



① ES	⑪ NUMERO	⑩ A1
	②1	
	②2 FECHA DE PRESENTACION	
		1-4-76

PATENTE DE INVENCION

P.- 62.560  
U.S. 570.877

F.C.

③0 PRIORIDADES:	③2 FECHA	③3 PAIS
③1 NUMERO		
570.877	23-4-75	EE.UU.

④7 FECHA DE PUBLICIDAD	⑤1 CLASIFICACION INTERNACIONAL	⑥2 PATENTE DE LA QUE ES DIVISIONARIA
	BOLD	

⑤4 TITULO DE LA INVENCION
"UN METODO DE SEPARAR LOS ISOTOPOS DE URANIO"

⑦1 SOLICITANTE (S)
EXXON RESEARCH AND ENGINEERING COMPANY

DOMICILIO DEL SOLICITANTE
Linden, Nueva Jersey, Estados Unidos de América

⑦2 INVENTOR (ES)
Richard K. Lyon y Andrew Kaldor

⑦3 TITULAR (ES)

⑦4 REPRESENTANTE
DON ALBERTO DE ELZABURU MARQUEZ

1           Esta solicitud se refiere a procedimientos de pre-  
paración de isótopos, en los que, en una primera etapa, se  
utiliza radiación infrarroja para excitar selectivamente un  
isótopo de una mezcla isotópica, y dicho isótopo excitado se  
5           convierte, en una segunda etapa, en una forma que puede ser  
recuperada desde dicha mezcla. La presente invención utili-  
za la reacción química de dicho isótopo selectivamente exci-  
tado, para convertirlo en una forma recuperable.

10           La presente invención se refiere a un procedimien-  
to para separar un material en dos o más partes, en cada una  
de las cuales la abundancia de los isótopos de un elemento  
dado difiere de la abundancia de los isótopos del mismo ma-  
terial en dicho material. Más en particular, la invención  
se refiere a un método para la excitación isotópicamente se-  
15           lectiva de  $UF_6$  en fase gaseosa, mediante absorción de foto-  
nes infrarrojos, seguida por la reacción selectiva de dicho  
 $UF_6$  excitado con cloro, bromo o yodo atómicos, para formar  
un producto que puede ser separado por medios conocidos en  
la técnica.

20           Con el fin de que la presente invención pueda ser  
claramente entendida, es útil revisar la técnica anterior  
referente a la separación fotoquímica de isótopos. La paten-  
te de Estados Unidos 2.713.025 y la patente británica  
1.237.474 son buenos ejemplos de procedimientos para la se-  
25           paración fotoquímica de los isótopos del mercurio. La prime-  
ra exigencia de una separación fotoquímica de isótopos es  
encontrar condiciones tales que los átomos o moléculas de  
un isótopo de un elemento dado absorban luz más intensamen-  
te de lo que lo hacen los átomos o moléculas de otro isóto-  
30           po de dicho elemento. El mercurio es un metal volátil y for

1 ma fácilmente un vapor de átomos. Dichos átomos absorben la  
luz ultravioleta a  $2537 \text{ \AA}$ . La línea de absorción del  $\text{Hg}^{202}$   
está desplazada en aproximadamente  $0,01 \text{ \AA}$  con respecto a la  
línea de absorción del  $\text{Hg}^{200}$ . Como las líneas de absorción  
5 son extremadamente estrechas, se puede excitar el  $\text{Hg}^{200}$  o  
el  $\text{Hg}^{202}$ , mediante el uso de una luz de una zona de longitud  
de onda críticamente estrecha.

La segunda exigencia de una separación fotoquímica  
de isótopos es que aquellos átomos o moléculas que son ex  
citados por la luz, experimenten alguna transformación que  
10 no experimenten los átomos o moléculas que no han sido exci  
tados o, por lo menos, que no la experimenten con tanta ra  
pidez. Un cuanto de luz ultravioleta de  $2537 \text{ \AA}$  comunica una  
excitación de  $112,7$  kilocalorías/mol al átomo de mercurio  
15 que lo absorbe. El número de átomos de mercurio que, a la  
temperatura ambiente, están térmicamente excitados hasta es  
ta energía, es infinitesimalmente pequeño, por lo que los  
átomos excitados por la luz no están diluidos por los áto  
mos excitados por medios térmicos. Los átomos de esta eleva  
da excitación experimentan fácilmente reacciones con el  $\text{H}_2\text{O}$   
20 (como se indica en la patente de Estados Unidos) o con  $\text{O}_2$ ,  
 $\text{HCl}$  o butadieno (como se indica en la patente británica), no  
ocurriendo dichas reacciones a la temperatura ambiente con  
el mercurio no excitado.

25 Sin embargo, el uranio es un metal altamente re  
fractario, que hierve sólo a temperaturas extremadamente al  
tas. Por lo tanto, el uso del procedimiento anteriormente  
descrito con átomos de uranio, en lugar de con mercurio, lle  
va consigo evidentes dificultades. La forma más volátil del  
30 uranio es el  $\text{UF}_6$ . El  $\text{U}^{235}\text{F}_6$  y el  $\text{U}^{238}\text{F}_6$  absorben ambos la

1 luz ultravioleta y lo hacen hasta exactamente el mismo gra  
do para todas las longitudes de onda del ultravioleta; por  
lo tanto, la excitación del  $UF_6$  con ultravioleta, no satis-  
face la primera exigencia de la separación fotoquímica de  
5 isótopos. Sin embargo, el  $UF_6$  absorberá también la luz in-  
frarroja en la región próxima a los  $626\text{ cm}^{-1}$  (la banda  $V_3$ )  
y  $189\text{ cm}^{-1}$  (la banda  $V_4$ ). Ambas bandas  $V_3$  y  $V_4$  del  $U^{235}F_6$   
están ligeramente desplazadas hacia la energía más alta,  
con respecto a las bandas  $V_3$  y  $V_4$  del  $U^{238}F_6$ , respectiva-  
10 mente, pero la magnitud de estos desplazamientos es peque-  
ña en comparación con la anchura de las bandas; en otras  
palabras, los espectros de absorción de infrarrojos del  
 $U^{238}F_6$  y del  $U^{235}F_6$  no coinciden exactamente, sino que se  
solapan a todas las longitudes de onda, de tal manera que  
15 si un isótopo absorbe luz, el otro la absorberá también has-  
ta un grado substancial. Por lo tanto, la excitación con  
infrarrojos del  $UF_6$  por absorción de un sólo fotón infrarro-  
jo, es un procedimiento de selectividad isotópica limitada.

20 La segunda exigencia para la separación de isóto-  
pos es, también, un asunto de cierta dificultad para el  
 $UF_6$ . Las moléculas de  $UF_6$  que son excitadas por la luz in-  
frarroja, no son diferentes de las moléculas que han sido  
excitadas térmicamente hasta el mismo nivel de energía. La  
mayor parte de las transformaciones que experimentarán las  
25 moléculas fotoexcitadas, las experimentarán también aque-  
llas moléculas que estén térmicamente excitadas hasta el  
mismo nivel de energía. Esta dilución de las moléculas fo-  
toexcitadas con las moléculas térmicamente excitadas, dismi-  
nuirá adicionalmente el factor de separación isotópica.

30

La presente invención es un procedimiento en tres

1 etapas, siendo la primera etapa que las moléculas de  $UF_6$   
que han de ser separadas isotópicamente, son irradiadas con  
un láser infrarrojo potente, durante un tiempo inferior a  
5  $10^{-3}$  segundos, en condiciones tales que, por lo menos el  
0,1 % de las moléculas de  $U^{235}F_6$  o  $U^{238}F_6$  que están siendo  
irradiadas, absorban una energía de mas de  $2.000\text{ cm}^{-1}$ . Es-  
to puede hacerse, utilizando el procedimiento de absorción  
de fotones múltiple, secuencial, es decir, si se irradia el  
10  $UF_6$  a una densidad de potencia mayor de  $10^4$  wattios por  $\text{cm}^2$   
por mm Hg de presión de  $UF_6$ , en presencia de un segundo  
gas, teniendo dicho segundo gas una presión parcial de por  
lo menos 5 veces la presión parcial del  $UF_6$ , entonces el  
 $UF_6$  puede ser excitado secuencialmente desde el estado vi-  
bracional fundamental hasta el primer estado vibracional  
15 excitado, hasta el segundo estado vibracional excitado,  
hasta el tercer estado vibracional excitado, hasta el cuar-  
to estado vibracional excitado, etc., componiéndose la se-  
lectividad isotópica de cada etapa de excitación, a medida  
que transcurre la excitación secuencial.

20 La segunda etapa de la presente invención es la  
reacción de dicho  $UF_6$  excitado, con un reactivo gaseoso,  
para producir un producto que se recupera en la tercera eta-  
pa por medios conocidos en la técnica. La proporción de di-  
cho reactivo gaseoso a  $UF_6$  debe ser de 0,1, por lo menos.  
25 El tiempo total en el cual el  $UF_6$  está en contacto con di-  
cho reaccionante gaseoso, tanto antes de la irradiación  
por el laser infrarrojo, como después de dicha irradiación,  
es inferior a  $10^{-3}$  segundos. Dicho reactivo gaseoso se es-  
coge del grupo consistente en cloro, bromo y yodo atómico.

30 Las razones para las exigencias anteriores y la

1 preferencia por el cloro, bromo, y yodo atómicos, son com-  
plicadas y están relacionadas con el problema de la dilu-  
ción térmica. Como se ha indicado anteriormente, las molé-  
culas de  $UF_6$  que son excitadas de una manera isotópicamen-  
5 te selectiva por el laser infrarrojo, serán diluidas con  
moléculas  $UF_6$  térmicamente excitadas hasta los mismos nive-  
les de energía. La enseñanza de la presente invención es  
que este efecto de dilución indeseable hay que reducirlo a  
un mínimo mediante una excitación rápida de una fracción  
10 importante (más del 0,1 %), tanto del  $U^{235}F_6$  como del  
 $U^{238}F_6$ . Una vez que se han formado las moléculas de  $UF_6$  fo-  
toexcitadas, se eliminarán éstas por reacción con el cloro,  
bromo o yodo atómicos, y serán eliminadas por procedimien-  
tos de desexcitación. Las moléculas de  $UF_6$  térmicamente ex-  
15 citadas serán también eliminadas por reacción y desexcita-  
ción, pero se formarán continuamente nuevas moléculas de  
 $UF_6$  térmicamente excitadas, a partir de moléculas de  $UF_6$  no  
excitadas. Por lo tanto, después de la irradiación con el  
laser infrarrojo, disminuirá continuamente la proporción  
20 de moléculas de  $UF_6$  fotoexcitadas a moléculas de  $UF_6$  térmi-  
camente excitadas, y aumentará continuamente el indeseable  
efecto de dilución. En la mayor parte de las condiciones,  
el tiempo de vida del  $UF_6$  fotoexcitado será de  $10^{-3}$  segun-  
dos o inferior, y la enseñanza de la presente invención es  
25 que tanto el tiempo de irradiación como el tiempo de contac-  
to sean menores de  $10^{-3}$  segundos, con el fin de reducir a  
un mínimo el efecto de dilución.

Como para la reacción entre el  $UF_6$  fotoexcitado  
y el reactivo gaseoso se dispone sólo de este tiempo muy li-  
30 mitado, es necesario utilizar dicho reactivo gaseoso en con

1 siderable exceso con relación al  $UF_6$  fotoexcitado, con el  
fin de conseguir una recuperación de este último aceptable  
mente eficaz. Por lo tanto, la presente invención enseña  
que la proporción de reactivo gaseoso a  $UF_6$  total debe ser  
5 de 0,1, por lo menos.

El uso de cloro, bromo o yodo atómicos, como reac-  
tivo con el que reacciona el  $UF_6$  fotoexcitado, es ventajo-  
so por tres razones. Primeramente, existe una superioridad  
general de los reactivos atómicos sobre los moleculares. Es  
10 bien sabido que cuando una molécula vibracionalmente exci-  
tada colisiona con una molécula no excitada, la excitación  
puede ser transferida, partiendo de la primera molécula no  
excitada y de la última molécula excitada. Este procedimien-  
to se llama transferencia V-V y puede ser un procedimiento  
15 extremadamente eficaz. Si se intenta hacer reaccionar el  
 $UF_6$  fotoexcitado con un reactivo molecular, la transferen-  
cia V-V podría dar como resultado una rápida pérdida del  
 $UF_6$  fotoexcitado. El uso de un reactivo atómico que no pue-  
de experimentar transferencia V-V, evita este peligro.

20 En segundo lugar, dentro del grupo de reactivos  
atómicos, el cloro, bromo y yodo atómicos tienen la ventaj-  
a de ser fácilmente generados in situ por fotólisis, pi-  
rolisis y otros medios conocidos en la técnica.

25 En tercer lugar, es bien sabido que el cloro,  
bromo y yodo atómicos experimentan una rápida recombinación  
para formar halógenos moleculares. Por lo tanto, son  
reactivos que se eliminan a si mismos, es decir que éstos  
pueden utilizarse en exceso sobre la cantidad que reaccio-  
na con el  $UF_6$  fotoexcitado, y el exceso desusado reacciona  
30 consigo mismo para formar halógeno molecular relativamente

1 inerte. Mediante un ajuste adecuado de las condiciones de  
reacción, se puede lograr, dentro del tiempo de contacto re-  
querido de  $10^{-3}$  segundos, la generación y eliminación subs-  
tancial del cloro, bromo o yodo atómicos.

5 De la descripción anterior se deduce que la pre-  
sente invención se distingue fácilmente de la técnica ante-  
rior. Por lo tanto, la patente de Estados Unidos 3.443.087  
enseña la separación de  $U^{235}F_6$  del  $U^{238}F_6$  mediante la exci-  
tación selectiva de uno de ellos con un láser infrarrojo, la  
10 ionización subsiguiente de dichas moléculas excitadas con  
luz ultravioleta, y la recuperación de los iones por medio  
de campos eléctricos y/o magnéticos o de reacciones quími-  
cas. En una revista titulada "Separación Fotoquímica de isó-  
topos, aplicada al uranio" (Unión Carbide Corporation Nu-  
15 clear Division, Oak Ridge Gaseous Diffusion Plant, 15 de  
Marzo de 1.972, K-L-3054, Revisión 1, página 29), Farrar y  
Smith exponen la patente anteriormente mencionada y comen-  
tan desfavorablemente sobre la posibilidad de practicar la  
propuesta segunda etapa de fotoionización. Como alternati-  
20 va, sugieren la fotodisociación.

La patente británica número 1.284.620, la paten-  
te alemana 1.959.767 y la patente alemana 2.150.232 enseñan  
el uso de la radiación infrarroja para excitar selectivamen-  
te moléculas que, seguidamente, experimentan una reacción  
25 química, la cual es experimentada más lentamente por las mo-  
léculas no excitadas. Solamente se da un ejemplo de tal reac-  
ción, que es la descomposición térmica del  $U(BH_4)_4$ .

En todas las referencias anteriores, se enseña ex-  
plicitamente que la energía proporcionada a las moléculas  
30 en la etapa de fotoexcitación, es la de un fotón infrarrojo,

1 la cual es menor para el  $UF_6$  que la excitación de  $2.000\text{ cm}^{-1}$   
por lo menos, que se enseña en la presente invención. Nin-  
guna de las referencias anteriores enseñan, ni muestran, ni  
sugieren la ventaja de excitar una fracción substancial,  
5 tanto del  $U^{235}F_6$  como del  $U^{238}F_6$ , reduciendo así la dilu-  
ción térmica, ni enseñan, ni muestran, ni sugieren la nece-  
sidad de un tiempo de irradiación muy corto y de un tiempo  
de contacto muy corto, ni enseñan, ni muestran, ni sugieren  
la necesidad de utilizar un exceso de reactivo gaseoso para  
10 recuperar eficazmente el  $UF_6$  fotoexcitado, ni enseñan, ni  
muestran, ni sugieren las ventajas de utilizar cloro, bromo  
o yodo atómicos, como dicho reactivo gaseoso.

El mineral de uranio de distribución isotópica na-  
tural, se convierte en vapor de  $UF_6$  por medios bien conoci-  
15 dos en la técnica. Dicho  $UF_6$  se pone en contacto con yodo  
atómicos o con una mezcla de gas inerte y yodo atómico, en  
una célula fotolítica y se irradia con un láser infrarrojo  
a una frecuencia infrarroja de  $625$  a  $645\text{ cm}^{-1}$  o de  $189$  a  
 $204\text{ cm}^{-1}$ , para una densidad de potencia de  $10^4$  watios por  
20  $\text{cm}^2$  por mm de Hg de presión de  $UF_6$ , por lo menos, para una  
densidad de energía de  $10^{-3}$  a  $10^{+3}$  julios por  $\text{cm}^2$ , durante  
un tiempo de irradiación de  $10^{-10}$  a  $5 \times 10^{-5}$  segundos, te-  
niendo dicho yodo atómico una presión parcial de  $0,1$  a  $100$   
veces la presión parcial del  $UF_6$ , teniendo dicho gas iner-  
25 te una presión parcial suficientemente grande para que la  
suma de la presión parcial del gas inerte y del yodo atómi-  
co sea de  $5$  a  $10.000$  veces la presión parcial del  $UF_6$ , efec-  
tuándose dicho contacto a una temperatura menor de  $600^\circ\text{K}$ ,  
siendo el tiempo durante el cual el  $UF_6$  está en contacto  
30 con el yodo atómico a dicha temperatura, inferior a  $10^{-3}$  se

1 gundos, y siendo la presión parcial del  $UF_6$  de  $10^{-4}$  a  
100 mm Hg. En las condiciones anteriores, la reacción del  
 $UF_6$  con el I tiene lugar con selectividad isotópica y el  
producto de reacción puede recuperarse por cualquiera de  
5 los medios conocidos en la técnica.

La célula fotolítica puede hacerse funcionar,  
bien sea como un reactor discontinuo, o como un reactor con  
tinuo. En el primer caso, la mezcla gaseosa del reactor se  
somete a impulsos de laser suficientes para producir el  
10 deseado grado de conversión del  $UF_6$  y, seguidamente, el  
 $UF_6$  no convertido, que está agotado de  $U^{235}$ , y el producto  
del isótopo selectivamente excitado y el reactivo gaseoso,  
que está enriquecido en  $U^{235}$ , se recuperan por cualquiera  
de los medios bien conocidos en la técnica. Si se desea  
15 un grado más alto de enriquecimiento, entonces se puede  
convertir el producto de reacción en  $UF_6$ , por medios bien  
conocidos en la técnica, y se repite el procedimiento de  
la presente invención. De igual modo, si el  $UF_6$  no descom  
puesto no está agotado hasta el nivel deseado, se puede con  
20 seguir un agotamiento adicional mediante la repetición del  
procedimiento de la presente invención. Las técnicas de gra  
duación de la separación isotópica para conseguir los nive  
les deseados de enriquecimiento en el producto y el agota  
miento de las colas o residuos, son bien conocidos. Una vez  
25 que se ha alcanzado el deseado nivel de enriquecimiento, el  
producto puede elaborarse en forma de barras de combustible  
para reactor nuclear, por los métodos bien conocidos en la  
técnica.

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 que se recogen en las reivindicaciones siguientes:

1ª.- Un método de separar los isótopos de uranio, aplicándose dicho método a moléculas gaseosas de  $UF_6$ , y comprendiendo dicho método someter dicho  $UF_6$  a radiación infrarroja, a una longitud de onda o a un grupo de longitudes de onda, previamente determinadas, en condiciones tales que por lo menos el 0,1%, tanto de las moléculas de  $U^{235}F_6$  como de las moléculas de  $U^{238}F_6$ , absorban una energía superior a  $2.000\text{ cm}^{-1}$ , efectuándose dicha excitación en menos de  $10^{-3}$  segundos, hacer reaccionar dicho  $UF_6$  excitado, con un reactivo gaseoso elegido del grupo del cloro, bromo y yodo atómicos, estando presente dicho reactivo en una proporción de por lo menos 0,1 moles con relación al  $UF_6$ , y siendo el tiempo de contacto entre el  $UF_6$  y dicho reactivo, inferior a  $10^{-3}$  segundos, y separar el producto de reacción del  $UF_6$  que no ha reaccionado.

2ª.- El método de la reivindicación 1ª, en el que el reactivo gaseoso es cloro atómico.

3ª.- El método de la reivindicación 1ª, en el que el reactivo gaseoso es bromo atómico.

4ª.- El método de la reivindicación 1ª, en el que el reactivo gaseoso es yodo atómico.

1

5ª.- Un método de separar los isótopos de uranio.

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

5

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

Madrid, 03.SET.1976

P.A. **Alberto de Elizaburu**  
Por Poderes

10

15

20

25