

Enrichissement de l'Uranium

Robert BRUGÈRE

1. RAPPELS (URANIUM NATUREL U_{235} - U_{238})

L'uranium naturel est un métal très lourd (densité = 19,1) de couleur blanc argenté, température de fusion = 1 133 °C, température d'ébullition à 3 818 °C. Il est essentiellement constitué de deux isotopes, avec l' U_{235} dont le noyau contient 143 neutrons, contre 146 pour l' U_{238} . Sa radioactivité a été découverte en 1903 par Pierre et Marie Curie.

Le phénomène de fission a été découvert à Berlin en 1938 par O. Hahn, son jeune assistant F. Strassman et la physicienne autrichienne L. Meitner. L'isotope 235 est « fissile » alors que le 238 est « fertile ». L' U_{235} ne représente que 0,72% de l'uranium naturel, l' U_{238} plus de 99%, l'isotope U_{234} existe mais en quantité infime. Les niveaux de l' U_{235} « fissile » peuvent libérer beaucoup d'énergie en se brisant sous l'impact des neutrons.

L' U_{238} est « fertile » car ses noyaux peuvent se transformer en plutonium (Pu_{239}) qui est un élément « fissile ». L'uranium naturel n'a pas d'applications militaires (sauf des pointes d'obus) mais il peut permettre de réaliser des Réacteurs Electro - Nucléaires de puissance limitée (par ex. 500 MWe). Avant d'avoir la technicité puis les moyens d'enrichir l'uranium des réacteurs de ce type ont été conçus en France. C'est le cas des réacteurs G1, G2, G3 de Marcoule dits UNGG (Uranium Naturel Graphite Gaz).

Pour pouvoir réaliser des Réacteurs Electro – Nucléaires de forte puissance (par ex. 500 à 1500 MWe) il faut enrichir l'uranium en isotope 235. Afin d'alimenter nos classiques réacteurs à eau pressurisée (REP) on doit enrichir le « combustible » autour de 3 % d' U_{235} .

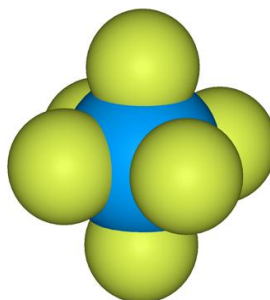
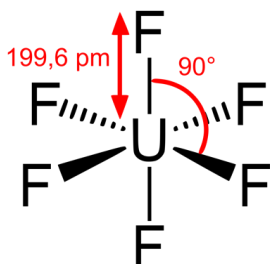
Pour parvenir à ces résultats il existe plusieurs procédés d'enrichissement (près d'une dizaine). Seuls, la diffusion gazeuse (DG) hier, puis l'ultra – centrifugation (UC) aujourd'hui ont connu un vrai développement industriel. Tous deux sont des procédés physiques qui reposent sur l'emploi d'hexafluorure d'uranium (UF_6).

2. L'HEXAFLUORURE D'URANIUM (UF_6)

2.1. OBJECTIF

Pour réaliser l'enrichissement de l'uranium naturel l' UF_6 joue un rôle primordial. C'est le produit de base utilisé dans les procédés DG et UC qui représentent 99 % des capacités d'enrichissement civil et militaire dans le monde.

L'uranium naturel est un métal lourd qui se dissout assez facilement dans les acides, notamment nitriques et fluorhydriques. Cela permet d'obtenir de l' UF_6 qui sous certaines conditions de température et de pression devient gazeux. Les deux composantes de ce gaz, l' $U_{235}F_6$ et l' $U_{238}F_6$ ont alors des masses légèrement différentes (moins de 1 %), 349 pour la composante $U_{235}F_6$ et 352 pour la composante $U_{238}F_6$.

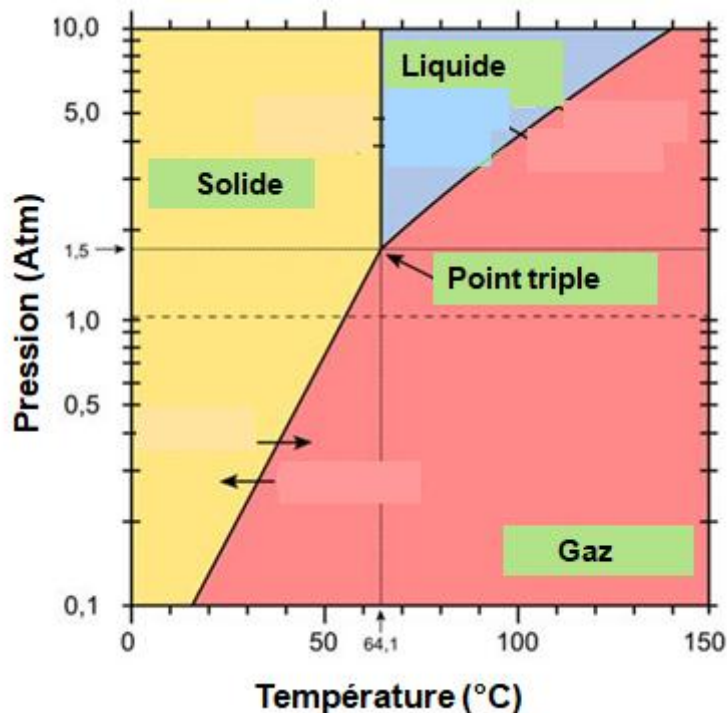


Des moyens physiques très « pointus » peuvent alors permettre la séparation de ces deux isotopes. La diffusion gazeuse (DG) et l'ultra – centrifugation (UC) jouent sur ce très faible écart de masse entre le 235 « léger » et le 238 « lourd ».

2.2. DIAGRAMME DE PHASE

Dans les conditions normales de température et de pression (20°C – 1 atm), l'UF₆ se présente sous la forme de cristaux gris. C'est un produit qui réagit violemment avec l'eau. Il émet des vapeurs d'acide fluorhydrique très toxiques.

Son diagramme de phases (solide, liquide, gazeux) se caractérise par un « point triple » à 64°C et 1,5 atm. Dans les procédés DG et UC on doit maintenir partout l'UF₆ à l'état gazeux. Le diagramme de phases montre que plus on travaille à haute pression (sortie HP de compresseur par ex.) plus on doit élever la température des circuits pour ne pas cristalliser. Pour 0,1 atm il suffit de 20°C, pour 1,5 atm il faut dépasser les 64°C.



2.3. ÉLABORATION DE L'UF6

Pour alimenter en UF₆ toute usine de DG ou UC il faut disposer d'une usine chimique spécialisée. Celle-ci part du tétrafluorure d'uranium UF₄ provenant de l'usine Comurhex – Narbonne d'Orano.

A Pierrelatte, Comurhex1 a d'abord alimenté « les usines militaires ». Ensuite, les centaines de tonnes/an à traiter pour les usines « civiles » GB1 (DG) puis GB2 (UC) aujourd'hui, sont générées par Comurhex2.

2.4. ÉLIMINATION DU FLUOR

Le fluor joue un simple rôle de vecteur. Il permet d'obtenir l'UF₆ nécessaire aux opérations d'enrichissement. Lorsque le taux d'U₂₃₅ est atteint ce fluor doit être séparé de l'U enrichi. Une unité de récupération – élaboration (URE) joue ce rôle.

3. L'UNITÉ DE TRAVAIL DE SÉPARATION ISOTOPIQUE (UTS)

Pour toute installation d'enrichissement d'Uranium, les notions d'UTS et d'UTS/an sont essentielles. Une usine de séparation isotopique joue un rôle de raffinerie. Partant d'une matière brute on extrait le produit fini et on rejette la partie « pauvre ».

La capacité de production d'une raffinerie est définie par les milliers de tonnes/an de carburant obtenus. Pour une usine d'enrichissement de l'uranium, cette capacité s'exprime en nombre d'UTS/an. L'UTS est une unité complexe, introduite par P. Dirac en 1940.

Celle-ci tient compte de la teneur en U₂₃₅ de l'uranium introduit, du taux d'enrichissement en partie « riche » obtenu en sortie puis du taux de rejet prévu en partie « pauvre ». Pour une même production d'uranium « riche » en U₂₃₅, plus on « épuise » la matière première introduite en obtenant un taux de rejet très bas en 235, mieux on économise la matière mais plus il faut fournir d'énergie, c'est à dire de travail de séparation.

On peut d'évaluer la masse m_{nat} d'uranium naturel à 0,71 % de U-235 en vue d'obtenir 1 kg de combustible pour un réacteur REP à 3,70% de U-235 en écrivant la conservation de la masse d'uranium 235 : $0,71 \times m_{\text{nat}} = 3,7 + X_{\text{rejet}} \times (m_{\text{nat}} - 1)$. Il faudra :

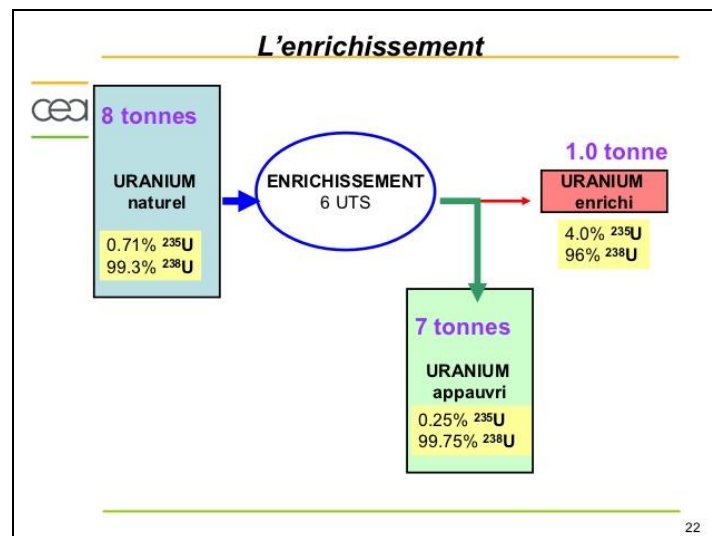
- 7,5 kg d'U naturel et fournir 5 UTS avec 0,25 % de taux de rejet,
- ou 6,85 kg d'U naturel et 6 UTS avec 0,20 % de rejet.

Naturellement, toutes choses égales par ailleurs, la capacité de production (UTS/an) d'une usine d'enrichissement est proportionnelle au tonnage annuel d'Uranium qui y est traité.

Exemples :

- à Pierrelatte les trois usines Eurodif GB1 (diffusion gazeuse) avaient une capacité de production de 10,80 millions d'UTS/an,
- aujourd'hui, les usines GB2 (Centrifugation) ont une capacité de production du même ordre.

Application : avec 10 millions d'UTS/an on peut alimenter en combustible environ 100 réacteurs REP de 1 000 MWe.



4. HISTORIQUE – ORGANISATION

Les premiers travaux d'enrichissement industriel ont été conduits (Projet Manhattan) dans les années 40 aux USA à Oak-Ridge afin de réaliser la 1^{ère} bombe atomique.

En France, Pierrelatte est le seul centre CEA consacré à l'enrichissement d'Uranium. Les quatre principaux procédés à finalité industrielle envisageable y ont été expérimentés ou développés.

4.1. EXPÉRIMENTATION

Réalisée à partir d'unités « Pilotes » de taille industrielle concernant la diffusion gazeuse (DG), la centrifugation (UC), la méthode chimique (Chemex) puis le procédé Laser.

Le centre CEA de Saclay a réalisé des études de base sur la DG, l'UC et le Laser. Celui de Grenoble a expérimenté les premiers pilotes « Chemex ».

4.2. DÉVELOPPEMENTS INDUSTRIELS

Dans les années 60 les usines CEA à buts militaires (force de dissuasion nucléaire) comportaient quatre usines (Basse, Moyenne, Haute et Très Haute) permettant d'obtenir un enrichissement notable en U_{235} . Ensuite dans les années 70-80 (Plan Messmer) réalisation des usines civiles Eurodif Georges Besse (GB1 procédé DG) puis aujourd'hui GB2 (procédé UC).

5. LES PRINCIPAUX PROCÉDÉS D'ENRICHISSEMENT

5.1. LA SÉPARATION ÉLECTROMAGNÉTIQUE

C'est le premier procédé connu, d'où un rôle historique. Dans un spectromètre de masse, les atomes de masse différente prennent des trajectoires différentes sous l'effet de champs électriques ou magnétiques.

Ce procédé a été d'abord utilisé par les USA (Oak Ridge 1941) pendant la guerre. Les séparateurs appelés « *calutrons* » consommaient beaucoup d'énergie pour produire très peu d'uranium enrichi. Ce procédé a été abandonné dès que la DG est devenue opérationnelle. Aujourd'hui les calutrons restent utilisés en recherche physique et médicale. Ils permettent la production de quelques grammes d'isotopes très purs.

5.2. LA MÉTHODE CHIMIQUE (CHEMEX) DITE « PROCÉDÉ FRANÇAIS »

Les premiers essais ont été réalisés au CEA de Grenoble. Un pilote industriel (PP 35) a été ensuite mis en service à Pierrelatte : l'installation ATC (Atelier de Traitements Chimiques). André Giraud (Ministre et ex Administrateur Général du CEA) a révélé ce procédé en mai 1977 lors d'une conférence de l'AIEA à Salzbourg. Les avantages attendus étaient les suivants :

- Bien adapté à la réalisation d'installations de faible ou moyenne taille (par ex. 400 000 UTS/an)
- Non proliférant car non « détournable » de son objectif civil prévu (enrichissement 3 %)

D'où un procédé exportable techniquement. Il s'agissait d'une méthode basée sur des échanges chimiques lents en milieu liquide. On a constaté qu'avec certains produits, de valences différentes, des réactions chimiques peuvent se faire un peu plus rapidement avec un isotope A qu'avec un autre B. Il en résulte alors un léger enrichissement en isotope A à chaque opération.

Malgré les avantages mentionnés ci-dessus et les nombreux essais, ce procédé n'a pas eu de suite :

- D'abord les résultats n'étaient pas suffisants. En quoi ? nombre, qualité, reproductibilité ?
- Ensuite, véhiculer beaucoup de produits chimiques liquides, utiliser du mercure à pomper en boucle dans des électrolyseurs verticaux, émettre du chlore à neutraliser à partir de synthèse HCL, était complexe et posait trop de problèmes.
- Ce procédé immobilisait d'importantes quantités (« hold – up ») de matière première dans les circuits.

Note : De plus comme la DG fonctionnait très bien, puis que l'UC devenait très performante, le procédé « Chemex » perdait une grande partie de son intérêt.

5.3. LES PROCÉDÉS LASER

- Principe

La différence de masse des noyaux d' U_{235} et d' U_{238} a pour conséquence une différence des énergies des électrons liés aux noyaux. La séparation isotopique par laser exploite les différences entre les longueurs d'ondes de la lumière absorbée par des espèces ne différant que par l'isotope de l'élément considéré.

Deux principaux procédés ont été expérimentés :

- La séparation isotopique par laser avec un procédé moléculaire (SILMO) réalisée à partir d'UF6.
- La séparation isotopique par laser d'une vapeur atomique d'uranium en fusion (SILVA).

- Application

La séparation par les procédés laser présente beaucoup d'intérêt sur le plan de la sélectivité. Dans ce cas, le facteur d'enrichissement est extrêmement élevé à chaque opération. Alors qu'avec les autres procédés, des centaines d'étages sont nécessaires pour obtenir par exemple 4 % d' U_{235} , le laser peut le réaliser en une seule étape.

Cette propriété fait qu'en plus du classique enrichissement à partir d'uranium naturel, on pouvait envisager d'utiliser le laser pour valoriser les grandes quantités d'uranium appauvri issu des installations DG. Mais cette très grande sélectivité a pour conséquence de rendre ce procédé théoriquement proliférant.

5.3.1. Le procédé moléculaire SILMO

Il a été étudié initialement aux USA. Le CEA a aussi travaillé sur ce procédé basé sur l'utilisation de l'UF6. La photo - dissociation de l'UF6 est obtenue en deux étapes :

- Le mélange d'UF6 et d'un gaz porteur H est réalisé dans un mélangeur. Il est ensuite détendu dans une tuyère en un jet supersonique qui se détend dans un diffuseur.
- Le mélange est alors soumis au rayonnement d'un laser infrarouge (IR) puis d'un laser ultraviolet (UV). Aux très basses températures atteintes suite à la détente, l'excitation isotopique sélective par un laser IR est possible.

Au CEA, les travaux sur SILMO ont été limités. L'essentiel des actions « Laser » a porté sur le procédé SILVA.

5.3.2. Le procédé SILVA

Il s'agit de la Séparation Isotopique par Laser d'une Vapeur d'Uranium. Ce procédé a été très étudié puis expérimenté aux USA et en France (Saclay et Pierrelatte). Le principe paraît simple mais la réalisation est très complexe.

- Principe

Dans un module d'enrichissement, un barreau d'uranium est mis en fusion puis vaporisé à environ 2 500°C. Cette vapeur est aspirée sous très basse pression (10^{-5} atm) vers la partie haute du module.

Des faisceaux lasers sont émis perpendiculairement à ce flux de vapeur d'uranium. Le cadencement des impulsions laser doit être tel qu'aucun atome ne puisse traverser la zone d'irradiation sans avoir subi au moins un éclaircissement. La fréquence du laser doit être réglée avec une extrême précision. Il s'agit d'arriver à ioniser sélectivement les atomes d' U_{235} sans agir sur ceux d' U_{238} .

Les ions d' U_{235} pourront alors être collectés au passage sur des plaques parallèles au jet et chargées électriquement. L' U_{238} neutre, car non ionisé, pourra continuer en ligne droite puis se condenser sur le collecteur en partie haute.

En fin de cycle, il faut alors récupérer à froid l' U_{235} collecté sur les plaques latérales, l' U_{238} condensé sur le collecteur puis changer le barreau d'uranium partiellement fondu et évaporé.

- Application

Avec une température de fusion très élevée (1 333°C) puis des vapeurs atteignant 2 500°C, l'uranium devient un produit extrêmement corrosif, il n'existe pas de matériau pouvant constituer un creuset capable de le contenir. On doit recourir à l'auto creuset constitué par le barreau lui-même.

Grace à un bombardement électronique intense on peut obtenir la fusion de l'uranium sur une zone précise du barreau. Cette fusion contrôlée est réalisée suivant une ligne située sur la face supérieure de celui-ci. Le canon à électrons doit avoir une puissance réglable pour obtenir le débit vapeur désiré. Des jeux de miroirs peuvent permettre de multiplier les faisceaux lasers et les ionisations agissant dans le flux des vapeurs d'uranium. Malgré les fortes contraintes thermiques chaque module doit être parfaitement étanche.

- Conclusion

Quels que soient les avantages théoriques des lasers et malgré les essais très poussés réalisés sur les unités « pilotes » SILVA, ces procédés ont été abandonnés. On peut l'attribuer aux raisons suivantes :

- L'obtention de fréquences laser, capables d'exciter et d'ioniser l'isotope 235 sans agir sur le 238, est extrêmement délicate.
- Par principe, l'intérieur de chaque module SILVA se trouve en contact des vapeurs d'uranium portées à plus de 2 000°C. Celles-ci sont très corrosives pour tout le matériel.
- Quand le barreau d'uranium à enrichir a été en grande partie fondu puis évaporé, il faut stopper le processus et revenir à froid pour le remplacer. De même, il faut aussi recueillir l' U_{235} et l' U_{238} déposés sur les électrodes correspondantes.
- Par ailleurs, vu les progrès réalisés en Ultracentrifugation il n'y avait plus de raisons de disperser les efforts. Alors que globalement l'objectif du projet « Enrichissement de l'Uranium » était déjà atteint de façon industrielle et sûre, SILVA perdait son intérêt.

5.4. LES PROCÉDÉS DIVERS

En dehors des procédés déjà présentés puis des deux réalisations industrielles (DG et UC) divers autres moyens d'enrichissement ont été étudiés et expérimentés. Même s'ils n'ont pas eu de suite on doit les citer pour mémoire et indiquer leurs principes.

5.4.1. La diffusion thermique

Ce procédé qui consomme beaucoup de vapeur a été utilisé (Oak – Ridge en 1945) pour réaliser un pré-enrichissement.

Il faisait appel à des colonnes métalliques concentriques de diamètres très proches (et de 15 m de hauteur entre lesquelles circule de l'UF₆ liquide. Entre 2 parois métalliques (froide à 65°C et chaude vers 250°C) les molécules plus légères d' U_{235} migrent préférentiellement vers la paroi chaude.

5.4.2. La résonance cyclotronique ionique (RCI)

Ce procédé fait appel à la voie plasma. Celui-ci se trouve dans une colonne cylindrique de plusieurs mètres de longueur. Le plasma est confiné par un puissant champ magnétique statique (3 Teslas) créé par une bobine

supraconductrice. Les électrons sont excités à leur fréquence cyclotronique. En extrémité de colonne, plusieurs plaques latérales collectent l'uranium enrichi puis la plaque frontale recueille l'uranium appauvri.

5.4.3. Le procédé Sud-Africain (UCOR ou Hélicon)

Il a été dévoilé en 1970 par M. Vorster. C'est un procédé aérodynamique utilisant de l'UF₆ mélangé à de l'hydrogène comme fluide procédé.

Après passage dans un compresseur ce fluide procédé est refroidi. Un élément de séparation partage ensuite les flux « riches » et « pauvre ».

On dispose de peu de précisions sur cette technique qui semble apparentée au procédé Becker.

5.4.4. Le procédé Becker (tuyère)

Il a été étudié par le professeur Becker. Des appareils ont été réalisés (1972-75) par des compagnies allemandes et brésiliennes (Messerschmitt, Nuclébas, ...).

Le fluide utilisé est un mélange d'environ 5 % d'UF₆ et de 95 % d'hélium ou d'hydrogène. Ce gaz sous pression est envoyé dans un orifice convergent (tuyère en forme de fente) d'où une vitesse de sortie d'environ 4 à 500 m/s. Celle-ci se prolonge par une forme courbe à faible rayon. La partie la plus lourde (l'U₂₃₈) s'accumule près de la paroi extérieure. Un dispositif auxiliaire appelé « écorceur », sépare alors ce flux gazeux en deux fractions : l'extérieure avec majoritairement l'U₂₃₈, l'intérieure plus riche en U₂₃₅.

En multipliant les étages en série on augmente l'enrichissement. Par certains aspects ce procédé « statique » représente une forme de centrifugation.

5.5. LES PROCÉDES INDUSTRIELS : LA DIFFUSION GAZEUSE (DG) ET L'ULTRACENTRIFUGATION (UC)

De nombreux pays ont travaillé sur l'enrichissement de l'uranium. Pour répondre aux besoins civils et militaires, une quinzaine de moyens ont été étudiés et expérimentés. Il n'y en a que deux qui ont connu et connaissent aujourd'hui un vrai développement industriel. Ce sont deux procédés physiques basé sur l'emploi de l'UF₆.

5.5.1. La Diffusion Gazeuse (DG)

- Historique

La Diffusion Gazeuse a été mise au point puis industrialisée dans les années 40-45 aux USA dans le cadre du Manhattan Project. La DG a été le principal procédé utilisé pour réaliser les premières bombes A dont celle d'Hiroshima. Plusieurs autres pays (Russie, ..) ont ensuite lancé des recherches en DG. Ce procédé est resté le plus utilisé jusqu'aux années 90.

En France, au début des années 60, les quatre usines dites « militaires » de Pierrelatte ont été construites afin d'obtenir l'uranium fortement enrichi nécessaire à la réalisation de notre « force de frappe ».

Suite à la crise pétrolière d'octobre 1973 (d'où plan Messmer), l'usine civile « Eurodif – Georges Besse 1 » a été réalisée à Pierrelatte et a tourné jusqu'en juin 2013. Si GB1 – DG a été stoppée, les usines GB2 – Centrifugation qui ont pris le relais assurent une production équivalente avec une consommation électrique 50 fois plus faible.

- Usines militaires

Pour passer à un enrichissement poussé on utilisait quatre types de groupe moto – compresseur (GMC) allant d'environ 20 à 200 kW. Ceux-ci étaient répartis dans quatre usines : l'usine basse (UB) recevant l'UF₆, puis l'usine moyenne (UM), l'usine haute (UH) et l'usine très haute (UTH) délivrant l'UF₆ fortement enrichi. Ces GMC étaient regroupés par « caissons » de 8 ou 16 appareils. Lors des interventions sur un GMC on arrêtaient seulement le caisson concerné.

- Usines civiles Eurodif - Georges Besse (GB1)

Dans l'installation Eurodif – GB1 pour passer de 0,72 à 3 % (maximum 5 %) d'U₂₃₅ on utilisait trois types de GMC de 700 à 1500 et 3000 kW. Ceux – ci étaient répartis dans trois usines avec : USG (Usine Super Grosse équipée de GMC de 3000 kW) où arrivait l'UF₆ à 0,72 % de U-235, l'UTG (Usine Très Grosse) et l'UFE (Usine à faible enrichissement) produisant l'uranium enrichi à 3 % environ.

5.5.2. L'Ultracentrifugation (UC)

En cours de rédaction.