

MINISTERIO DE INDUSTRIA  
REGISTRO DE LA PROPIEDAD INDUSTRIAL

20 SET. 1978



ESPAÑA

que se describe en la forma  
que figura en las presentes descripciones y dibujos.

ES

11

21

12

NUMERO

455.866

A 1

FECHA DE PRESENTACION

11 FEB. 1977

## PATENTE DE INVENCION

30 PRIORIDADES:		
31 NUMERO	32 FECHA	33 PAIS
76 03986	13 Febrero 1976	Francia
47 FECHA DE PUBLICIDAD	51 CLASIFICACION INTERNACIONAL	62 PATENTE DE LA QUE ES DIVISIONARIA
	B01D	- - -
64 TITULO DE LA INVENCION		
"Procedimiento químico de enriquecimiento de metales en uno de sus isótopos"		
71 SOLICITANTE (S)		
COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE		
DOMICILIO DEL SOLICITANTE		
29-33, rue de la Fédération, 75752 Paris Cédex 15, Francia		
72 INVENTOR (ES)		
Jacques Aubert, Maurice Carles y Roger Neige		
73 TITULAR (ES)		
74 REPRESENTANTE		
M. Curell Suñol		

DE/FZ - 0020-77-B - C.E.A.  
EX-FR-II

UNE A-4 MOD. 3108

UTILICESE COMO PRIMERA PAGINA DE LA MEMORIA

P A T E N T E     D E     I N V E N C I O N

por VEINTE años

solicitada en España a favor de COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE, de nacionalidad francesa, domiciliada en 29-33, rue de la Fédération, 75752 Paris Cédex 15, Francia, por "Procedimiento químico de enriquecimiento de metales en uno de sus isótopos", con prioridad de la solicitud francesa 76 03986 de fecha 13 Febrero 1976. - - - - -

MEMORIA DESCRIPTIVA

La presente invención se refiere al enriquecimiento químico del uranio en uno de sus isótopos por intercambios isotópicos en cascada entre dos fases, de las cuales una es acuosa, conteniendo las fases uranio a valencias diferentes. - - - - -

5.

Se conocen ya dichos procedimientos de intercambio. La patente GB 1.120.208 y la patente FR 1.600.437 describen unos procedimientos en los cuales la segunda fase está constituida por una resina intercambiadora de iones, estando el uranio presente a la valencia IV en forma de iones

10.

$U^{+4}$  y a la valencia VI bajo la forma  $UO_2^{++}$ . - - - - -

5. Se conoce también (patente FR 2.282.928) un procedimiento que permite llegar a unos coeficientes de enriquecimiento más elevados, utilizando el intercambio entre el uranio a la valencia IV y el uranio a la valencia III. En este caso, es indispensable no poner en contacto la fase que contiene U III con piezas conductoras de la electricidad y mantenerlo exento de impurezas oxidantes. - - - - -

10. Se sabe además que, para obtener un enriquecimiento suficiente en condiciones satisfactorias, es preciso utilizar un gran número de subcascadas que se unen entre sí para constituir una cascada. En caso de enriquecimiento por intercambio químico, cada subcascada comprende en particular varios aparatos de contacto colocados en serie donde se efectúa el intercambio entre una fase acuosa que contiene el uranio a una primera valencia (+ 3 por ejemplo) y la otra fase que contiene el uranio a la otra valencia (+4 por ejemplo), así como un circuito de reflujo oxidante, en el cual el uranio de valencia inferior, empobrecido en isótopo ligero, es oxidado a la valencia superior y un reflujo reductor, en el cual el uranio a la valencia superior, enriquecido en isótopo ligero, es reducido a la valencia inferior. - - - - -

25. Dos procedimientos han sido propuestos para reducir el uranio en fase acuosa de la valencia superior (VI ó

IV) a la valencia inferior (IV ó III). Se trata de la electrolisis directa de una solución acuosa ácida de una sal de uranio o de la reducción química por la amalgama de zinc que es a continuación regenerada por electrolisis. - - - -

5. En general la oxidación se efectúa por acción de un gas oxidante, desprendido en el curso de la electrolisis de una solución de cloruro, sobre una fase acuosa que contiene uranio a oxidar. - - - - -

10. En este caso, una fracción importante de la energía consumida en el curso del ciclo corresponde o bien a la reducción del uranio, o bien a la regeneración de la amalgama con desprendimiento correlativo de gas oxidante (cloro por ejemplo en caso de reducción de cloruro); la reacción de oxidación es exotérmica y produce un desprendimiento de calor pero éste no es recuperado. La patente FR 1.600.437 que se refiere esencialmente al intercambio sobre resina intercambiadora de iones en lecho fijo, menciona además la posibilidad de hacer circular las soluciones del elemento a tratar en los compartimientos anódico y catódico de una misma célula electrolítica. Pero esta patente no da ni indicación sobre la forma de operar, ni ejemplo de aplicación, estando solamente descrito el del intercambio U IV - U VI con oxidación de U IV en U VI por el oxígeno recogido en el compartimiento anódico del electrolizador. Ahora bien, el empleo de un electrolizador clásico, incluso con diafragma,

15.

20.

25.

para efectuar esta doble operación sobre el uranio está abo-  
cada al fracaso en el caso de la reducción de U IV en U III.

5. La presente invención preve en particular propor-  
cionar un procedimiento de enriquecimiento isotópico que  
utiliza el intercambio entre U III y U IV y una operación  
de óxido-reducción electrolítica sin desprendimiento gaseo-  
so, que permita disminuir muy sensiblemente el consumo de  
energía. - - - - -

10. La invención preve también proporcionar un proce-  
dimiento de enriquecimiento isotópico del uranio utilizando  
la reducción con la ayuda de una amalgama, combinado con  
una operación única de electrolisis en el curso de la cual  
la amalgama es regenerada mientras que el uranio es oxida-  
do, siempre sin desprendimiento de gas. - - - - -

15. A este fin, según un aspecto de la invención, se  
provee un procedimiento químico de enriquecimiento del ura-  
nio en uno de sus isótopos, según el cual: - - - - -

20. - se pone en contacto una fase acuosa cargada de uranio a  
una primera valencia con otra fase cargada de uranio a  
una segunda valencia, siendo una de las valencias III y  
la otra IV, en unas condiciones que limitan las transfe-  
rencias de uranio de una fase a la otra, - - - - -

- se extrae el uranio de dicha otra fase después de contac-

to por medio de la fase acuosa previamente agotada, y se hace pasar el uranio en fase acuosa a la primera valencia, por un procedimiento que hace intervenir una electrolisis, antes del nuevo contacto con la otra fase en el dispositivo de intercambio isotópico; y correlativamente

5.

- se hace pasar, después de contacto, el uranio en fase acuosa a la segunda valencia, en el curso de la electrolisis que interviene cuando tiene lugar dicho paso de la segunda a la primera valencia y después, - - - - -

10. - se transfiere el uranio a la segunda valencia en la otra fase previamente agotada de uranio. - - - - -

En un primer modo de realización, el uranio en fase acuosa es reducido directamente en el curso de dicha electrolisis. - - - - -

15. En otro modo de realización, el uranio en fase acuosa es reducido por el zinc sobre una amalgama de zinc y esta amalgama es regenerada en el curso de dicha electrolisis. - - - - -

20. Según otro aspecto de la invención, se provee un procedimiento químico de enriquecimiento del uranio en uno de sus isótopos, según el cual: - - - - -

- se pone en contacto una fase acuosa cargada de uranio a

una primera valencia con otra fase cargada de uranio a una segunda valencia, en unas condiciones que limitan las transferencias de uranio de una fase a la otra, - - - - -

- 5. - se extrae el uranio de dicha otra fase después del contacto por medio de la fase acuosa previamente agotada, y - -
  - se hace pasar el uranio en fase acuosa a la primera valencia, por un procedimiento que hace intervenir una electrolisis, antes del nuevo contacto con la otra fase, en el dispositivo de intercambio isotópico; y correlativamente
  
- 10. - se hace pasar, después de contacto, el uranio en fase acuosa a la segunda valencia, en el curso de la electrolisis que interviene cuando tiene lugar el paso a la primera valencia y después, - - - - -
  
- 15. - se transfiere el uranio a la segunda valencia en la otra fase previamente agotada de uranio, - - - - -
  
- 20. - efectuándose el paso de la valencia inferior a la valencia superior por oxidación electrolítica directa del uranio en fase acuosa mientras que el paso de la valencia superior a la valencia inferior se efectúa por reducción por el zinc amalgamado que es a continuación regenerado por reducción electrolítica en el curso de la electrolisis de oxidación. - - - - -

Según un modo particularmente ventajoso de realización de la invención, el paso de la valencia inferior a la valencia superior se efectúa en el curso de una electrolisis sobre el ánodo constituido por plomo, plomo amalgamado, grafito, mercurio o tántalo, siendo el plomo sin embargo preferido, y la reducción se efectúa sobre un catolito que comprende la amalgama cuyo contenido de zinc es llevado de un primer valor a un segundo valor más elevado y una solución acuosa que contiene una sal de zinc. La amalgama es ventajosamente llevada a un contenido de zinc comprendido entre 1,1% y 1,8% y la solución acuosa a un contenido comprendido entre 4 y 5 N de  $Zn Cl_2$  a la entrada del electrolizador y 3 y 4 N a la salida. - - - - -

Según este procedimiento se evita reducir en la totalidad del cloruro de zinc en el electrolizador, lo que permite alcanzar un rendimiento Faraday  $\eta_F$  de electrolisis mucho más elevado. - - - - -

La invención se comprenderá mejor con la lectura de la descripción que sigue, de dispositivos que constituyen uno de los modos de realización dados a título de ejemplos. La descripción se refiere a los planos que la acompañan, en los cuales: - - - - -

La figura 1 es un esquema de principio de una subcascada de enriquecimiento isotópico por intercambio químico según la técnica anterior; - - - - -

la figura 2 es un esquema de una subcascada donde el uranio es reducido por electrolisis directa de la fase acuosa; - - - - -

5. la figura 3 es un esquema de una subcascada donde el uranio es reducido por intercambio bifase sobre la amalgama de zinc; - - - - -

la figura 4 muestra una variante de la subcascada de la figura 3; - - - - -

10. la figura 5 es un esquema de principio de un montaje posible del ánodo del electrolizador de la figura 2, 3 6 4. - - - - -

15. Se supondrá, a título de ejemplo, que la subcascada mostrada en la figura 1 es del tipo descrito en la patente FR 2.282.928 ya citada y está destinada al enriquecimiento isotópico del uranio en isótopo 235 por intercambio entre una fase acuosa ácida ventajosamente clorhídrica, que contiene el uranio a la valencia +3 y una fase orgánica que contiene el uranio a la valencia +4. La fase acuosa recorre un ciclo 8 y la fase orgánica un ciclo 9.

20. Una batería de intercambio isotópico 11 comprende  $p$  etapas idénticas constituidas cada una por un contactor, por ejemplo un mezclador-decantador. Los escalones están designados por  $1 \dots \underline{n-1}, \underline{n}, \underline{n+1}, \dots, p$ . En el contactor  $\underline{n}$ , la fase acuosa, que contiene el uranio a la valencia III, entra en 2, viniendo del contactor  $\underline{n+1}$ ; la misma es

25.

mezclada a la fase orgánica que contiene el uranio a la valencia IV que entra en III, viniendo del contactor  $n-1$ . Después de la mezcla de separación, las fases acuosa y orgánica salen respectivamente por 4 y 5. La fase acuosa que contiene el uranio a la valencia III, se empobrece en isótopo 235 y así a continuación hasta el contactor 1, mientras que la fase orgánica, que contiene el uranio a la valencia IV, se enriquece en isótopo 235 hasta el contacto  $p$ . Si  $B$  es el coeficiente de enriquecimiento en cada escalón, y si  $R_n$  es la relación de las riquezas isotópicas (isótopo 235/isótopo 238) del uranio, supuestas iguales a las entradas 2 y 3, la fase orgánica tiene la riqueza  $R_n \cdot B$  en isótopo 235 a la salida del contactor  $n$ . - - - - -

La fase orgánica que sale por 6 de la batería de intercambio isotópico 11, penetra en el extractor 21 de un "reflujo rico" 7 donde el uranio a la valencia IV enriquecido en isótopo 235, es extraído por la fase acuosa del circuito 8. El reflujo rico 7 comprende un aparato 23 que reduce el uranio a la valencia III. La fase acuosa es a continuación reintroducida en 10 en la batería de intercambio isotópico 11. - - - - -

La fase acuosa que salen en 12 de la batería pasa a un "reflujo pobre" 13 u "oxidante". El uranio a la valencia +3, empobrecido en isótopo 235, es oxidado a la valencia +4 en un dispositivo 40 y extraído por la fase orgánica del circuito 9 en el extractor 24. La fase orgánica es reintro-

ducida en 14 en la batería de intercambio isotópico 11. El uranio es por ejemplo oxidado por cloro que llega por el conducto 41 del dispositivo 23, constituido por un electrolizador. - - - - -

5. Los cálculos de una subcascada de enriquecimiento muestran que es interesante ajustar en cada escalón los caudales ascendentes (de 1 a p) y descendentes de manera que se eviten las nuevas mezclas isotópicas, es decir en llevar el uranio en 3 a la misma riqueza isotópica que el uranio que llega en 2. Esta condición no es económicamente realiza  
10. ble, también conviene aprovechar lo mejor posible este perfil ideal realizando unos reflujos parciales entre un número limitado de subcascadas llamadas "cuadradas". Esto es lo que está realizado en la figura 1, donde se introduce un  
15. caudal muy pequeño de uranio en 15, mientras que se extrae un caudal correspondiente de uranio enriquecido en 17 y de uranio empobrecido en 16. - - - - -

- La fase orgánica es generalmente un solvente, tal como el fosfato de triisobutilo (TIBP) en un diluyente, y  
20. la fase acuosa es una solución clorhídrica. La fase orgánica contiene  $UCl_4$  y la fase acuosa  $UCl_3$ . La fase orgánica enriquecida en isótopo 235 que sale de los contactores 11 cede todo su uranio a la fase acuosa (fase acuosa de bajo contenido del ácido clorhídrico) en el extractor 21. El uranio  
25. a la valencia +4 es reducido en el electrolizador 23 a uranio a la valencia +3, antes del paso por la batería 11. - -

Después del intercambio isotópico, la fase acuosa empobrecida en isótopo 235 es reoxidada en 40 y cede en 24 su uranio a la fase orgánica ascendente que viene del primer extractor 21. La fase acuosa agotada de uranio es desacidulada en 25 y después reciclada sobre el extractor 21. -

5.

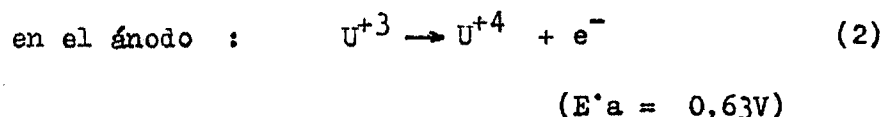
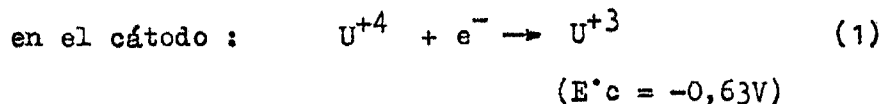
Como se ha indicado más arriba, las operaciones de oxidación y de reducción se acompañan de pérdidas importantes en forma térmica. Estas pérdidas están muy disminuidas en la disposición de la figura 2 donde, para mayor simplicidad, los componentes que corresponden a los de la figura 1 llevan los mismos números de referencia y no serán descritos de nuevo. - - - - -

10.

En el dispositivo de la figura 2 el aparato de reducción 23 y el aparato de oxidación 40 están constituidos por un solo y único electrolizador 42 de diafragma 43. La fase acuosa que contiene  $U^{+4}$  que sale del extractor 21 atraviesa el compartimiento catódico del electrolizador 42 mientras que la fase acuosa que contiene  $U^{+3}$  que sale de la batería 11 atraviesa el compartimiento anódico. La reducción y la oxidación se efectúan según las ecuaciones: - - - - -

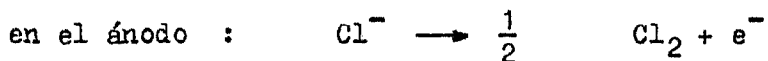
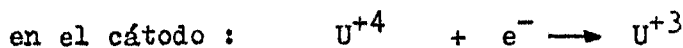
15.

20.



siendo E'a y E'c, potenciales de óxido-reducción, iguales, la tensión mínima de electrolisis, con corriente nula, es teóricamente igual a cero. - - - - -

5. La ventaja de esta solución sobre la de la figura 1 aparece inmediatamente: cuando se electroliza una solución clorhídrica de  $UCl_4$  con desprendimiento de cloro en el ánodo, se tiene: - - - - -



10. Los potenciales de óxido-reducción son E'c = -0,63V y E'a = +1,39V. - - - - -

La tensión mínima de electrolisis E' es por tanto 2,02V. - - - - -

15. La electrolisis óxido-reductora permite por tanto economizar una tensión de 2 voltios con relación a la electrolisis realizada según la técnica anterior. - - - - -

La oxidación del uranio se realiza por descarga de los iones  $U^{+3}$  en contacto con el ánodo. Este ánodo debe:

20. - presentar un potencial de óxido-reducción superior al del sistema  $U^{+3}/U^{+4}$ , es decir -0,63 voltios y - - - - -

- no provocar la oxidación de  $U^{+3}$  cuando no hay paso de corriente. - - - - -

El plomo, el plomo amalgamado, el grafito, el mercurio y el tántalo responden a estos criterios. - - - - -

5. El plomo parece dar los mejores resultados. La lista anterior no es limitativa. - - - - -

Es preciso evidentemente evitar cualquier mezcla a través del diafragma. La mejor solución para llegar a este resultado consiste en emplear un diafragma impermeable intercambiador de iones. Sin embargo se puede también utilizar un diafragma poroso compuesto que comprende tres paredes porosas paralelas que delimitan dos espacios distintos entre los compartimientos anódico y catódico; estos espacios están recorridos por unas soluciones ácidas de lavado que arrastran el uranio que difunde y permitiendo recuperar lo sin mezcla. - - - - -

Aunque diversos tipos de electrolizadores sean utilizables, parece particularmente ventajoso utilizar el descrito en la patente correspondiente a la solicitud FR n° 20. EN 76.03.017, provisto de una membrana intercambiadora de cationes del tipo "NAFION 425", fabricada por DUPONT DE NEMOURS. Se trata de un electrolizador vertical con cátodo constituido esencialmente por mercurio que fluye verticalmente por gravedad en forma de filetes continuos por unos

orificios practicados en por lo menos un canal. - - - - -

A título de ejemplo, se puede indicar que se llega a unos resultados satisfactorios, efectuando la electrolisis en las condiciones siguientes: - - - - -

5. Fase acuosa admitida en el compartimiento anódico:

Solución clorhídrica por lo menos 3 N para disminuir las pérdidas óhmicas. - - - - -

10.  $U^{+3}$  en forma de  $UCl_3$ : cualquier contenido que permita el intercambio con una fase orgánica cargada de U IV es en general aceptable; se utiliza en general una concentración 1 M. - - - - -

Fase acuosa admitida en el compartimiento catódico:

Solución acuosa de 0,7 a 2 N HCl y aproximadamente 1 M/l de  $UCl_4$ . - - - - -

15. Densidad de corriente : 0,25 A/cm<sup>2</sup> como mínimo. -

20. En el modo de realización ilustrado en la figura 3 (donde los componentes que corresponden a los de la figura 1 están designados por los mismos números de referencia) el uranio es reducido por intercambio bifase sobre la amalgama de zinc. - - - - -

A este fin el dispositivo comprende un contactor 27 interpuesto sobre el trayecto de la fase acuosa entre el extractor 21 y la batería 11. Este contactor 27 puede ser de un tipo cualquiera. Puede en particular estar constituido por una columna con guarnición de bolas de vidrio de algunos milímetros de diámetro sobre las cuales se hace chocrear la amalgama y que es recorrido por una circulación ascendente de fase acuosa. Es suficiente una altura de algunas decenas de centímetros para obtener una reducción casi completa. La amalgama tiene ventajosamente un contenido de zinc a la entrada comprendido entre 1,1 y 1,5%, resultando la amalgama pastosa más allá de 1,8%. El zinc amalgamado reduce  $U^{+4}$  de la fase acuosa en  $U^{+3}$  y la fase acuosa se carga al mismo tiempo de  $Zn^{++}$  de la fase acuosa. Esta fase acuosa es reciclada, después de intercambio isotópico, en el compartimiento anódico del electrolizador 42, cuyo compartimiento catódico recibe la amalgama empobrecida en zinc. La amalgama es regenerada en el compartimiento catódico donde se recarga de zinc a expensas de  $ZnCl_2$  de la fase acuosa. -

20. El electrolizador 42 puede también ser del tipo descrito en la patente que corresponde a la solicitud FR nº 76.03.017. Se puede también prever un electrolizador utilizado en las condiciones siguientes: - - - - -

25. La célula de electrolisis 23 presenta las características siguientes: - - - - -

- Superficie ánodo y cátodo : 80 cm<sup>2</sup>
- Distancia ánodo y cátodo : 43 mm
- Volumen catolito y anolito : 800 cm<sup>3</sup>
- Diafragma vidrio poroso
- 5. - Densidad de corriente : 25 A/dm<sup>2</sup>
- Solución catódica
  - Mg/Cl<sub>2</sub> 3 N
  - H Cl 3 N
  - Zn Cl<sub>2</sub> 4 N
  
- Solución anódica
  - UCl<sub>3</sub> M
  - H Cl 3 N
  - Zn Cl<sub>2</sub> N
- 10.

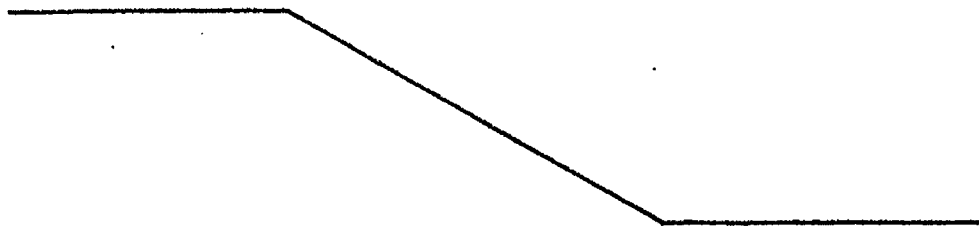
Temperatura : 20 - 30°C

Cátodo :

15. Película de mercurio que chorrea sobre una superficie de cuproníquel vertical. - - - - -

Se puede también utilizar un ánodo masivo de plomo, plomo amalgamado, grafito, mercurio o tántalo. - - - -

Los resultados experimentales son los siguientes:



Naturaleza del ánodo vertical	Densidad de corriente A/cm <sup>2</sup>	Tensión	Rendimiento de Faraday (zinc)	Observaciones
Plomo	0,125	1,85 v	0,93	Necesidad de agitar el ánodo con la ayuda de un dispositivo apropiado para obtener una estabilidad de la corriente de electrolisis
	0,15	2,2	0,82	
	0,20	2,7	0,88	
	0,24	3,2	0,87	
	0,25	3,4	0,97	
	0,25	3,4	0,90	
	0,31	3,95	0,87	
Plomo amalgamado	0,125	2,2	0,98	-idem-
	0,25	4,3	0,72	
Grafito	0,125	4,4	1	Tensión e intensidad estables
	0,25	6,1	0,88	
	0,34	6,6	0,87	
Cuproníquel recubierto con una película de mercurio (ánodo idéntico al cátodo)	0,10	1,65	0,96	Tensión e intensidad bastante inestables, ligero magma en la cuba
	0,25	3,8	0,88	
	0,31	7,8	1	
Tántalo				Tensión muy fuerte para una baja intensidad

El plomo da los mejores resultados. El rendimiento de Faraday, calculado a partir del zinc depositado, es del orden de 0,9 y las tensiones, de acuerdo con la teoría, son inferiores del orden de 2 voltios a las que se encuentran en una electrolisis con desprendimiento de cloro. En efecto, con una célula idéntica que funciona con el mismo catolito y un anolito constituido por H Cl 5 N, se obtiene: - - - - -

5.	4,6 - 5,3 V	a	0,125 A/cm <sup>2</sup>
	5,9 - 6,6 V	a	0,25 A/cm <sup>2</sup>
	7,15 - 8,1 V	a	0,38 A/cm <sup>2</sup>

La estabilidad de corriente de electrolisis se ob  
5. tiene por agitaci3n continua del 3nodo de plomo. La figura  
5 representa un dispositivo de agitaci3n de este tipo, que  
ser3 descrito m3s adelante. - - - - -

En el modo de realizaci3n mostrado en la figura  
3, la electrolisis de la amalgama debe conducirse pr3ctica-  
10. mente hasta reducci3n completa del zinc llevado en forma de  
cloruro al electrolizador 42. En consecuencia, el rendimien  
to Faraday en la parte corriente abajo del compartimiento  
cat3dico es bajo. - - - - -

La figura 4 muestra un dispositivo que constituye  
15. una variante de la figura 3, que permite mejorar a3n el ren  
dimiento Faraday de la electrolisis. - - - - -

Este resultado se alcanza previendo un bucle su-  
plementario que permite no reducir m3s que una fracci3n de  
Zn Cl<sub>2</sub> en el electrolizador 42, por ejemplo llevando de  
20. nuevo la normalidad en Zn Cl<sub>2</sub> de 4-5 N a la entrada a 3-4 N  
a la salida. - - - - -

El dispositivo comprende a este fin un destilador  
44 con dos escalones que remplaza el desacidulador 25. Este

destilador recibe a la entrada la solución acuosa agotada de uranio que ha atravesado el compartimiento catódico del electrolizador 42 y presenta: - - - - -

5. - un contenido en HCl óptimo para la extracción de  $U^{+4}$  por la fase orgánica (generalmente 3 N aproximadamente), - -

10. - un contenido en halogenuro alcalino (generalmente Li Cl) tal que el contenido en iones relargantes  $Cl^{-}$  en la fase acuosa es suficiente para provocar la transferencia completa del uranio en 24 en la fase orgánica (por ejemplo 3 N), - - - - -

- un contenido en  $Zn Cl_2$  de 4 a 5 N (cuya función como relargante) es generalmente negligible. - - - - -

El destilador 44 puede ser del tipo clásico; en curso de calentamiento se escapan sucesivamente: - - - - -

15. - por 45, ácido clorhídrico casi anhidro utilizado para ajustar la normalidad de la fase acuosa en el contactor 27 (donde debe ser bastante bajo para no atacar la amalgama pero bastante elevada para mantener  $U^{+3}$  en solución, generalmente 2,5 N aproximadamente); después en la batería 11 (4 N aproximadamente en general); finalmente en el extractor 24; - - - - -

20. - por 46 agua muy ligeramente ácida que es enviada al extractor 21; - - - - -

- por 47, una salmuera de Li Cl y de Zn Cl<sub>2</sub> que es devuelta a la fase acuosa corriente arriba del extractor 24. - - -

El electrolizador recibe así en su compartimiento catódico: - - - - -

5. - por una parte amalgama que circula en un bucle 48 (a trazos en la figura 4) y presenta un contenido de zinc metálico que aumenta al paso en el electrolizador 43 y disminuye al paso en el aparato de reducción 27; - - - - -

10. - por otra parte una fase acuosa ácida, que contiene 4 a 5 N de Zn Cl<sub>2</sub> de la que una fracción es reducida, dando lugar a zinc que pasa a la amalgama; esta presenta un contenido en zinc que pasa de 1,1 a 1,5% mientras que la normalidad en Zn Cl<sub>2</sub> de la fase acuosa disminuye correlativamente, por ejemplo en 1 N. - - - - -

15. Se ve que se conserva aquí en el electrolizador un contenido en Zn Cl<sub>2</sub> suficiente para tener un rendimiento Faraday  $\eta_p$  satisfactorio. Esta ventaja se obtiene por la adición de un bucle recorrido por Zn Cl<sub>2</sub>, indicado por una línea a trazo grueso en la figura 4. - - - - -

20. En contrapartida de esta ventaja, es preciso destacar que la tensión mínima teórica de la electrolisis no es nula como en el caso de la figura 2. En efecto se tiene: - - - - -

$$E^*a = -0,67 \text{ V (oxidación de } U^{+3} \text{ en } U^{+4})$$

$$E^*c = -1,43 \text{ V (reducción de } Zn^{2+})$$

de donde  $E^* = 0,76$  voltios, valor sin embargo muy inferior al que se tenía en el caso de la figura 1. - - - - -

5. Se ve en la figura 5 un ánodo masivo 29 de plomo.

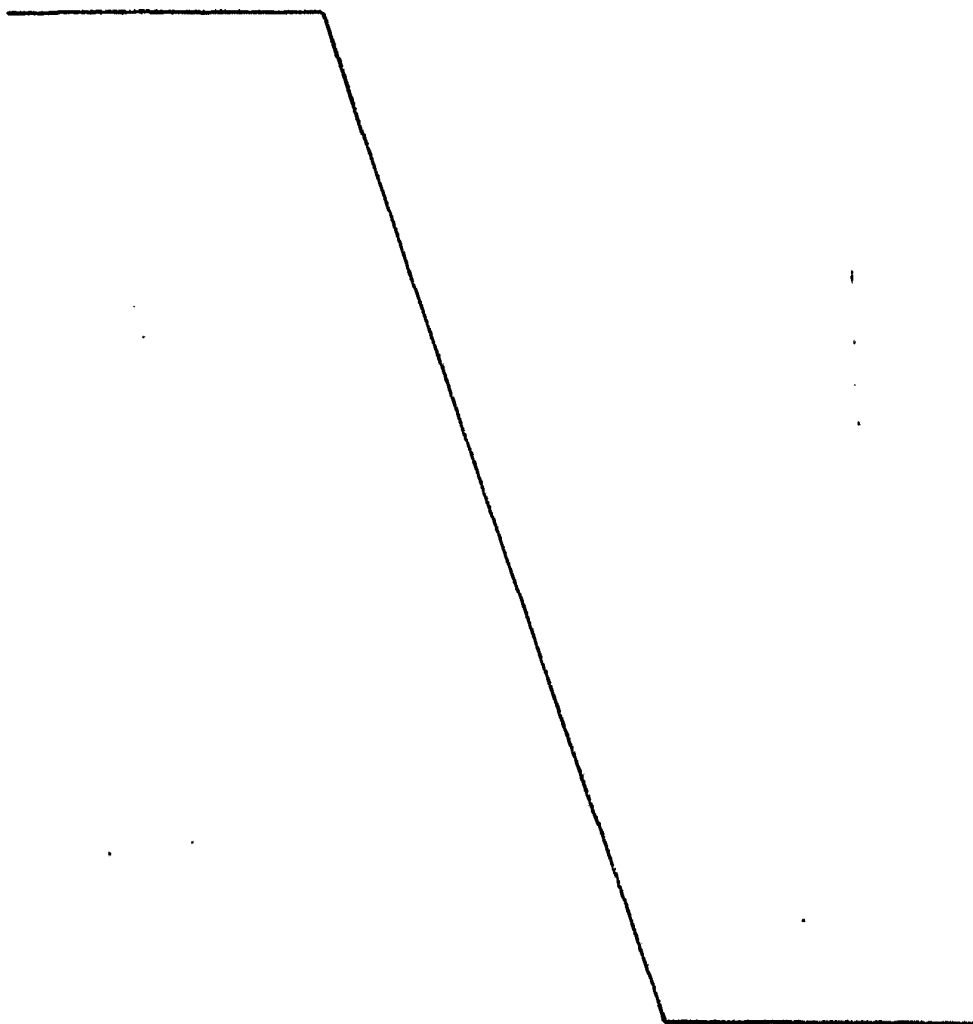
Una alimentación eléctrica está representada en 30. El ánodo 29 está sumergido en una cuba de electrolisis 31 y descansa sobre un soporte 33. El ánodo 29 comprende un resalte 32 que se apoya sobre el soporte 33. Por otra parte 10. el ánodo 29 está conectado por su parte superior por una biela 34 a una manivela cuyo movimiento es mandado por un motor eléctrico 37. - - - - -

15. Cuando el motor eléctrico 37 funciona, el ánodo 29 toma un movimiento alternativo que elimina la capa límite y asegura una buena renovación de los iones  $U^{+3}$  en contacto con el ánodo 29. - - - - -

20. Desde luego, el dispositivo de oxidorreducción descrito anteriormente puede ser utilizado en todos los procedimientos de separación isotópica del uranio basados en un intercambio isotópico por vía química. En particular no está limitado al intercambio isotópico sólido-líquido donde solamente la fase acuosa líquida sufre las etapas de reducción y de oxidación. - - - - -

Además, en el ejemplo descrito, la fase acuosa es tá en medio clorhídrico; la misma puede también utilizar un medio bromhídrico, yodhídrico, fluorhídrico bajo reserva de la utilización de materiales apropiados. - - - - -

5. A los efectos consiguientes se declaran de novedad y propiedad para España, sus territorios y plazas de soberanía, las reivindicaciones que siguen. - - - - -



REIVINDICACIONES

1.- Procedimiento químico de enriquecimiento de metales en uno de sus isótopos, particularmente de enriquecimiento de uranio en uno de sus isótopos, según el cual:

5. - se pone en contacto una fase acuosa cargada de uranio a una primera valencia con otra fase cargada de uranio a una segunda valencia, siendo una de las valencias III y la otra IV, en unas condiciones que limitan las transferencias de uranio de una fase a la otra, - - - - -
10. - se extrae el uranio de dicha otra fase después del contacto por medio de la fase acuosa previamente agotada, y se hace pasar el uranio en fase acuosa a la primera valencia, por un procedimiento que hace intervenir una electrolisis, antes del nuevo contacto con la otra fase en el dispositivo de intercambio isotópico; y correlativamente
15. - se hace pasar, después de contacto, el uranio en fase acuosa a la segunda valencia, en el curso de la electrolisis que interviene cuando tiene lugar dicho paso de la segunda a la primera valencia, y después, - - - - -
20. - se transfiere el uranio a la segunda valencia en la otra fase previamente agotada de uranio. - - - - -

2.- Procedimiento según la reivindicación 1, ca-



racterizado porque el uranio en fase acuosa es reducido directamente en el curso de dicha electrolisis. - - - - -

5. 3.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque el uranio en fase acuosa es reducido por el zinc sobre una amalgama de zinc y esta amalgama es regenerada en el curso de dicha electrolisis. - - - - -

10. 4.- Procedimiento según la reivindicación 3, caracterizado porque el paso de la valencia inferior a la valencia superior se efectúa en el curso de una electrolisis sobre un ánodo constituido por plomo, plomo amalgamado, grafito, mercurio o tántalo, prefiriéndose sin embargo el plomo, y la reducción se efectúa sobre un catolito que comprende la amalgama, cuyo contenido de zinc es llevado de un primer valor a un segundo valor más elevado, y una solución acuosa que contiene una sal de zinc. - - - - -

15. 5.- Procedimiento según la reivindicación 4, caracterizado porque la amalgama es llevada a un contenido de zinc comprendido entre 1,1% y 1,8% en peso. - - - - -

20. 6.- Procedimiento según la reivindicación 4 ó 5, caracterizado porque la solución acuosa es llevada, de un contenido comprendido entre 4 y 5 N de Zn Cl<sub>2</sub>, a un contenido comprendido entre 3 y 4 N en el curso de la electrolisis. -

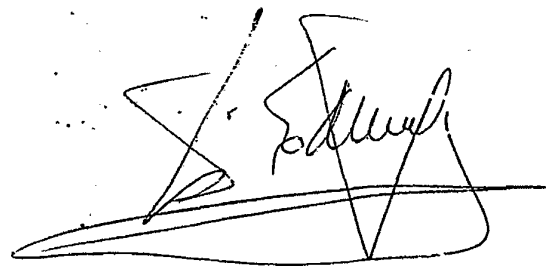
7.- "PROCEDIMIENTO QUIMICO DE ENRIQUECIMIENTO DE METALES EN UNO DE SUS ISOTOPOS". - - - - -

40

Todo ello conforme se describe y reivindica en la presente memoria que consta de veinticinco hojas foliadas y mecanografiadas por una sola de sus caras y de dos láminas de dibujos que la ilustran.

MADRID, 11 FEB. 1977

P.A. M. CURELL SUÑOL

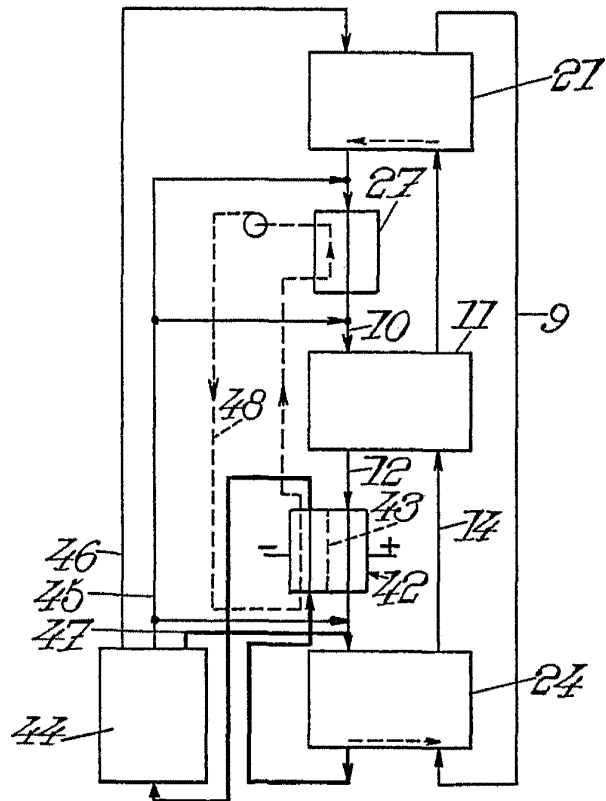
A handwritten signature in black ink, appearing to read 'P.A. M. Curell Suñol', written over a horizontal line.

mgj.

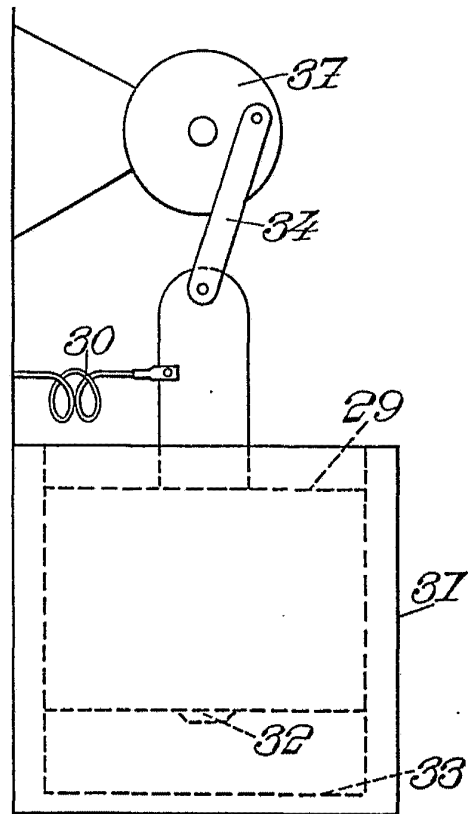
A handwritten mark in black ink, resembling the number '6' or a similar symbol.



*Fig. 4.*



*Fig. 5.*



RECIBIDO 11 FEB. 1977

FIGURELL SUÑOZ

*Moliner*