

MINISTÈRE DE L'INDUSTRIE

SERVICE

de la PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE

BREVET D'INVENTION

P.V. n° 39.747, Rhône

1.235.857

Classification internationale

C 22 c



Procédé de préparation d'alliages de thorium et d'uranium. (Invention : Oliver John Clyve RUNNALLS.)

Société dite : ATOMIC ENERGY OF CANADA LIMITED résidant au Canada.

Demandé le 16 septembre 1959, à 15 heures, à Lyon.

Délivré le 30 mai 1960.

(Demande de brevet déposée au Canada le 14 novembre 1958,
au nom de M. Oliver John Clyve RUNNALLS.)

La présente invention a trait à un procédé de préparation d'alliages de thorium et d'uranium.

L'invention vise à permettre d'établir un procédé pratique et économique en vue d'incorporer au thorium de l'uranium U 233 ou U 235, et particulièrement le premier, dans des conditions assurant un degré de récupération élevé et reproductible.

L'invention a pour objet un procédé de préparation d'alliages de thorium et d'uranium qui consiste à mélanger des particules de thorium métallique avec du tétrafluorure d'uranium, à chauffer le mélange dans un creuset en graphite pour amorcer la réaction entre le thorium et le tétrafluorure d'uranium, à poursuivre le chauffage jusqu'à une température d'au moins 1 600 °C de manière à déterminer une phase alliage et une phase laitier ou scorie, puis à refroidir les produits de la réaction et à séparer le laitier de l'alliage. On utilise le thorium métallique en une quantité au moins suffisante pour réduire le tétrafluorure d'uranium avec formation de tétrafluorure de thorium, ainsi que pour former l'alliage désiré.

Pour mettre en œuvre le procédé suivant l'invention l'on mélange le tétrafluorure UF_4 avec le thorium en particules métalliques et l'on chauffe le mélange de manière à déterminer la formation d'une phase alliage thorium-uranium et d'une phase fluorure de thorium ou laitier, ces deux phases se séparant sans difficulté l'une de l'autre. Bien que l'opération puisse être exécutée sous vide, il est préférable de mettre en œuvre une atmosphère inerte, telle que de l'argon à la pression atmosphérique, en vue d'éviter l'oxydation et d'éliminer le risque de distillation d'halogénure volatil au cours de la réaction. Cela assure un plus haut degré de récupération de l'alliage et les résultats obtenus sont facilement reproductibles. Dans le vide la réaction commence à environ 650 °C et dans un gaz inerte à la pression atmosphérique aux environs de 1000 °C. Par suite du caractère exothermique

de la réaction la température s'élève aux environs de 1 200-1 400 °C, mais l'on continue de chauffer jusqu'à une température d'au moins 1 600 °C en vue d'assurer une séparation nette entre l'alliage et le laitier. On utilise préférentiellement un excès de particules de thorium, l'importance de cet excès dépendant de la proportion désirée de ce métal dans l'alliage thorium-uranium à préparer.

Les exemples ci-après permettront de mieux comprendre l'invention, les caractéristiques qu'elle présente et les avantages qu'elle est susceptible de procurer :

1° On mélange intimement 80 grammes de tétrafluorure d'uranium UF_4 et 100 grammes de copeaux de thorium métallique, puis l'on place le mélange dans un creuset en graphite. On chauffe alors le creuset renfermant les réactifs dans un four à induction à tube de quartz sous une atmosphère d'argon. Au bout de trente minutes de chauffage la température atteint 1 000 °C; à ce point la réaction exothermique s'amorce entre les réactifs et élève rapidement la température à 1 200-1 400 °C. On continue à chauffer jusqu'à atteindre 1 650 °C. On refroidit ensuite le four.

Les produits se divisent en deux couches, savoir une couche inférieure d'alliage Th.-U d'un poids de 93 grammes et une couche supérieure de laitier ou scorie d'un poids de 72 grammes. Au refroidissement les deux couches se séparent nettement à leur surface de contact. Les résultats précédents représentent un taux de récupération de 90,6 % pour l'uranium et de 93 % pour le thorium dans la billette d'alliage. Le laitier ou scorie renferme 0,9 gramme d'uranium, le reste se retrouvant sous la forme d'une couche de carbure et sous celle de fluorure absorbé par les parois du creuset; ce reste peut aisément être récupéré par les procédés chimiques habituels par voie humide.

2° Pour réaliser un alliage plus pauvre en uranium, l'on mélange 180 grammes de thorium et

80 grammes de UF_4 . On comprime le mélange pour l'agglomérer sous forme de boulettes sous une pression de 560 kg/cm^2 . On chauffe ces boulettes comme dans l'exemple 1. La réaction commence à $1\,000^\circ\text{C}$ et le chauffage est poursuivi jusqu'à $1\,650^\circ\text{C}$. Au refroidissement, l'alliage et le laitier se séparent aisément et de façon nette.

La billette d'alliage renferme 32 % d'uranium, ce qui correspond à une récupération de 91,2 % de ce métal dans l'alliage. 1 % de l'uranium se retrouve dans le laitier et le reste dans la masse du creuset, comme précédemment. Le taux de récupération du thorium dans l'alliage est de 98 %.

La couche de laitier protège l'alliage de l'oxydation et de la réaction avec le creuset. Le procédé suivant l'invention est particulièrement utile pour la préparation d'alliages de thorium renfermant de l'U 233, lorsque le rendement total en uranium constitue un point important.

Il doit d'ailleurs être entendu que la description qui précède n'a été donnée qu'à titre d'exemple, et qu'elle ne limite nullement le domaine de l'invention dont on ne sortirait pas en remplaçant les détails d'exécution décrits par tous autres équivalents.

RÉSUMÉ

Procédé de préparation d'alliages de thorium et d'uranium consistant à mélanger des particules de thorium métalliques avec du tétrafluorure d'uranium en quantité suffisante pour réduire le tétrafluorure d'uranium avec formation de tétrafluorure de thorium ainsi que pour former l'alliage désiré, à chauffer le mélange dans un creuset en graphite pour amorcer la réaction entre le thorium et le tétrafluorure d'uranium, à poursuivre le chauffage jusqu'à une température d'au moins $1\,600^\circ\text{C}$ de manière à déterminer une phase alliage et une phase laitier ou scorie, puis à refroidir les produits de la réaction et à séparer le laitier de l'alliage, ledit procédé pouvant en outre présenter les autres caractéristiques ci-après, séparément ou en combinaison :

1° L'on chauffe le mélange dans une atmosphère de gaz inerte;

2° L'on chauffe le mélange à au moins $1\,650^\circ\text{C}$ dans une atmosphère d'argon.

Société dite :

ATOMIC ENERGY OF CANADA LIMITED

Par procuration :

Jh. MONNIER