

2
COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE

CENTRE D'ETUDES NUCLEAIRES DE SACLAY

CEA-CONF -- 9109

Service de Documentation
F91191 GIF SUR YVETTE CEDEX

P2

LASER ET SEPARATION ISOTOPIQUE DE L'URANIUM

Gilles, L. CEA CEN Saclay, 91-Gif-sur-Yvette (France). IRDI, Dept.
de Physico-Chimie

Communication présentée à : 1. International conference on materials, medicine
biology, physics chemistry
Villeurbanne (France)
7-9 Jul 1987

LASER ET SEPARATION ISOTOPIQUE DE L'URANIUM
L. GILLES - IRDI-DESICP-DPC-SIP
Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette Cédex. France

AVERTISSEMENT

Le lecteur de cette revue est un familier du laser, de ses propriétés et des applications "classiques" qui en résultent (médicales, soudage, découpe, etc.) ; il peut cependant ne pas avoir de connaissances particulières dans un domaine important certes mais qui touche à un tout autre domaine, l'électronucléaire, notamment à ce qu'il est convenu d'appeler dans le cycle du combustible, l'enrichissement de l'uranium. C'est pourquoi il a paru important de situer l'enjeu économique de ce marché particulier qu'est la séparation isotopique et de lui accorder autant voire plus d'importance qu'aux lasers eux-mêmes mis en jeu étant entendu que le lecteur intéressé pourra toujours se rapporter aux nombreux articles ou revues consacrés au sujet (1)(2)(3)(4).

INTRODUCTION

La possibilité d'appliquer tout ou partie des propriétés remarquables du rayonnement laser et notamment celle qui se rapporte à sa finesse spectrale, à la résolution d'un problème aussi complexe que celui de la séparation isotopique est très vite apparue comme concevable d'abord, réaliste ensuite, dans le monde des scientifiques et en premier lieu celui des spectroscopistes.

Aux alentours des années 75 deux voies nouvelles de séparation isotopique utilisant les lasers apparaissaient comme des alternatives possibles aux procédés statistiques de la diffusion gazeuse ou de l'ultracentrifugation déjà considérés comme "classiques" pour enrichir l'uranium. Elles s'appuyaient non seulement sur les propriétés spectroscopiques de l'uranium et celles d'un dérivé de l'uranium bien connu des "enrichisseurs", l'hexafluorure d'uranium, mais aussi sur l'emploi de lasers adaptés à cette spectroscopie.

Il n'est évidemment pas envisageable de présenter dans son ensemble et de façon exhaustive :

- ce qu'est l'enrichissement de l'uranium, les réalisations auxquelles il a déjà donné lieu et le marché qu'il représente et,
- ce que sont les procédés lasers ainsi que les diverses technologies qui seront amenées à se développer en vue de leur mise en oeuvre au stade industriel.

Toutefois, pour les raisons évoquées dans l'avertissement, une part importante de cette présentation se rapporte à des considérations générales sur les procédés ayant atteint le stade industriel, le contexte économique dans lesquels ils se situent et l'enjeu du marché considéré, étant entendu que les seules applications civiles de la séparation isotopique de l'uranium seront considérées.

Dans une seconde partie sont présentés les principes physiques sur lesquels reposent les deux procédés laser :

le procédé dit "moléculaire" ou SILMO

le procédé dit "atomique" ou SILVA

et principalement parce que dès 1985 le choix français s'est officiellement porté sur le procédé SILVA en vue d'un développement industriel ultérieur, on insiste davantage sur les critères qui conduisent au choix des lasers qui s'y rapportent ainsi qu'à leur agencement (architecture de chaîne).

L'ENRICHISSEMENT DE L'URANIUM : SES OBJECTIFS, LA SITUATION ACTUELLE ET L'ENJEU ECONOMIQUE (5)

L'enrichissement est l'opération de séparation isotopique qui consiste à augmenter la teneur en isotope 235 de l'uranium dont la composition à l'état naturel est approximativement de 99,3 % d'uranium 238 et de 0,7 % d'uranium 235. L'uranium ainsi enrichi constitue notamment

la matière de base entrant dans la fabrication du combustible des réacteurs à eau. La teneur à atteindre pour réaliser les éléments combustibles de ces réacteurs est habituellement comprise entre 2 % et 4% d'uranium 235.

L'enrichissement se mesure en UTS, Unité de Travail de Séparation*.

Ce n'est qu'au début des années 70 que les aspects énergétiques devinrent prépondérants dans les projets de réalisation de nouvelles usines d'enrichissement autres que celles déjà existant aux Etats-Unis, la première crise de 1973 stimulant les programmes électronucléaires des pays à forte dépendance pétrolière tels que la France et le Japon.

Diverses raisons d'ordre politique et économique conduisent donc un certain nombre de pays, seuls ou en association, à développer des procédés industriels d'enrichissement de l'uranium :

- création du consortium tripartite d'ultracentrifugation (URENCO) ratifiée en 1970 par la Grande Bretagne, les Pays-Bas et l'Allemagne Fédérale,
- projet EURODIF lancé par la France en 1972 et réalisé avec la participation de la Belgique, de l'Espagne et de l'Italie,
- mise au point d'une technique d'ultracentrifugation au Japon.

La maturation des techniques d'enrichissement demande du temps, environ vingt ans, entre les premières études et le développement industriel. Devant des délais aussi longs pour mettre au point et appliquer industriellement ces techniques, il faut prendre soin, au moment de se lancer dans le développement d'un procédé, d'éviter de tomber dans un marché dépressif lors de l'application.

A mesure que le temps passe, de nouvelles techniques apparaissent. C'est ainsi qu'à la suite en particulier de la mise au point de lasers à fréquence accordable, une nouvelle famille de procédés d'enrichissement caractérisés par une forte sélectivité isotopique est devenue possible voici une dizaine d'années :

- l'ionisation isotopiquement sélective par photoexcitation des couches électroniques de l'uranium (SILVA),
- la dissociation isotopiquement sélective par photoexcitation vibrationnelle de la molécule d'hexafluorure d'uranium (SILMO).

Ces techniques dont la sélectivité apparaît considérablement plus élevée que celle obtenue antérieurement par diffusion gazeuse, ultracentrifugation ou échange chimique (autre procédé mis en oeuvre au Japon et en France où il a atteint le stade pilote), laissent entrevoir d'excellentes performances économiques dans le cas habituel de l'enrichissement de l'uranium naturel et même dans de nouveaux types d'applications tels que :

- l'épuisement en isotope 235 de l'uranium déjà appauvri par des moyens conventionnels et considéré jusqu'alors comme sans valeur,
- l'enrichissement et l'épuration simultanés de l'uranium récupéré à la sortie des usines de retraitement.

C'est pourquoi malgré l'état de surcapacité actuel en service d'enrichissement, une certaine concurrence entre les producteurs** apparaît où chacun s'efforce de disposer des techniques les plus compétitives d'ici la fin du siècle. Les procédés laser sont le pivot de cette compétition car ils offrent des perspectives économiques remarquables.

Pour sa part, après avoir abandonné en 1979 l'ultracentrifugation et malgré certains avantages que présentait un procédé d'enrichissement par échange chimique entre les valences III et IV de l'uranium, la priorité était donnée en France, dès fin 83, aux procédés "avancés" (SILMO, SILVA et RCI - la Résonance Cyclotronique Ionique est basée sur une excitation sélective à la fréquence cyclotronique de l'isotope 235 d'un plasma d'uranium). En 1985, la photoionisation de l'uranium (SILVA) s'est imposée en raison de son extrême efficacité de séparation.

SILMO ET SILVA : LES PRINCIPES PHYSIQUES

Ces procédés exploitent les écarts entre les longueurs d'onde de la lumière absorbée par des structures, atomiques ou moléculaires, ne différant que par l'isotope de l'élément choisi : l'uranium.

Très généralement, ces effets isotopiques ont deux origines physiques : l'une électronique (uranium), l'autre vibrationnelle (UF₆).

La première, utilisée dans le procédé SILVA, est conditionnée par le fait que l'énergie d'interaction entre électrons de valence et noyau atomique est légèrement fonction de la structure nucléaire de l'isotope.

La seconde résulte de ce que les fréquences de vibration des molécules dépendent de leur masse et donc de la nature des isotopes intervenant dans leur composition (SILMO) : il s'agira donc dans ce procédé d'exciter vibrationnellement $^{235}\text{UF}_6$ dans son mode ν_3 aux alentours de $16 \mu\text{m}$ puis de faire en sorte d'atteindre la dissociation de cet état excité (sans "toucher" autant que faire se peut à $^{238}\text{UF}_6$) soit par un rayonnement UV (par exemple en utilisant un laser à XeCl) soit par absorption multiphotonique selon un processus à une ou plusieurs "couleurs" IR.

LES LASERS POUR LE PROCÉDE ATOMIQUE SILVA (2)(6)(7)(8)

SILVA repose donc sur l'ionisation des atomes d'uranium 235 (P.I. $\approx 6,18 \text{ eV}$) contenus dans un jet de vapeur d'uranium naturel préalablement photoexcités sélectivement. Les ions ainsi obtenus sont extraits à l'aide d'un champ électrique.

Un schéma d'irradiation à trois étapes apparaît jusqu'alors être le mieux adapté à une telle opération : il s'agit de deux excitations successives suivies de l'ionisation (en fait une quatrième longueur d'onde sera utilisée afin d'agir sur les atomes d'un niveau thermiquement peuplé situé à 620 cm^{-1} au-dessus du niveau fondamental). Un tel schéma présente notamment l'avantage d'utiliser des gammes de longueurs d'onde qui, si les trois transitions sont d'énergie voisine, se situeront entre 550 et 650 nm pour lesquelles les colorants et optiques utilisés sont moins sensibles à une photodégradation.

La largeur spectrale attendue des émissions permettant les deux premières étapes doit être suffisamment faible pour que la sélectivité isotopique soit excellente mais doit couvrir toute la largeur des raies de l'isotope 235 de manière à pouvoir agir sur tous les atomes de cet isotope. Compte tenu de l'élargissement des raies par effet Doppler et d'une structure hyperfine due à l'existence d'un spin nucléaire, les raies laser devront avoir une largeur comprise entre 1 et 3 GHz. Les autres caractéristiques qui situent les propriétés attendues des lasers utilisés sont :

- l'énergie du rayonnement nécessaire pour saturer les transitions d'excitations/ionisation considérées et qui entraîne l'emploi de lasers fonctionnant en impulsion,
- la cadence des impulsions qui doit atteindre plus de 10 kHz pour irradier avec un maximum d'efficacité des atomes s'élevant à des vitesses pouvant approcher 1000 m/s.

A noter déjà, et pour fixer un ordre de grandeur, qu'un calcul simple conduit pour une transition dont la section efficace est supérieure à 10^{-16} cm^2 à une puissance dont la valeur se situe au niveau du kW ($E \approx 1 \text{ mJ/cm}^2$).

Ces quelques considérations fixent donc, dans l'état actuel de nos connaissances, la meilleure solution pour obtenir les caractéristiques désirées : des lasers à colorants associés en chaîne pour fournir l'énergie nécessaire émettront dans la gamme de longueurs d'onde mentionnée, aux spécifications définies par les études de schémas d'irradiation. Ces lasers seront rendus actifs par des lasers de pompe fonctionnant à la cadence optimale et eux-mêmes associés en chaîne.

Les lasers à colorants ont pour propriétés essentielles de pouvoir être accordés aux longueurs d'onde désirées avec une largeur spectrale optimale et, par ailleurs, de pouvoir fonctionner à haute fréquence de récurrence.

Au niveau de chaque "couleur" correspondant à une des transitions du procédé, chaque chaîne de lasers à colorants sera constituée d'un maître oscillateur et d'amplificateurs.

L'oscillateur donne une émission de faible énergie mais sous une faible divergence et de largeur spectrale requise. Les amplificateurs portent cette émission jusqu'au niveau de puissance recherché avec un rendement élevé.

L'affinement et la stabilisation du spectre d'un oscillateur sont assurés par des moyens optiques tels que réseau, interféromètre de Pérot Fabry...

Les amplificateurs devant fonctionner à haute cadence, le colorant doit être renouvelé entre chaque impulsion afin d'éviter les variations d'indice de réfraction dues au chauffage par l'onde de pompe.

Le laser à vapeur de cuivre apparaît aujourd'hui le mieux qualifié pour pomper les lasers à colorants :

- ses longueurs d'onde d'émission (510-578 nm) et la durée d'impulsion sont bien adaptées à cette fonction,
- par nature, il fonctionne à des fréquences de récurrence de quelques kHz,
- il possède un rendement relativement élevé et une fiabilité potentiellement optimisable (au stade industriel il ne s'agit pas d'arrêter les irradiations toutes les 500 heures).

Bien évidemment les ensembles laser de pompe sont également constitués d'oscillateur et amplificateurs dont les fonctions sont identiques à ce qui vient d'être décrit pour les lasers à colorants.

Les ensembles lasers de pompe et lasers à colorants sont disposés en chaînes parallèles. La multiplication des chaînes et leur synchronisation permettent d'obtenir la cadence lumineuse requise pour interagir efficacement avec les atomes d'uranium.

En conclusion, et pour fixer les idées, si on suppose une consommation électrique due à l'emploi des lasers d'environ 40 kWh/UTS, une installation d'enrichissement par lasers dont la capacité serait 10 MUTS/an, (EURODIF = 10,8 MUTS/an) nécessite 50 kW de lumière issue des lasers à vapeur de cuivre, soit environ 500 modules de 100 W chacun (des modules de 40 W sont actuellement commercialisés) : la notion de fiabilité prend alors tout son sens.

Références Bibliographiques

- 1 - Séparation isotopique par laser - M. CLERC, P. RIGNY, O. de WITTE - Le Laser Technique et Documentation Lavoisier - 197-244, 1984
- 2 - Journée sur l'enrichissement de l'uranium - SFEN (actes) - Septembre 1984
- 3 - Physique des procédés de séparation des isotopes de l'uranium par laser - M. CLERC, P. RIGNY - RGN, Revue Générale du Nucléaire, 6, 513 (1985)
- 4 - Advanced uranium enrichment processes - M. CLERC, P. PLURIEN - Commission of the European Communities (EUR 10743 EN) 1986
- 5 - Extrait de : l'enrichissement de l'uranium - J.H. COATES - Clefs - Revue Scientifique et Technique du CEA, 2, 18, 1986
- 6 - The AVLIS programme - J.R. LONGENECKER, N. HABERMAN - Nuclear Technology International 99, 1987
- 7 - Development of a single mode dye laser pumped by a copper vapor laser - Y. ARAI, S. ADACHI, T. TAKEDA, T. YAMANAKA, C. YAMANAKA - Technology Reports of the Osaka University, 36 (1860), 361, 1986
- 8 - UK laser isotope separation - V.S. CROCKER - Atom, 363, January 1987

* L'Unité de Travail de Séparation (UTS) est exprimée en kg, c'est une fonction complexe du taux d'enrichissement en isotope 235 de l'uranium et du taux d'appauvrissement de l'uranium résiduel. Cette valeur, proportionnelle à la quantité d'uranium traitée, donne une mesure de l'uranium enrichi et énergétiquement "utilisable" et du travail nécessaire pour l'obtenir. A titre d'exemple, un premier cœur de réacteur de 1 GWe contient environ 60 tonnes d'uranium enrichi au voisinage de 3 % en uranium 235. Une telle production demande environ 350 tonnes d'uranium naturel et 240 000 UTS alors que les recharges annuelles ultérieures ne demandent plus que 150 tonnes d'uranium naturel et 100 000 UTS.

** La capacité mondiale d'enrichissement, dans les pays à économie de marché est actuellement d'environ 31,6 MUTS/an répartie à raison de 61 % pour les Etats-Unis, 34 % pour EURODIF et le reste pour URENCO pour un besoin qui s'évalue plutôt en deçà de 25 MUTS/an. Le chiffre d'affaires d'un tel marché, pour un UTS avoisinant les 120 \$, se situe donc à hauteur 3000 M\$. Les ventes réelles se répartissent à raison de 45 % pour les Etats-Unis, 40 % pour EURODIF et 15 % pour URENCO et TECHNABEXPORT, l'organisme d'exportation de l'Union Soviétique.