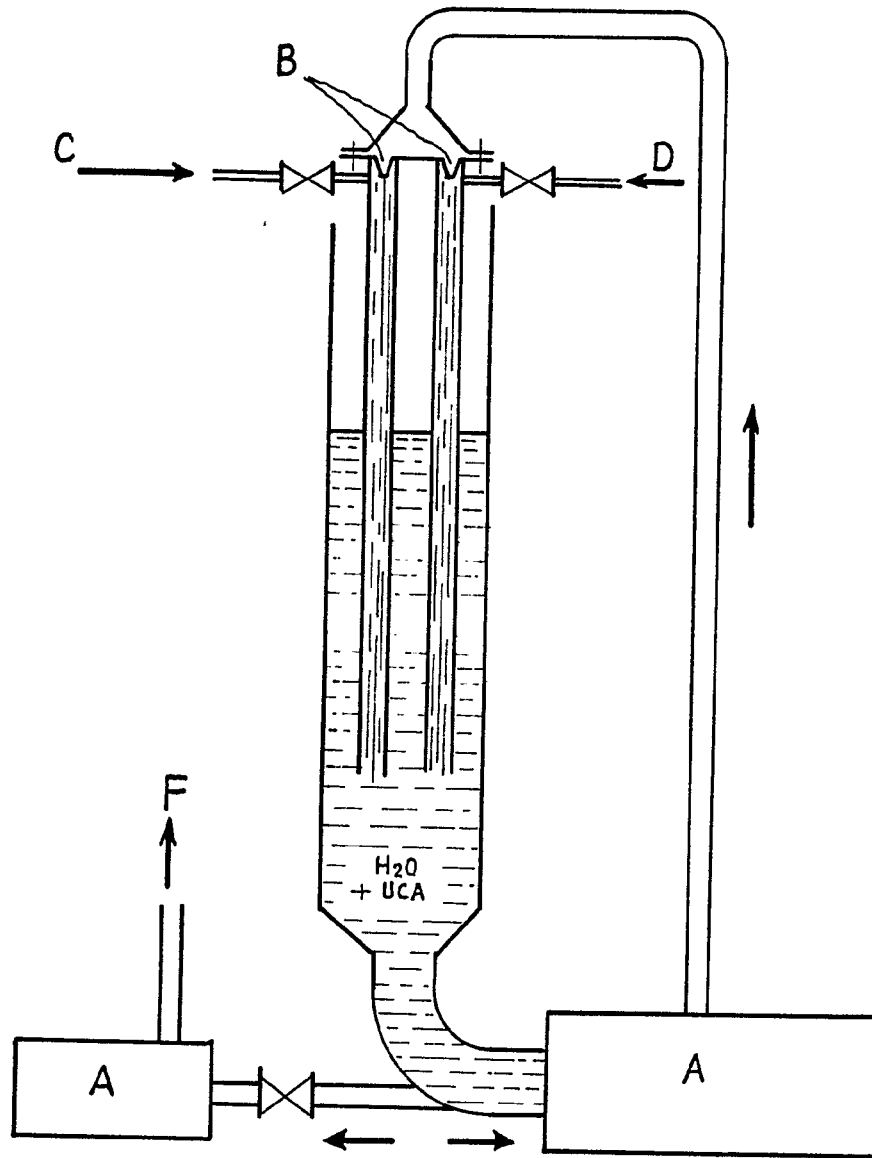


Fig: 1

ESCALA VARIABLE

*Arre*

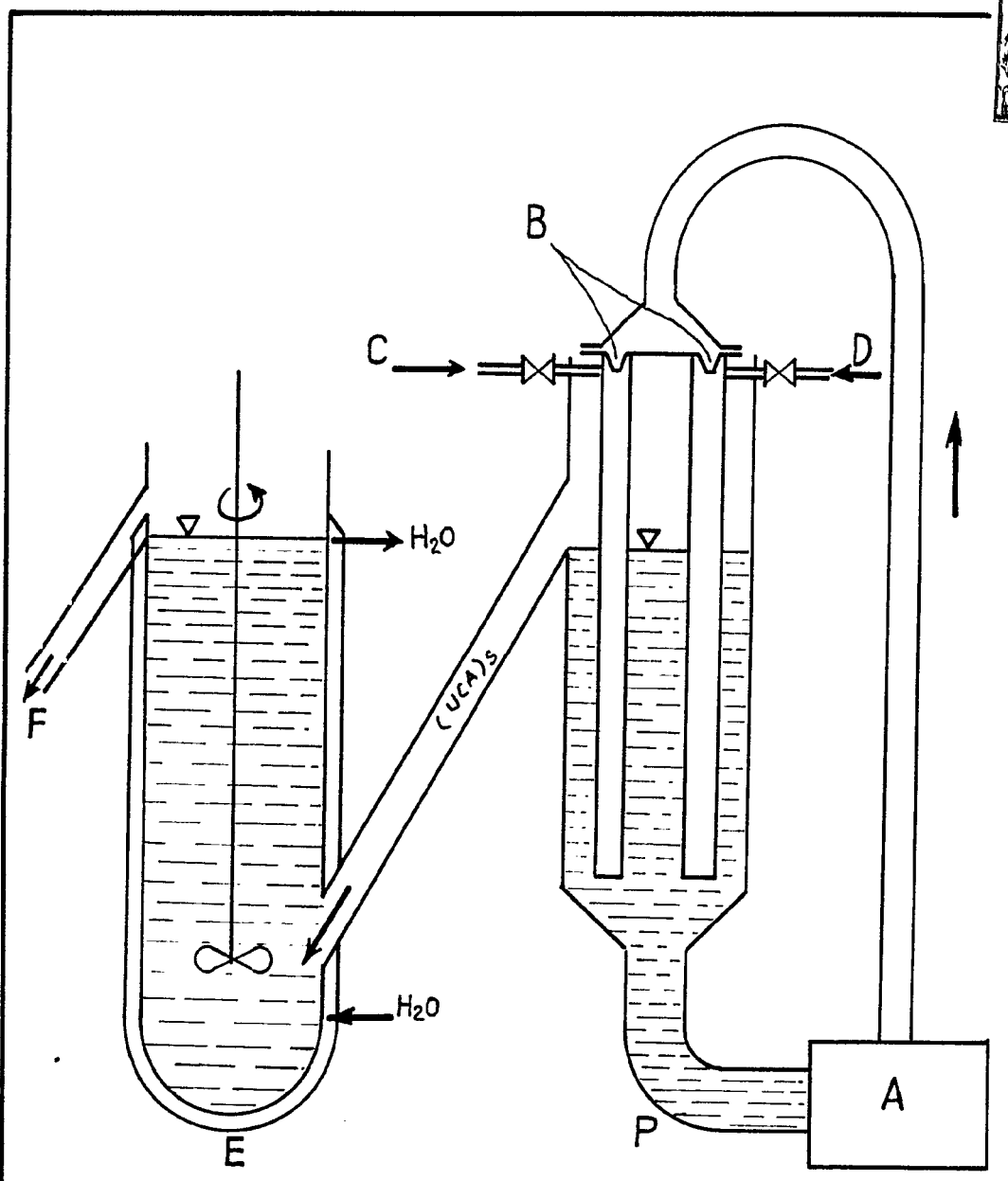


Fig: 2

ESCALA VARIABLE

*Carri*

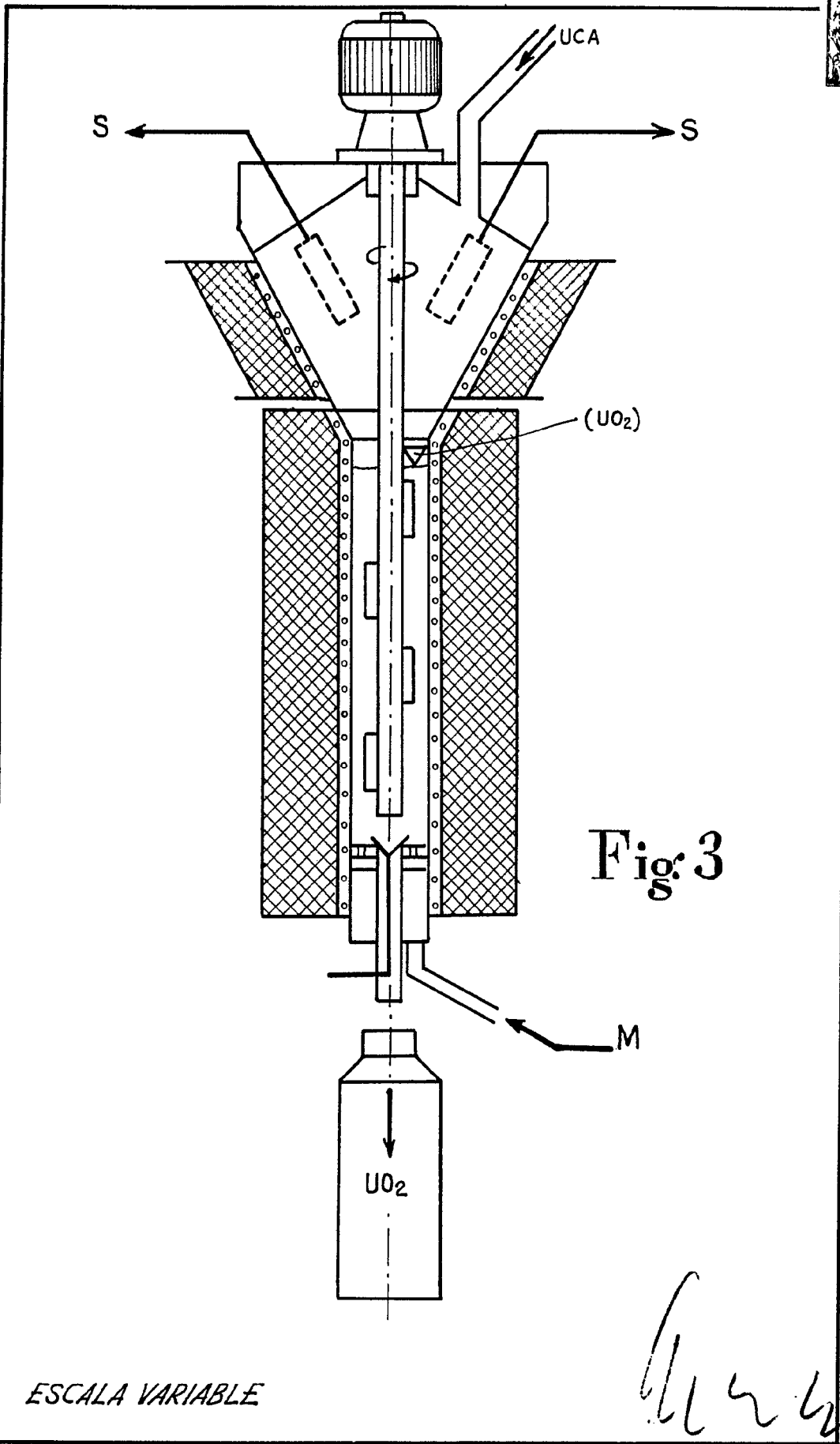


Fig. 3

ESCALA VARIABLE

*[Handwritten signature]*

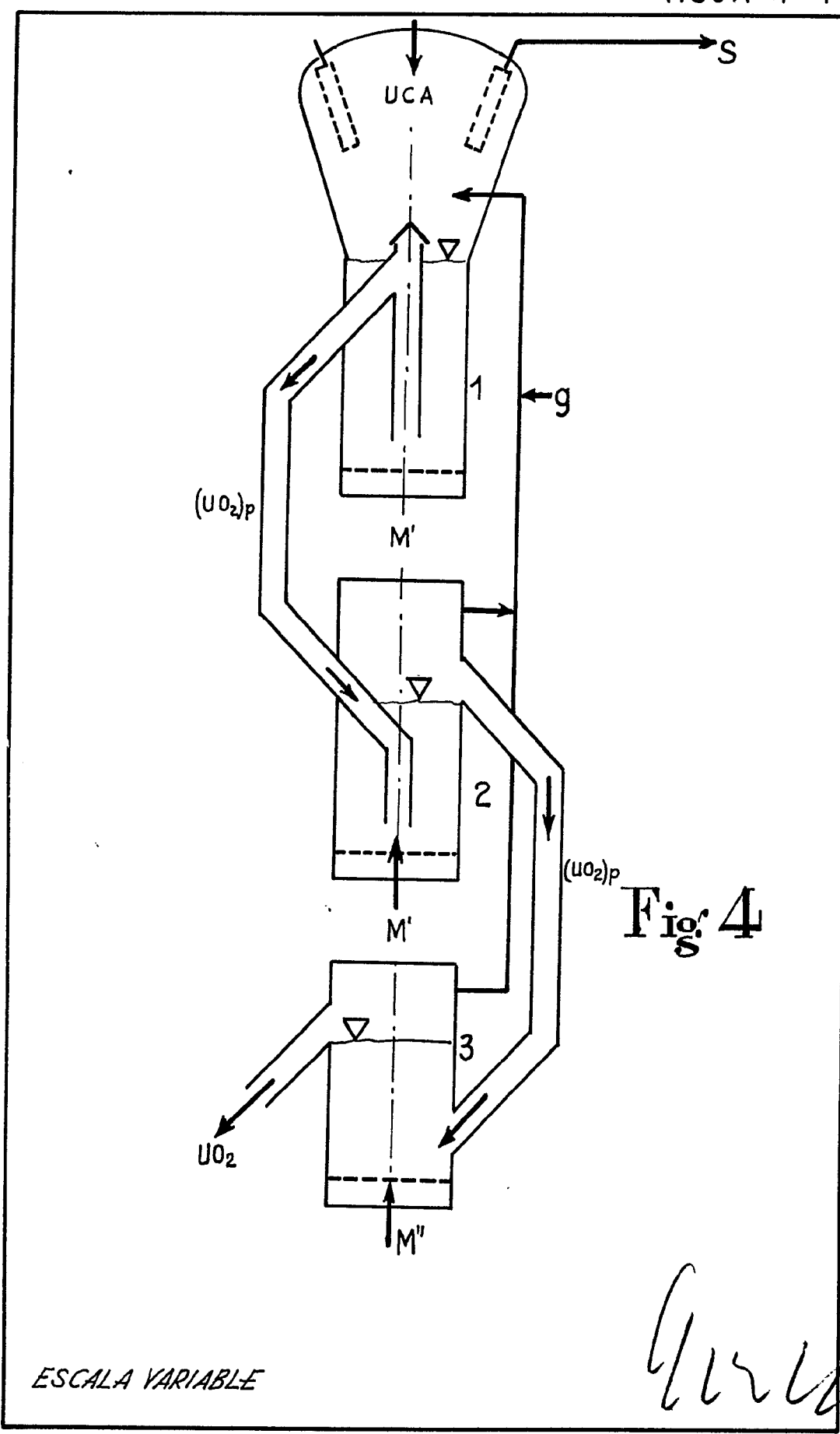


Fig. 4

ESCALA VARIABLE