Zeitschrift: Bulletin technique de la Suisse romande
Band: 82 (1956)
Heft: 22: Énergie nucléaire, fascicule no 2

Artikel: Théorie de la séparation des isotopes
Autor: Haller, P. de
DOI: https://doi.org/10.5169/seals-62091

Nutzungsbedingungen
Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften auf E-Periodica. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Zeitschriften und ist nicht verantwortlich für deren Inhalte. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern beziehungsweise den externen Rechteinhabern. Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen sowie auf Social Media-Kanälen oder Webseiten ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Mehr erfahren

Conditions d'utilisation
L'ETH Library est le fournisseur des revues numérisées. Elle ne détient aucun droit d'auteur sur les revues et n'est pas responsable de leur contenu. En règle générale, les droits sont détenus par les éditeurs ou les détenteurs de droits externes. La reproduction d'images dans des publications imprimées ou en ligne ainsi que sur des canaux de médias sociaux ou des sites web n'est autorisée qu'avec l'accord préalable des détenteurs des droits. En savoir plus

Terms of use
The ETH Library is the provider of the digitised journals. It does not own any copyrights to the journals and is not responsible for their content. The rights usually lie with the publishers or the external rights holders. Publishing images in print and online publications, as well as on social media channels or websites, is only permitted with the prior consent of the rights holders. Find out more

Download PDF: 08.07.2025

ETH-Bibliothek Zürich, E-Periodica, https://www.e-periodica.ch

électromotrice de 250 millivolts fournissant un courant de court-circuit de 10 microampères.

Il existe encore un autre domaine d'utilisation de ces jonctions, c'est celui, beaucoup plus avancé en ce qui concerne les réalisations techniques, de l'utilisation directe de l'énergie solaire. Les couples thermoélectriques réalisés au moyen de ces semi-conducteurs autorisent de grands espoirs dans cette direction. A tout prendre, cette application elle aussi se doit d'être citée dans ce cours, car le soleil n'est qu'un énorme réacteur nucléaire à fusion où l'hydrogène se transmute finalement en hélium.

Les résultats dont il est fait état dans cet exposé ne représentent qu'une faible part de ce que l'on sait actuellement, mais le but de cet exposé est de donner l'impression que parmi les gros problèmes que pose la mise en exploitation industrielle de l'énergie nucléaire, ceux qui concernent l'aspect technologique de la question ne sont pas les moindres et que leurs résolutions sont et ne pourront être que le résultat de l'action conjuguée des spécialistes en physique nucléaire, en physique du solide, en métallurgie et en chimie et des ingénieurs. Plus que dans toute autre technique, cette collaboration est indispensable.

THÉORIE DE LA SÉPARATION DES ISOTOPES

par P. DE HALLER

directeur des Services scientifiques de Sulzer Frères, Winterthour

Après les brillants exposés sur la physique nucléaire qui précèdent, le sujet que je dois traiter paraîtra bien sec et peu spectaculaire. Si je l'ai choisi, c'est non seulement à cause de l'importance incontestable de ces techniques dans le domaine du génie nucléaire, mais aussi parce qu'elles sont un exemple typique de collaboration entre des branches parallèles de la science. Le professeur Mercier a relevé ce caractère de la technique moderne, où physique, chimie, métallurgie et, *last but not least*, l'art de l'ingénieur doivent nécessairement unir leurs efforts en vue du but commun.

Le problème de la séparation des isotopes, qui était jusqu'à ces dernières années du ressort du laboratoire seulement, est entré dans le domaine de la technique industrielle. Il est clair que les méthodes ne peuvent pas simplement être transposées par un changement d'échelle, mais qu'elles doivent être jugées sur la base de critères tout à fait différents, dont l'un des plus importants est le prix de revient. Mon exposé s'adressant avant tout à des ingénieurs, c'est sur ce côté de la question que j'insisterai, et non sur les mécanismes physiques des procédés de séparation. Je distinguerai donc entre les méthodes de laboratoires proprement dites, universelles, mais produisant des quantités de l'ordre du mg ou du g seulement, dont le type est le spectrographe de masse d'Aston, semi-industrielle, production de l'ordre du kg, destinée par exemple à la fabrication de B^{10} pour détecteurs de neutrons, ou industrielle à grande échelle pour la séparation de U^{235}, de D_2 ou D_2O ou de N^{15}.

Une installation de séparation comporte en principe un ensemble d'appareils identiques, montés en série ou en parallèle, dans chacun desquels on provoque une séparation partielle, un enrichissement. Un bon nombre de caractéristiques d'une telle installation ne dépend pas du procédé physique mis en œuvre dans chaque élément, mais d'un ou deux facteurs seulement suffisant à définir ses propriétés. On peut donc construire une théorie tout à fait générale permettant de chercher les conditions de fonctionnement optimum, d'établir des comparaisons de prix de revient sans qu'il soit nécessaire de préciser le principe utilisé, qui sera indifféremment la diffusion moléculaire, la diffusion thermique, la distillation, etc.

C'est à cette étude que je consacrerai la première partie de cet exposé, réservant à la deuxième partie la discussion des divers procédés.

Deux isotopes ont par définition un même nombre de protons dans leur noyau, ils ont donc un même nombre total d'électrons et particulièrement un même nombre d'électrons de valence. Leurs propriétés chimiques seront donc sensiblement identiques, et pour leur séparation on devra avoir recours à des procédés physiques ou physico-chimiques, en particulier à ceux faisant intervenir la masse des atomes ou des molécules, puisque c'est cette différence de masse qui est leur caractère fondamental. Il est cependant rare qu'on puisse travailler avec l'élément pur, qui ne se trouve en général pas à l'état liquide ou gazeux pour les pressions et températures usuelles. On utilise des combinaisons chimiques avec un ou plusieurs autres éléments, ce qui introduit des complications parce que cet autre élément peut aussi avoir des isotopes, de sorte que le nombre de molécules différentes dans le mélange s'accroît considérablement. Par exemple l'eau H_2O est un mélange des différents oxydes suivants : H_2O^{16}, H_2O^{17}, H_2O^{18}, D_2O^{16}, D_2O^{17}, D_2O^{18} de poids atomiques 18, 19, 20, 20, 21, 22. On voit qu'un procédé fondé uniquement sur la différence des poids moléculaires ne sépare pas D_2O^{16} et H_2O^{18}. Or O^{18} absorbe fortement les neutrons et est donc indésirable. Un autre inconvénient est le fait que la différence de masse de molécules complexes est plus faible que celle de l'élément pur : pour l'eau encore, ce rapport est de 20/18 au lieu de 2/1 pour l'hydrogène. Pour un élément lourd tel que l'uranium, l'écart devient très faible : il est de moins de 1 % entre les poids de $U^{235}F_6$ et $U^{238}F_6$, et la séparation devient d'autant plus difficile. Par contre lorsque les deux composantes du mélange sont aussi semblables, on peut le considérer comme parfait. En particulier la

loi de Raoult sera vérifiée et les coefficients d'équilibres seront indépendants de la concentration.

Un des facteurs essentiels du prix de revient d'un isotope est l'énergie nécessaire à la séparation. A titre de comparaison, il est intéressant de calculer le minimum de travail indispensable, bien que le travail effectif soit, comme nous le verrons, d'un tout autre ordre de grandeur.

Considérons un mélange gazeux contenant x_1 mol-g d'un isotope de poids moléculaire m_1 et x_2 mol-g d'un isotope de poids moléculaire m_2 par mol-g du mélange. Soit pT la pression et la température. On aura $x_2 = 1 - x_1$, $p = p_1 + p_2$, p_1 et p_2 étant les pressions partielles, et puisqu'il s'agit d'un mélange parfait, $\frac{p_1}{p} = x_1$; $\frac{p_2}{p} = x_2 = 1 - x_1$.

Supposons maintenant le mélange contenu dans un cylindre muni de deux pistons semi-perméables ne laissant passer chacun que l'une des composantes. Avançant l'un vers l'autre, ces pistons séparent les deux espèces de molécules, comprimant chacune d'elles à partir de la pression partielle correspondante à la pression du mélange. En compression isotherme, le travail total par mol-g de mélange est donc

$$A = RT\left(x_1 \ln \frac{p}{p^1} + x_2 \ln \frac{p}{p_2}\right) =$$
$$= -RT\left[x_1 \ln x_1 + (1 - x_1) \ln (1 - x_1)\right]. \qquad (1)$$

Rapportée à 1 g de l'isotope 1, cette relation devient

$$A\,(\mathrm{kWh/g}) = 0{,}232 . 10^{-5} \frac{T}{m_1}\left[\ln x_1 + \frac{1 - x_1}{x_1} \ln (1 - x_1)\right]. \qquad (2)$$

Les fonctions entre crochets des formules (1) et (2) sont représentées dans la figure 1 et la table 1. Dans le cas de l'eau lourde, avec une concentration naturelle de $1{,}5 . 10^{-4}$ et une masse moléculaire de 20, on trouve qu'il faut au minimum $3{,}6 . 10^{-4}$ kWh/g. Or les meilleurs procédés connus exigent 3-5 kWh/g, soit 10 000 fois plus. Ceci vient de ce que dans notre expérience hypothétique nous avons pour ainsi dire pris chaque molécule l'une après l'autre, alors que nos appareils très imparfaits travaillent à la façon d'une écumoire, laissant échapper la plupart des molécules, de sorte qu'il faut répéter l'opération un grand nombre de fois.

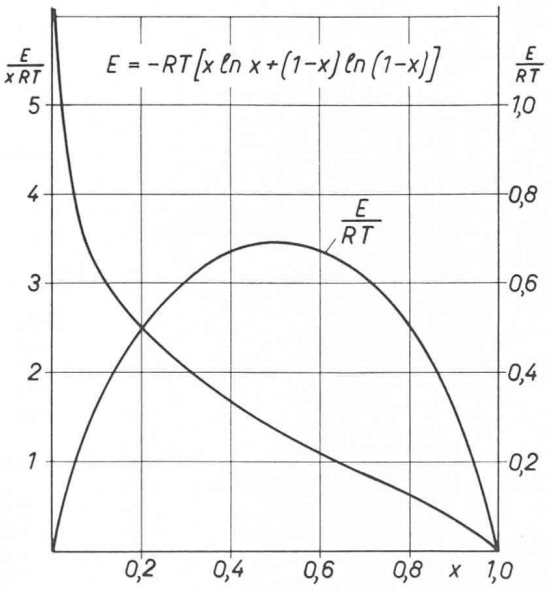


Fig. 1. — Travail de séparation théorique en fonction de la concentration initiale.

Nous allons maintenant établir un certain nombre de relations générales entre les caractéristiques physiques du mélange à séparer et les dimensions, le rendement, la consommation d'énergie, etc., de l'installation. Quelques définitions, pour commencer. x désignera la concentration moléculaire d'un mélange binaire et r le rapport des concentrations des deux composantes

$$r = \frac{x}{1 - x} \qquad \text{ou} \qquad x = \frac{r}{1 + r}.$$

Dans un système à deux phases, les grandeurs relatives à chacune d'elles seront représentées par des majuscules ou des minuscules. L'indice o désigne le mélange initial, les indices p et w le produit et le résidu. Un *élément* est un appareil de séparation individuel, par exemple une chambre de diffusion, une centrifugeuse ou une colonne de distillation. Un *étage* se compose de plusieurs éléments en parallèle et la *cascade* est l'ensemble des étages montés en série. Le mélange F est introduit à un certain niveau de la cascade, de laquelle on tire à une extrémité le produit P et à l'autre le résidu W. La partie de l'installation comprise entre F et P est la section de concentration ou d'enrichissement, celle entre F et W la section d'épuisement ou d'appauvrissement (fig. 2).

Nous établirons tout d'abord quelques relations entre les quantités de produit, de mélange et de résidu et leurs concentrations respectives. Le principe de la conservation de la matière donne immédiatement :

$$F = P + W$$
$$Fx_o = Px_p + Wx_w \qquad \text{d'où}$$
$$W = P\,\frac{x_p - x_o}{x_o - x_w} \qquad F = P\,\frac{x_p - x_w}{x_o - x_w}$$

et le rendement de l'installation sera

$$\eta = \frac{Px_p}{Fx_o} = \frac{x_p}{x_o} \cdot \frac{x_o - x_w}{x_p - x_w}.$$

Table 1

x	$\frac{A}{RT}$	$\frac{A}{xRT}$
0,0001	0,0010	10,2
0,001	0,0079	7,9
0,01	0,056	5,6
0,02	0,098	4,9
0,05	0,199	3,98
0,1	0,325	3,25
0,2	0,505	2,52
0,3	0,611	2,03
0,4	0,673	1,73
0,5	0,693	1,39
0,6	0,673	1,12
0,7	0,611	0,87
0,8	0,505	0,63
0,9	0,325	0,36
1,0	0	0

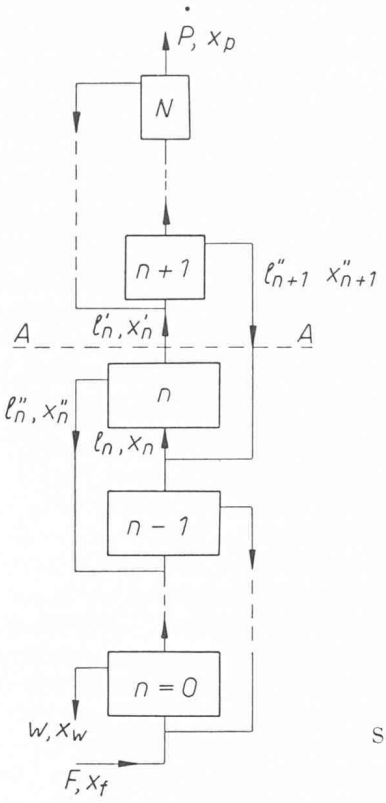


Fig. 2.
Schéma d'une cascade de séparation.

On peut établir des relations analogues pour l'étage ou pour l'élément. Ce dernier a une entrée (sans indice), une sortie de fluide enrichi (indice ′) et une sortie de fluide appauvri (indice ″). l sera la quantité du mélange de concentration x entrant dans l'étage, l' et l'' les masses sortantes de concentration x' et x''. On a évidemment :

$$l = l' + l'' \quad \text{et} \quad lx = l'x' + l''x'' \;;$$

l'effet de l'étage est d'augmenter la concentration d'un facteur α qui est par définition

$$\alpha = \frac{r'}{r} = \frac{x'}{1-x'} \cdot \frac{1-x}{x}$$

et en admettant que l'élément est construit de façon à ce que les fractions l' et l'' soient en équilibre, les rapports de concentration de ces deux phases sont liés par la relation :

$$k = \frac{r'}{r''} = \frac{x'}{1-x'} \cdot \frac{1-x''}{x''} \cdot$$

Introduisons encore la fraction $\Theta = \dfrac{l'}{l}$ et nous aurons :

$$x = \Theta x' + (1-\Theta)x''$$

ou bien en résolvant par rapport à Θ

$$\Theta = \frac{k-\alpha}{k-1} \cdot \frac{1+\alpha r}{\alpha(1+r)} = \frac{k-\alpha}{\alpha(k-1)} \left[1 + (\alpha-1)x\right] \cdot$$

En général k et x seront donnés, de sorte que cette équation permet de choisir la fraction Θ correspondant à un coefficient de concentration α désiré. α ne peut être égal au facteur d'équilibre que si $\Theta = 0$, c'est-à-dire si la quantité de fluide enrichi sortant de l'élément est nulle également. Θ étant fonction de x, varie en général avec l'étage : $\Theta = f(n)$. Mais il peut être constant par construction : c'est alors α qui sera fonction de n. Ce type de cascade est désigné par le terme de « cascade carrée » (square cascade). Une colonne de distillation à plateaux en est un exemple. On peut montrer que pour obtenir la cascade la plus économique il faut que $k = \alpha^2$; alors

$$\Theta = \frac{1}{\alpha+1}\left[1 + (\alpha-1)x\right] \quad \text{et} \quad 1-\Theta =$$

$$= \frac{1}{\alpha+1}\left[\alpha - (\alpha-1)x\right] \cdot$$

Ce résultat, difficile à démontrer en toute rigueur, est plausible. En effet, d'après le schéma général, la fraction enrichie sortant du n'-ième étage passe immédiatement à l'étage suivant, tandis que la fraction appauvrie est ramenée à l'entrée du $(n-1)$-ième étage. Comme tout mélange de fluides de concentrations différentes correspond à une augmentation d'entropie et par conséquent à une perte d'énergie, il faut que les concentrations x''_n et $x_{n+1} = x'_{n-2}$ soient égales. On en déduit, puisque $r' = \alpha r$ et $r_n = \alpha r_{n-1}$ $r''_n = \dfrac{1}{\alpha^2} r'_n$ et $k = \alpha^2$. Une cascade de ce type est dite idéale et nous allons étudier ses propriétés plus en détail.

Considérons une ligne de séparation coupant la cascade au-dessus du n-ième étage. Le bilan des débits la traversant est alors

$$\Theta_n l_n - (1-\Theta_{n+1})\, l_{n+1} = P$$

$$\Theta_n l_n x'_n - (1-\Theta_{n+1})\, l_{n+1} x''_n = P x_p$$

et en remplaçant :

$$\Theta_n l_n (x'_n - x''_{n+1}) = P(x_p - x''_{n+1})$$

ou bien, avec la condition établie plus haut, $x''_{n+1} = x_n$

$$l_n = \frac{p(x_p - x_n)}{\Theta_n (x'_n - x_n)} = P\frac{\alpha+1}{\alpha-1} \cdot \frac{x_p - x_n}{x_n(1-x_n)} \cdot$$

En particulier le débit absorbé par le premier étage sera

$$l_o = P\frac{\alpha+1}{\alpha-1} \cdot \frac{x_p - x_o}{x_o(1-x_o)} = P\frac{\alpha+1}{\alpha-1}\, f(x_p, x_o).$$

Les valeurs de f sont données dans la table 2.

Table 2

$f(x_p, x_n)$				
x_n	$x_p = 0{,}2$	0,5	0,8	1,0
0,001	199	499,5	799,8	1000
0,01	19,1	49,5	79,8	100
0,02	9,2	24,5	39,8	50
0,05	3,15	9,5	15,8	20
0,1	1,11	4,4	7,8	10
0,2	0	1,9	3,75	5
0,3		0,95	2,37	3,3
0,4		0,42	1,66	2,5
0,5		0	1,20	2,0
0,6			0,81	1,66
0,7			0,36	1,43
0,8			0	1,25
0,9				1,11
1,0				1,0

Ce débit l_n est une caractéristique essentielle. En effet, il est évident que les dimensions de l'élément et par conséquent son prix lui sont sensiblement proportionnelles, ainsi que l'énergie absorbée. La somme des l_n sera donc une mesure de l'ampleur de l'installation et de sa consommation d'énergie, c'est-à-dire de la part principale du prix de revient. Calculons cette somme : en se souvenant que $r_n = \alpha^n r_o$ on pourra l'écrire :

$$l_n = P \frac{\alpha + 1}{\alpha - 1} x_p \left[1 - \alpha^{n-N-1} + \frac{1}{r_o} (\alpha^{-n} - \alpha^{N-1}) \right]$$

et comme $\sum_o^N \alpha^n = \frac{1 - \alpha^{N+1}}{1 - \alpha}$ on aura après quelques calculs fastidieux :

$$\sum l_n = \frac{\alpha+1}{\alpha-1} p \left[N(2x_p - 1) + \frac{\alpha - (\alpha+1) x_o}{\alpha - 1} \cdot \frac{x_p - x_o}{x_o(1 - x_o)} \right]$$

$$= \frac{\alpha+1}{\alpha-1} P \left[N(2x_p - 1) + \frac{l_o}{P} \frac{\alpha - (\alpha+1) x_o}{\alpha + 1} \right]$$

où N est le nombre d'étage défini par $r_p = \alpha^N r_o$

$$N = \frac{\ln P_p / r_o}{\ln \alpha} = \frac{1}{\ln \alpha} \left[\ln \frac{x_p}{1 - x_p} - \ln \frac{x_o}{1 - x_o} \right].$$

La fonction $\ln \frac{x}{1 - x}$ est représentée dans la figure 3 et la table 3 (pour $x > 0{,}5$ prendre les valeurs changées de signe de $1 - x$).

La formule est surtout utile lorsque le nombre d'étages est grand, c'est-à-dire lorsque α est peu supérieur à 1 : posant $\alpha - 1 = \varepsilon$, cette relation se simplifie et devient :

$$\sum l_n = \frac{2P}{\varepsilon^2} \left[(2x_p - 1) \ln \frac{r_p}{r_o} + \frac{1 - 2x_o}{1 - x_o} \cdot \frac{x_p - x_o}{x_o} \right].$$

On voit que ce débit total est inversement proportionnel au carré de ε, ce qui montre l'intérêt de tout procédé permettant d'augmenter le facteur d'enrichissement α.

Ces raisonnements s'appliquent immédiatement à la section d'épuisement. Il suffit de remplacer x_p et P par x_w et W en remarquant que le nombre d'étages et le débit sont alors négatifs. Le débit cumulé des deux sections de la cascade prend alors la forme très simple :

$$\sum \text{total} = \frac{\alpha + 1}{\alpha - 1} \left[N_e W (1 - 2x_w) + N_c P (2x_p - 1) \right]$$

dans laquelle on a tenu compte des relations entre W et P et où

$$N_e = \frac{1}{\ln \alpha} \ln \frac{r_o}{r_w}; \quad N_c = \frac{1}{\ln \alpha} \ln \frac{r_o}{r_p}$$

sont les nombres d'étages des sections d'épuisement et de concentration. On peut encore, en introduisant la fonction $V = (2x - 1) \ln \frac{x}{1 - x}$ (table 3 et fig. 3) mettre cette formule sous la forme simple et symétrique

$$l \text{ total} = \frac{\alpha + 1}{(\alpha + 1) \ln \alpha} \left[PV(x_p) + WV(x_w) - FV(x_o) \right].$$

TABLE 3

x	$-N(x)$	$V(x)$
0,0001	9,210	9,208
0,001	6,907	6,893
0,005	5,293	5,240
0,01	4,595	4,503
0,02	3,892	3,736
0,05	2,944	2,650
0,1	2,197	1,757
0,15	1,735	1,214
0,2	1,386	832
0,25	1,098	549
0,3	0,847	338
0,35	0,619	186
0,4	0,405	081
0,45	0,200	020
0,5	0	0

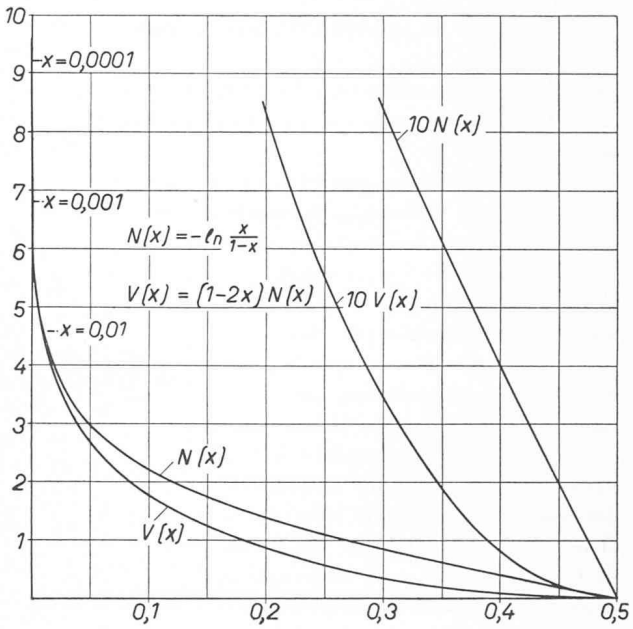


Fig. 3. — Fonctions caractéristiques d'une cascade de séparation.

Un exemple aidera à saisir l'utilité de ces formules. On veut établir une usine de concentration d'uranium 235 par diffusion moléculaire, travaillant sur 500 kg d'uranium naturel par jour. La concentration initiale x_o est 0,007, le facteur d'équilibre $k = 1{,}004$, et $\alpha = 1{,}002$ pour la cascade idéale. La concentration finale est $x_p = 0{,}2$ et celle des résidues $x_w = 0{,}003$. Le nombre d'étages nécessaires est alors

$N_c = \frac{1}{\ln \alpha} \ln \frac{x_p}{1 - x_p} \cdot \frac{1 - x_o}{x_o} = 1785$ pour la concentration et $N_e = 420$ pour l'épuisement. Le rapport $\frac{P}{F} = \frac{x_o - x_w}{x_p - x_w} = 0{,}02$ et le rendement $\eta = \frac{x_p}{x_o} \cdot \frac{P}{F} = 0{,}57$, enfin $\frac{W}{F} = 0{,}98$.

La quantité circulant dans le premier étage sera

$$\frac{l_o}{F} = \frac{\alpha + 1}{\alpha - 1} \cdot \frac{x_p - x_o}{x_o (1 - x_o)} \cdot \frac{P}{F} = 565 ;$$

elle est donc plusieurs centaines de fois supérieure à l'alimentation. Calculons enfin le débit cumulé

$$l\,\text{total} = F \cdot \frac{\alpha + 1}{(\alpha - 1)\ln\alpha}\left[\frac{P}{F}\,V(x_p, + \frac{W}{F}\,V(x_w) - V(x_o)\right]$$
$$= 385\,000\ F = 1\,920\,000\ P.$$

L'installation travaille avec de l'hexafluorure d'uranium UF_6 de poids moléculaire 352, c'est-à-dire que $F = 500 \cdot \frac{352}{238} = 740$ kg/jour. On peut estimer qu'il faut 36 kWh pour faire passer 1 kg de UF_6 à travers une cellule. La puissance nécessaire sera donc :

$$\frac{385\,000\ .\ 740\ .\ 36}{24\ .\ 3600} = 120\,000\ \text{kW}$$

pour une production de 500 . 0,02 . 0,2 = 2 kg d'U^{235} par jour. Il faut donc dépenser

$$\frac{120\,000\ .\ 24}{2000} = 1440\ \text{kWh par gramme d'U}^{235}$$

produit à la concentration de 20 %. C'est là une fraction élevée de l'énergie que l'on peut tirer de l'uranium par fission.

Les considérations précédentes se rapportent à une cascade idéale, présentant le minimum de débit cumulé. Les installations réelles s'en écartent plus ou moins. On peut montrer qu'un écart de $\pm$ 20 % sur la fraction Θ optimum n'influence pas encore sensiblement les résultats obtenus plus haut.

Cet exemple montre que la quantité de matière circulant dans l'installation peut être énorme. A la première mise en marche, il faut amener ces masses à la concentration correspondant à l'étage où elles se trouvent avant de pouvoir soutirer le produit. Le temps nécessaire peut être très long, des semaines ou des mois. Il est donc essentiel que ces installations fonctionnent de façon continue sans interruption dépassant quelques heures. Les conditions imposées à la sécurité de marche sont en conséquence très sévères. La figure 4 montre schématiquement comment la mise en marche se fait. Au début, il n'y a pas de soutirage jusqu'à ce que la concentration désirée soit atteinte en tête. On peut alors commencer progressivement à soutirer en maintenant la concentration finale constante, jusqu'à ce que le régime soit atteint. On peut obtenir un ordre de grandeur du temps nécessaire par le raisonnement suivant : la quantité d'isotopes transportée d'un bout à l'autre de la colonne est en régime permanent $P(x_p - x_o)$, celle qu'il faut enlever à la masse contenue est $\sum_{o}^{N} \tau\, l_n\,(x_n - x_o)$, où τ est la rétention (hold up) par unité de flux, ou aussi le temps moyen de parcours au long de la cascade. Le temps total de transport sera donc, en admettant τ constant pour tous les éléments :

$$T = \frac{\tau}{p\,(x_p - x_o)} \sum \ln\,(x_n - x_o)$$

en remplaçant la somme par une intégrale et après quelques calculs :

$$T = \frac{2\tau}{\varepsilon^2}\left[\frac{x_p - 2\,x_p\,x_o + x_o}{x_p - x_o}\ln\frac{r_p}{r_o} - 2\right];\ \varepsilon = \alpha - 1 << 1$$

ou encore, si x_o est assez petit par rapport à x_p :

$$T = \frac{2\tau}{\varepsilon^2}\left[\left(1 + 2\frac{x_o}{x_p}\right)\ln\frac{r_p}{r_o} - 2\right].$$

Si τ est de l'ordre de 10″, on trouve pour l'exemple traité plus haut : $T = \sim 8\,000\,000''$, soit 100 jours.

Après ce court aperçu de la théorie générale de la séparation, nous allons passer en revue quelques-unes des méthodes les plus importantes. Parmi celles-ci, la plus connue est sans contredit la spectrographie de masse, qui au laboratoire a permis la séparation d'un grand nombre d'isotopes. Son application à l'échelle industrielle se heurte à de grandes difficultés, et si elle a été utilisée pendant la guerre, elle a été abandonnée depuis. Son principe est bien connu (fig. 5) : dans une enceinte soigneusement évacuée, un pinceau de ions animés d'une vitesse v est soumise à un champ magnétique perpendiculaire à v. La trajectoire des ions est alors un cercle dont le rayon R dépend entre autres de la masse m. On a en effet, pour l'équilibre des forces centrifuges et magnétiques :

$$\frac{mv^2}{R} = evB \quad \text{d'où} \quad R = \frac{mv}{eB}.$$

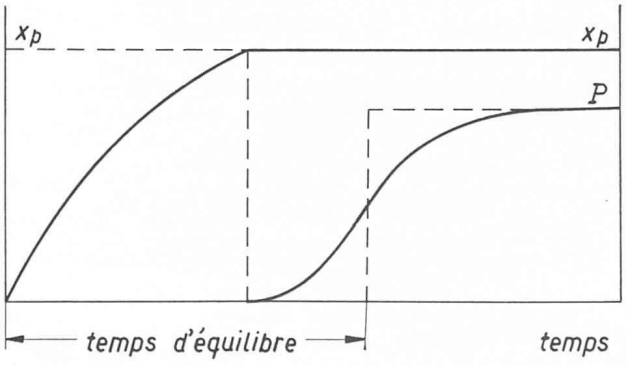


Fig. 4. — Variation du débit et de la concentration à la mise en marche.

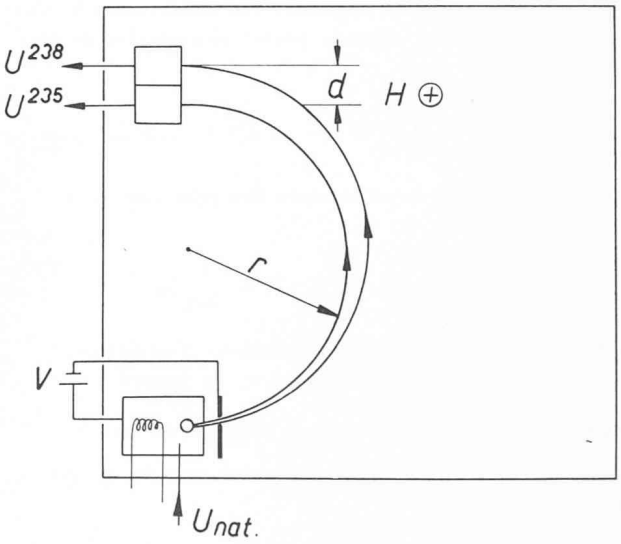


Fig. 5. — Schéma du spectrographe de masse.

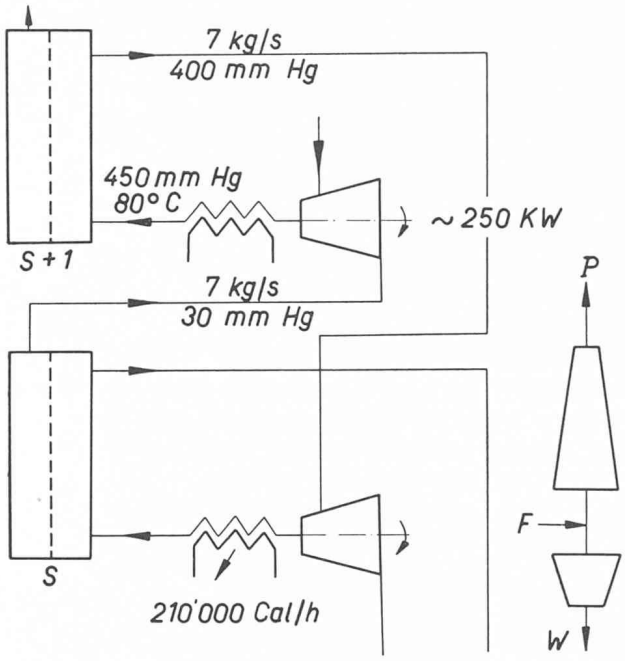


Fig. 6. — Schéma d'une installation de séparation par diffusion thermique.

B est l'induction dans l'entrefer et e la charge électrique unitaire. Les ions sont accélérés par une différence de potentiel V, c'est-à-dire que $\frac{mv^2}{2} = eV$ et $R = \frac{1}{B}\sqrt{\frac{2mV}{e}}$. Un ion de masse $m + \Delta m$ se déplacera sur un cercle de rayon $R + \Delta R$ tel que $\frac{\Delta R}{R} = \frac{1}{2}\frac{\Delta m}{m}$ et la distance maximum entre les deux faisceaux sera $d = 2\Delta R = R \cdot \frac{\Delta m}{m}$.

On choisit la tension et le champ de façon que R soit environ 1 m, et comme Δm est pour les composés d'uranium utilisés 1 %, la distance entre les deux faisceaux est de l'ordre de 1 cm. On pourrait, en choisissant des fentes suffisamment fines, arriver à une séparation pratiquement totale. C'est même la seule méthode dont le facteur de concentration soit théoriquement infini. En fait, la focalisation des faisceaux est loin d'être parfaite et, pour que les quantités récoltées soient suffisantes, les fentes sont larges, et le produit est loin d'être pur. Il suffit toutefois de répéter l'opération un petit nombre de fois.

Calculons encore la dépense d'énergie théorique : elle est égale à $V \cdot e$ pour un ion, c'est-à-dire pour 1 mol-g de mélange et $V = 1000$ V.

$E = 6{,}03 \cdot 10^{23} \cdot 1{,}6 \cdot 10^{-19} \cdot 10^4 = 9{,}7 \cdot 10^8$ joules $= 268$ kWh

si on utilise de l'hexafluorure d'uranium UF_6, $m = 352$, et la teneur de U^{235} étant $x = 0{,}007$, on a

$$E = \frac{268}{352} \cdot \frac{352}{235 \cdot 0{,}007} = 163 \text{ kWh/g.}$$

Ce chiffre semble avantageux, mais il faut lui ajouter la puissance nécessaire à l'ionisation et celle des pompes à vide, qui est plusieurs fois supérieure. De plus, l'entretien de l'appareil est délicat et coûteux, de sorte que les « Calutrons » en service de 1940 à 1944 ont été abandonnés au profit de la diffusion moléculaire.

Rayleigh a montré en 1896 déjà que la vitesse de diffusion de molécules à travers une paroi poreuse dépendait de leur poids moléculaire. Cet effet peut être grossièrement estimé de la façon suivante : d'après la loi d'équipartion de l'énergie en théorie statistique des gaz, toutes les molécules auront en moyenne la même énergie cinétique :

$$E = \frac{m_1 v_2^1}{2} = \frac{m_2 v_2^2}{2}$$

c'est-à-dire que les vitesses moyennes sont inversement proportionnelles à la racine de la masse moléculaire. Si on fait s'écouler un mélange homogène à travers un orifice, il y aura un plus grand nombre de molécules légères passant au travers. Pour éviter toutefois un nouveau mélange par l'agitation thermique, il faut que l'orifice soit petit par rapport à la longueur de parcours libre. On a réussi à fabriquer des parois perméables dont les pores ont environ 0,01 μ de diamètre. Malgré cela, il faut travailler sous vide pour augmenter le parcours libre. Cette méthode a souvent été utilisée pour la séparation des isotopes, mais la première application à grande échelle a été faite à Oakridge, en 1942, pour la préparation de U^{235}. Le seul composé d'uranium qui soit gazeux à des températures normales est l'hexafluorure d'uranium UF_6, qui sublime à 58° C. En outre, le fluor n'a qu'une composante de poids atomique 19, sans autres isotopes, de sorte que le mélange ne comporte que deux molécules, de masse 349 et 352. Le facteur d'équilibre est $k = \sqrt{\frac{352}{349}} = 1{,}0045$. Les conditions de fonctionnement sont tenues secrètes, mais elles sont probablement les suivantes : température : $t = 80°$ C ; pression en amont de la barrière : 0,6 bar ; pression aval : 0,04 bar. Le rapport de compression est donc de 15 et le travail nécessaire à faire passer 1 kg de gaz à travers la paroi est de 36 joules pour un rendement du compresseur de 70 %. Les difficultés techniques sont énormes, la fabrication des barrières est un problème difficile et de plus l'UF_6 est très corrosif et c'est un poison actif. L'installation doit donc être absolument étanche. Le tableau 4 donne quelques indications numériques.

TABLE 4

Séparation de U^{235} par diffusion thermique
$x_o = 0{,}007$ $x_w = 0{,}003$

x_p	N	l_o/p	$\frac{F}{P}$	η	$\frac{l_{tot}}{P}$	E(kWh/g)
0,01	610	432	1,75	81,8	$1{,}35 \cdot 10^5$	200
0,015	815	1 150	3,0	71,4	4,77	476
0,021	975	2 000	4,5	66,6	9,4	675
0,10	1800	13 400	24,2	58,7	88,0	1320
0,20	2240	27 700	49,3	58	196	1460
0,9	4000	128 000	224,0	57,5	980	1750

Un autre procédé de séparation, qui a comme les deux précédents l'avantage de s'appliquer à un grand nombre d'isotopes, est la diffusion thermique. Lorsqu'un mélange de gaz de poids moléculaires différents est soumis à un gradient de température, la concentration n'est plus uniforme, mais chaque composante a tendance à se rassembler dans les régions chaudes ou froides. Ce phénomène, dont Chapman a établi la théorie, a été utilisé avec succès par Clusius et ses élèves. Il a observé que la convection, dont la théorie ne tient pas compte, renforce considérablement l'effet de la diffusion moléculaire. L'appareil (fig. 7) consiste

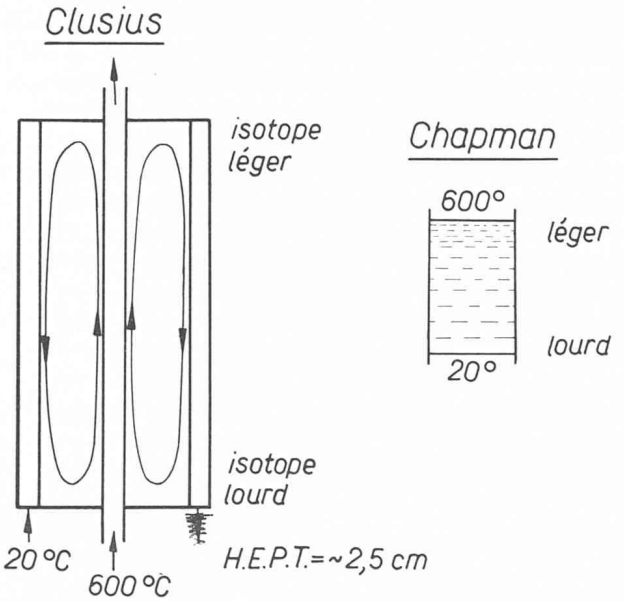


Fig. 7. — Diffusion thermique.

en trois longs tubes concentriques verticaux, le tube intérieur est chauffé à 600° C environ, tandis que de l'eau circule entre les deux tubes extérieurs. Le mélange se trouve dans l'espace annulaire médian. La fraction légère se concentre au haut de l'appareil, l'isotope lourd au bas. Le courant de convection réalise un échange à contre-courant qui multiplie l'efficacité de la colonne. On obtient des hauteurs équivalentes à un plateau théorique (HEPT) de 2 à 3 cm. La consommation d'énergie est élevée et cette méthode n'a pas encore été appliquée à l'échelle industrielle, mais elle rend de grands services au laboratoire.

Un procédé de séparation qui vient immédiatement à l'esprit est la sédimentation sous l'action de la pesanteur ou d'une accélération centrifuge. Le facteur de séparation théorique est ici aisé à calculer. En effet, dans un gaz soumis à une accélération g, la pression obéit à la loi

$$dp = \rho g dr \text{ avec } g = \omega^2 r \text{ et } \rho = p \cdot \frac{M}{RT}$$

en intégrant de r_1 à r_2 ou à $\frac{p_2}{p_1} = e^{\frac{v_2^2 - v_1^2}{2} \cdot \frac{M}{RT}}$

appliquons la formule aux pressions partielles des deux composantes :

$$p_1' = x_1 p_0 \quad p_1'' = (1 - x_1) p_0 \quad \frac{p_2'}{p_2''} = \frac{x_2}{1 - x_2}$$

$$k = \frac{x_2}{1 - x_2} \cdot \frac{1 - x_1}{x_1} = \frac{p_2'}{p_1'} \cdot \frac{p_1''}{p_2''} = e^{\frac{v_2^2 - v_1^2}{2}} \cdot \frac{M' - M''}{RT}$$

ou, comme l'exposant est petit

$$k = 1 + \frac{v_2^2 - v_1^2}{2} \frac{M' - M''}{RT}.$$

Ce facteur ne dépend que de la différence des masses et non des masses elles-mêmes. Le procédé s'applique donc également bien aux isotopes lourds ou légers. Pour fixer l'ordre de grandeur, prenons $v_2 = 350$ m/s ; $v_1 = 200$ m/s ; $T = 300°$ K ; $M' - M'' = 3$ g

$$k = 1 + \frac{12{,}3 - 4}{2} \cdot 10^8 \cdot \frac{3}{8{,}3 \,.\, 10^7 \,.\, 300} = 1{,}05$$

c'est-à-dire très supérieur à celui de la diffusion moléculaire. Une installation pour UF_6 a été construite aux Etats-Unis pendant la guerre, mais les difficultés mécaniques et la puissance absorbée n'ont pas permis de passer à une réalisation industrielle.

Tout récemment, Becker a proposé un appareil (fig. 8) de séparation comportant essentiellement une

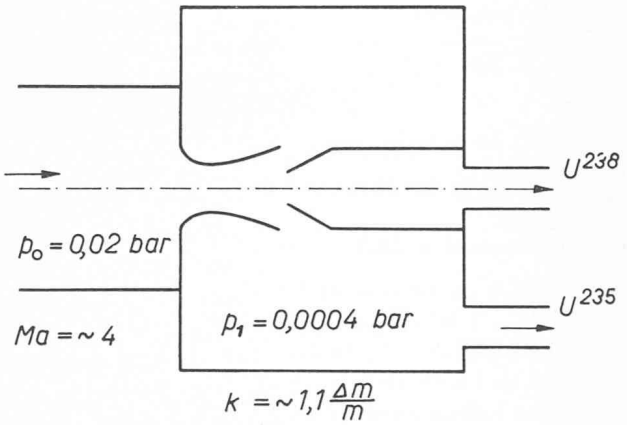


Fig. 8. — Tuyère supersonique de E. W. Becker pour la séparation isotopique.

tuyère de Laval de petite dimension (0,5-1 mm diam.), travaillant à des vitesses supersoniques élevées $M \sim 4$. Il trouve que l'isotope léger se concentre sur les bords du jet, le noyau étant enrichi en isotope lourd. Un diaphragme conique permet de séparer les deux fractions. Becker a obtenu des facteurs de séparations proportionnels à la différence des masses relatives, ce qui semble montrer qu'il s'agit d'un effet centrifuge le long des parois à faible rayon de courbure de la tuyère. La consommation d'énergie est forte, à cause des différences de pression élevées nécessaires à l'obtention des nombres de Mach de l'ordre de 2 à 4.

Les trois dernières méthodes que nous voulons encore considérer sont beaucoup moins universelles. Il s'agit de la distillation, de l'échange chimique et de l'électrolyse. En fait, cette dernière n'est applicable qu'à la

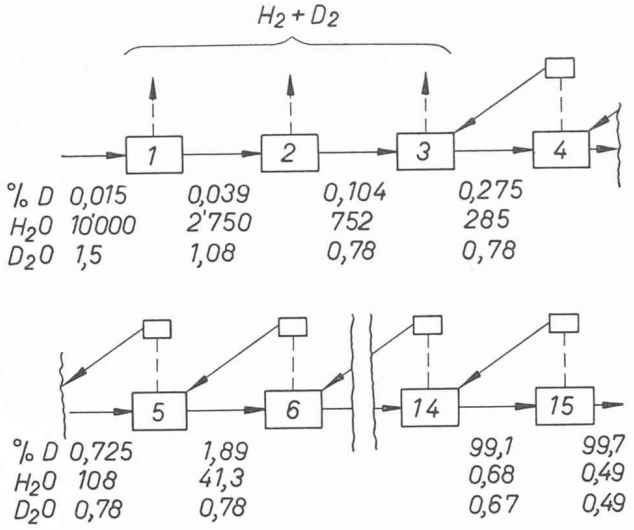


Fig. 9. — Cascade d'électrolyseurs pour la fabrication d'eau lourde.

séparation de l'eau lourde. Pour tous les autres éléments elle est inefficace. Elle fait usage du fait que l'oxyde de deuterium a un potentiel de dissociation sensiblement plus élevé que celui de l'eau ; on obtient aisément des facteurs d'équilibres de 5 à 8, c'est-à-dire que la concentration en D_2 de l'hydrogène est de cinq à huit fois plus faible que celle de l'eau à décomposer. En principe, une cascade d'électrolyseur correspond au schéma que nous avons étudié plus haut. Une modification est cependant indiquée pour les premiers étages. En effet, l'électrolyse est une opération coûteuse, qui demande énormément d'énergie : environ 0,13 kWh par mol-g. Elle ne peut être économique que si l'eau lourde est un sous-produit d'une fabrication nécessitant de l'hydrogène. Les premières cellules n'auront donc pas de reflux et ce n'est qu'à partir d'une concentration assez élevée que l'hydrogène produit est brûlé et cette eau ramenée à l'étage précédent. La figure 9 montre un exemple typique de cascade électrolytique. Pour diminuer les pertes par entraînement de vapeur, on fait passer les gaz dans les refroidisseurs où l'eau se condense. Il est évident que le rendement de l'opération et la consommation d'énergie imputable à la rectification de l'eau lourde dépend essentiellement de la concentration à partir de laquelle le reflux est appliqué. Les chiffres suivants indiquent l'ordre de grandeur :

x_r	0,00015	0,001	0,005	0,01
η	0,8	0,5	0,25	0,1
E kWh/g D_2O	120-150	12	2	1

Ils montrent clairement que l'électrolyse n'est guère applicable pour la production à très grande échelle. Le rendement est trop mauvais et le prix de revient serait exorbitant. Ce n'est guère qu'en Norvège, où le prix du kW est très bas, qu'on produit 10-20 t par an de D_2O par ce procédé.

Ce mauvais rendement de l'électrolyse peut être sensiblement amélioré en diminuant la teneur en deutérium de l'hydrogène produit au moyen d'une réaction d'échange. Bien que deux isotopes aient en principe les mêmes propriétés chimiques, l'équilibre d'une réaction peut être modifié par la masse de l'une des molécules. Comme l'écart des poids moléculaires est particulièrement grand pour les composés d'hydrogène et de deutérium, on peut s'attendre à ce que les facteurs d'équilibre soient grands (table 5). C'est effectivement le cas pour la réaction

TABLE 5

Réactions d'échange pour eau lourde					
Réactions	Coefficient d'équilibre				
Température °C	0°	25°	100°	125°	225°
$H_2O + HD \rightleftharpoons HDO + H_2$	4,7	3,9	2,7	2,5	1,9
$H_2O + HDS \rightleftharpoons HDO + H_2S$	2,5	2,3	1,9		
$H_2O + DI \rightleftharpoons HDO + HI$	4,5	3,8	2,8	2,6	2,0

$$H_2O + HD \rightleftharpoons HDO + H_2.$$

La demi-molécule HO a une plus grande affinité pour le deutérium. Si on met en contact de l'hydrogène et de la vapeur d'eau, la concentration de l'eau en deutérium augmentera aux dépens de celle de l'hydrogène. Le facteur d'équilibre est très favorable, puisqu'il est de 3,8 à 25° C et de 2,7 à 100° C. L'hydrogène en équilibre avec l'eau naturelle à 0,15 ‰ de deutérium aura donc une concentration trois fois plus faible environ, soit 0,05 ‰. La figure 10 montre l'application

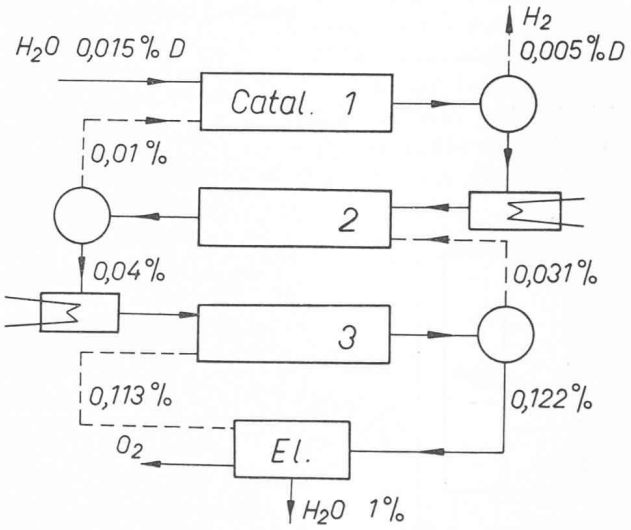


Fig. 10. — Amélioration du rendement de l'électrolyse par échange chimique.

TABLE 6

Fabrication d'eau lourde par distillation				
x_0 %	0,015	0,1	1	10
E kWh/g	200	14	2	0,3
Avec Th. C	—	2,4	0,5	—
η	0,02	0,90	0,95	0,95

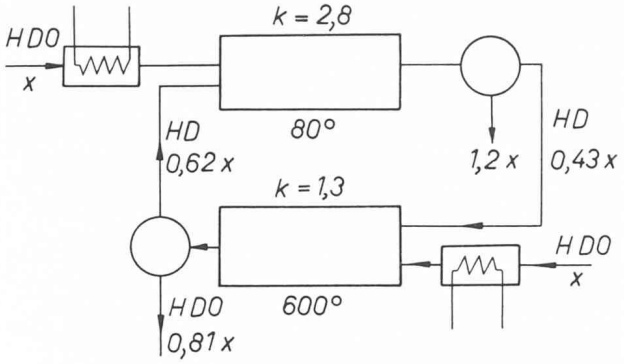
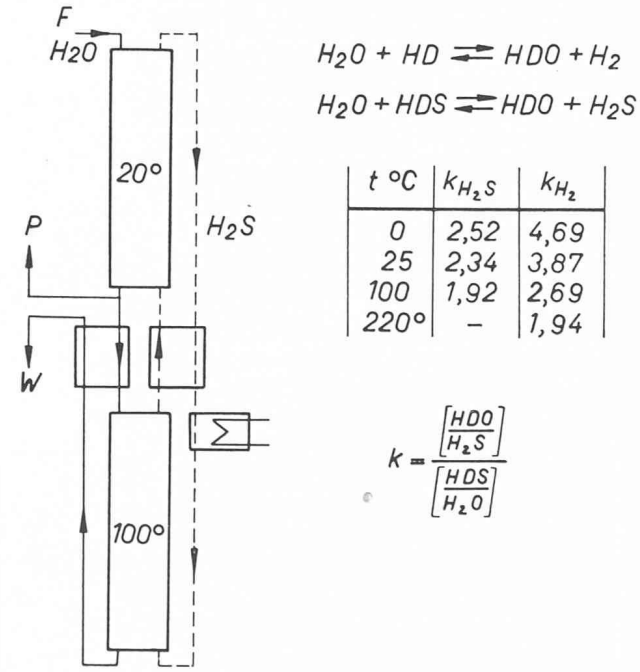


Fig. 11. — Concentration par échange chimique à 2 températures.

pratique du procédé : l'H_2 sortant de l'électrolyseur passe à travers une cascade de chambres d'échange et s'appauvrit progressivement.

Le même principe peut être utilisé indépendamment de l'électrolyse, en utilisant la forte variation du coefficient d'équilibre avec la température. C'est ce qu'illustre la figure 11 suivante.

La réaction d'échange eau-hydrogène a le grand inconvénient d'être très lente sous les conditions normales. Il est nécessaire de l'accélérer par des catalyseurs, avec tous les inconvénients afférents à ce genre d'appareil : sensibilité à l'eau liquide, au CO, à KOH et aux composés sulfureux, etc. Bien qu'elle ait été utilisée à grande échelle en Amérique, on a cherché d'autres possibilités évitant l'emploi de catalyseur. L'une des nombreuses réactions possibles, eau + hydrogène sulfureux, est particulièrement intéressante, parce qu'elle se fait entre phases liquides et gazeuses et sans qu'il soit nécessaire de l'accélérer. L'installation correspond au schéma de la figure 12. Le point délicat est, ici, l'action corrosive intense du mélange d'eau et d'hydrogène sulfureux, qui pose des problèmes d'ordre pratique difficiles à résoudre.



t °C	k_{H_2S}	k_{H_2}
0	2,52	4,69
25	2,34	3,87
100	1,92	2,69
220°	–	1,94

Fig. 12. — Echange chimique à deux températures avec hydrogène sulfureux.

Pour terminer cette revue des procédés de séparations les plus usuels, il faut parler encore de la distillation fractionnée conventielle, applicable aux mélanges d'isotopes de volatilité différente. Très séduisante au premier abord, cette méthode s'applique seulement aux isotopes légers H — D, O^{16} — O^{18}, éventuellement N^{14} — N^{15}, pour lesquels le coefficient de séparation est suffisamment grand. Bien qu'elle ait été utilisée à grande échelle aux Etats-Unis, elle n'est économique que si on dispose de grandes quantités de chaleur à très bon marché. Le procédé original avec colonnes à plateau classique a été fortement amélioré sur deux points essentiels : tout d'abord augmentation du débit spécifique de la colonne grâce à un garnissage spécial dit spray-pack mis au point à Harwell, et grâce auquel les premiers étages, les plus coûteux et les plus encombrants, peuvent être considérablement réduits. L'autre progrès est dû au professeur Kuhn, de Bâle, dont la colonne spéciale permet une séparation d'une précision inconnue jusqu'ici. Elle s'applique donc spécialement à la rectification dans les derniers étages. Une installation partant de l'eau naturelle à $x_o = 0{,}015$ % et fournissant de l'eau lourde à 99,8 % comporte environ 350 plateaux ($k = 1{,}05$) théoriques répartis entre quatre étages de concentration 0,015, 0,25, 3,0, 50-99,8 %, la consommation d'énergie approximative étant indiquée sur le tableau.

La colonne Kuhn de l'Institut de chimie physique

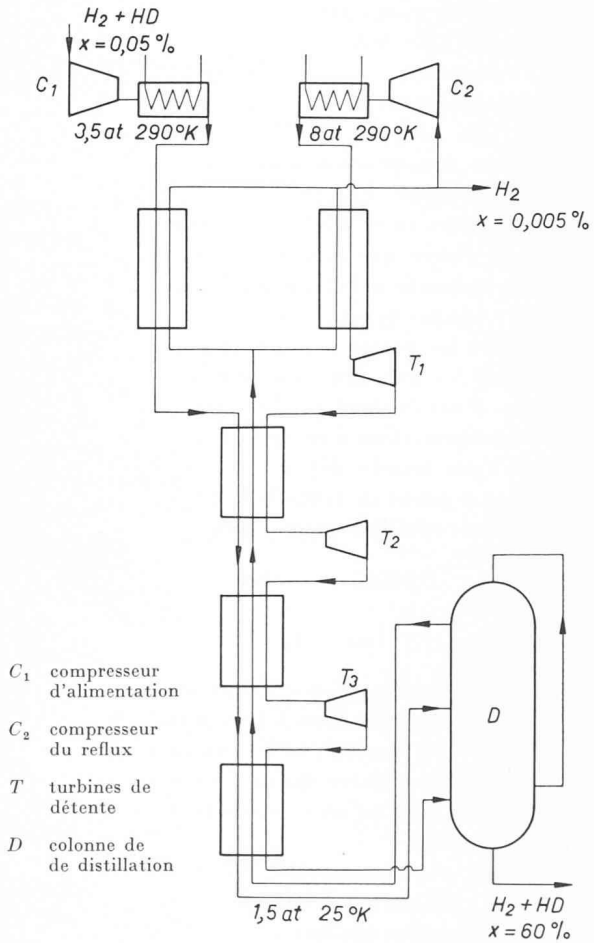


Fig. 13. — Schéma d'une installation de distillation d'hydrogène liquide.

de Bâle sépare sans difficulté H_2O^{16} et H_2O^{18}, dont la volatilité relative n'est que de 1,008.

Il faut enfin mentionner la distillation de l'hydrogène liquide, en principe aisée puisque le coefficient d'équilibre est ici 1,5, mais pratiquement malaisée parce qu'elle doit se faire à —252° C. Malgré cela, ses avantages théoriques sont tels que plusieurs installations sont à l'étude en Europe. La figure 13 montre un schéma plausible.

A part les difficultés techniques inhérentes à la liquéfaction de l'hydrogène, à l'isolation thermique, au comportement des métaux aux basses températures (fragilité, etc.), il faut encore citer deux problèmes d'ordre physico-chimique. L'un résulte du fait que le deutérium se trouve aux faibles concentrations entièrement sous forme de HD, et à —252° C l'équilibre H_2 — HD est gelé, de sorte que la distillation peut tout au plus fournir du HD pur mais pas de D_2. Il faut ou bien rétablir l'équilibre au cours de la distillation au moyen de catalyseurs, ou brûler cet HD en HDO et terminer la rectification par distillation de cette eau à température normale, où l'équilibre se réalise au fur et à mesure de la concentration. L'autre problème réside dans une transformation éventuelle d'ortho- en para-hydrogène. Cette transformation ayant lieu à basse température est fortement exothermique et compliquerait la liquéfaction de l'hydrogène. Il faut donc éviter, dans la construction des appareils, toute matière pouvant catalyser cette réaction, entre autres les métaux magnétiques et surtout l'oxygène solide.

Conclusion

Cet exposé ne peut donner qu'un bref aperçu sur la technique de la séparation des isotopes. Il montre cependant la diversité des moyens que l'on peut mettre en œuvre pour un seul but et par conséquent la nécessité d'un contact plus étroit entre les diverses branches de la science. L'ingénieur, le chimiste, le physicien doivent collaborer étroitement pour surmonter en un délai raisonnable les difficultés inhérentes à ces techniques nouvelles.

BIBLIOGRAPHIE

K. Cohen : *The Theory of Isotope Separation.* McGraw-Hill, New York, 1951.

R. Stephenson : *Introduction to Nuclear Engineering.* McGraw-Hill, New York, 1954.

I. Kirshenbaum : *Physical Properties and Analysis of Heavy-Water.* McGraw-Hill, New York, 1951.

E. W. Becker, K. Bier und H. Burghoff : *Die Trenndüse.* Z. Naturforschung, 1955, p. 565-572.

Manson Benedict : *Chemical Engineering Aspects of Nuclear Power.* Ind. Engineering Chemistry, 45, Nr. 11, Nov. 1953, p. 2372.

M. C. Fox : *Thermal Diffusion.* Chem. Engineering, Dec. 1945, p. 102.

TRANSMISSION DE CHALEUR ET CYCLES THERMIQUES DANS LA CENTRALE ATOMIQUE

par W. TRAUPEL, professeur à l'Ecole polytechnique fédérale, Zurich

1. Conduction de chaleur

Considérons la conduction de la chaleur à l'intérieur de l'élément de « combustible » (matière fissile). Dans le réacteur « thermique » classique cet élément a la forme d'une barre cylindrique (fig. 1).

Soit :

R le rayon extérieur de la barre ;
r le rayon courant de la barre ;
λ le coefficient de conductibilité ;
ρ la masse spécifique ;
ε la production de chaleur à l'intérieur de la barre par unité de masse et de temps ;
q le flux calorifique [1] ;
T la température.

Considérons un élément dr, en état stationnaire. On aura :

$$2\pi\,[(r+dr)\,q\,(r+dr) - rq\,(r)] = 2\pi r dr \rho\varepsilon$$
$$r[q\,(r+dr) - q\,(r)] + drq\,(r+dr) = rdr\rho\varepsilon$$
$$\frac{dq}{dr} + \frac{q}{r} = \rho\varepsilon\,. \qquad (1)$$

[1] Quantité de chaleur traversant la section considérée par unité de temps et de section.

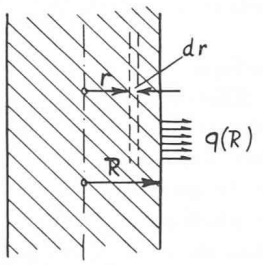


Fig. 1. Conduction de chaleur dans la barre d'uranium.

D'autre part, d'après le théorème bien connu de Fourrier nous avons :

$$q = -\lambda \frac{dT}{dr} \qquad (2)$$

de sorte que

$$-\lambda\left(\frac{d^2T}{dr^2} + \frac{1}{r}\frac{dT}{dr}\right) = \rho\varepsilon$$

ou bien

$$\frac{d^2T}{dr^2} + \frac{1}{r}\frac{dT}{dr} = -\frac{\rho\varepsilon}{\lambda} \qquad (3)$$