

AUTOMATISATION DES PROCÉDÉS DE SÉPARATION ISOTOPIQUE DES HYDROGÈNES PAR CHROMATOGRAPHIE EN PHASE GAZEUSE

C. LAQUERBE, J. STEIMETZ, D. LETERQ*, J. DEMOMENT
CEA - Valduc, *CEA - DAM

Dans le cadre du renouvellement de nos installations "tritium", nous avons fait évoluer l'une des fonctions principales de la chaîne de traitement des gaz : la séparation isotopique [1]. Cette fonction est primordiale, car elle permet l'obtention de tritium. L'objectif premier est de produire du tritium, sous forme gazeuse, avec des spécifications très strictes.

L'évolution a été menée dans le but de répondre aux deux enjeux suivants :

- l'amélioration de la pureté des gaz produits :
 - au niveau de l'enrichissement du tritium produit, en accord avec l'évolution des spécifications ;
 - au niveau de la décontamination des effluents produits, constituant des mélanges faiblement tritiés des isotopes de l'hydrogène les plus légers.
- l'accroissement du flux traité, pour augmenter la capacité de traitement de la chaîne procédé, et permettre ainsi de séparer, de manière simultanée, les effluents issus du traitement des eaux tritiées.

Fruit d'une quinzaine d'années de développements, réalisés principalement en interne, le procédé de séparation isotopique retenu, dénommé TCAP (Thermal Cycling Absorption Process), est adapté au contexte, tout en s'affranchissant des problèmes posés par un changement radical de technologie.

Sur la base du concept proposé par Myung et Lee en 1980 à SRNL (Savannah River National Laboratory, USA) [2], cette technique de séparation constitue une évolution des procédés discontinus de chromatographie en phase gazeuse sur alumine palladiée (*support actif*), exploités au CEA - DAM pour la séparation isotopique du tritium. En présence d'hydrogènes, les différences d'affinité du palladium pour les trois isotopes concernés, observables notamment sur ses propriétés d'absorption (*lors de la formation de l'hydruure, du deutéruure, ou du tritiure de palladium*) autorisent leur séparation. Dans le procédé TCAP, nous exploitons l'évolution du pouvoir de séparation en fonction de la température de fonctionnement.

La capacité de séparation est d'autant plus faible que la température est élevée : significative à des températures voisines de l'ambiante, elle s'annule quasiment au-delà de 100°C.

Les mécanismes conduisant à la séparation du deutérium et du tritium sont schématisés sur la figure 1, en affectant, de manière arbitraire, à chaque isotope, des vitesses différentielles de déplacement différentes à basse et à haute température.

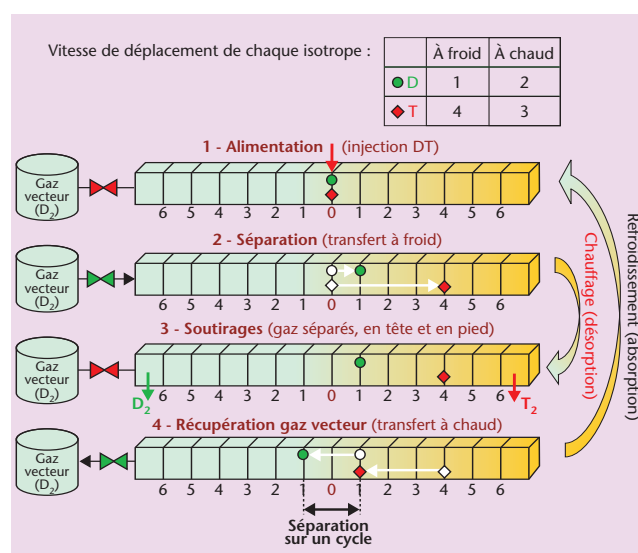


Figure 1

Principes de séparation : exemple du DT.

Les étapes principales d'un cycle type de TCAP, permettant la séparation du deutérium et du tritium, sont schématisées. Des vitesses différentielles de déplacement sont affectées, de manière arbitraire, à chaque isotope, à basse et à haute température.

La réalisation d'un enchaînement de cycles thermiques, totalement reproductibles, permet de basculer d'un mode de fonctionnement discontinu à un mode de fonctionnement semi-continu, tout en conservant une technologie bien maîtrisée, et d'une mise en œuvre relativement aisée (*en comparaison à la distillation cryogénique, technique de séparation la plus répandue*). La régénération totale du garnissage (*alumine palladiée*) entre chaque séparation n'est plus nécessaire. Une optimisation de la durée de chaque cycle conduit à une augmentation significative de la productivité, à taille d'installation équivalente. La pureté des effluents produits, aussi bien "riches" que "pauvres", se trouve également améliorée, car les soutirages de ces gaz sont réalisés suffisamment loin des fronts de séparation, dans des fractions pures. Enfin, la robustesse du fonctionnement n'est pas remise en cause, les transferts de gaz s'effectuant par détente.

Après une étude de faisabilité, les premiers travaux menés pour développer ce procédé ont été consacrés à la détermination d'un garnissage adapté. Le garnissage sélectionné est l'alumine palladiée (*dépôt de palladium sur de l'alumine, substrat inerte*). Les développements réalisés ensuite se sont focalisés sur l'aspect technologique du procédé, avec comme objectifs : son automatisation, et surtout la minimisation de la durée d'un cycle [3]. Depuis, la qualification des performances de ce procédé a pu être obtenue à l'échelle 1, sur deux installations pilotes, en inactif puis en actif. Elle se concrétisera, au deuxième semestre 2008, par sa mise en exploitation au sein d'une boîte à gants dédiée, intégrée à la chaîne de fabrication (*figure 2*). Enfin, depuis l'origine du projet, le développement, en parallèle, d'un logiciel de simulation dynamique a permis, via l'expérimentation numérique :

- une meilleure compréhension des mécanismes mis en jeu ;
- la détermination de modes de marche ;
- l'optimisation des paramètres opératoires associés [4].

Le recours à ce logiciel de simulation a aussi permis de limiter significativement le nombre d'essais de validation.

Il est intéressant de noter qu'à partir de 1994 (*lors de la rénovation de ses installations*), et en 2007 (*lors de la mise en service du TEF – Tritium Extraction Facility*), Savannah River a délaissé ses procédés historiques de séparation isotopique par distillation cryogénique au profit de procédés TCAP.

L'évolution engagée par le CEA - DAM n'est pas aussi radicale, mais exprime la volonté de faire évoluer les procédés (*maximum de souplesse, mise en œuvre simplifiée*) en adéquation avec les besoins.

Au regard de ses performances, le procédé TCAP devrait pouvoir être mis en œuvre, à l'avenir, pour des applications de décontamination d'effluents hydrogénés très faiblement tritiés.

Références

- [1] D. LETERQ, H. GUIDON, "Séparation isotopique de l'hydrogène", *chocs*, **25**, p. 29-38 (2001).
- [2] A. S. HOREN, M. W. LEE, "Metal Hydride Based Isotope Separation – Large-Scale Operations", *Fusion Technology*, **21**, p. 282-286 (1992).
- [3] D. DUCRET et Al., "Separation of hydrogen isotopes by Thermal Cycling Absorption Process: an experimental device", *Fusion Science and Technology*, **41**, p. 1092-1096 (2002).
- [4] C. LAQUERBE et Al., "Optimization of a thermal cycling absorption process design by dynamic simulation", *Fusion Science and Technology*, **41**, p. 1121-1125 (2002).

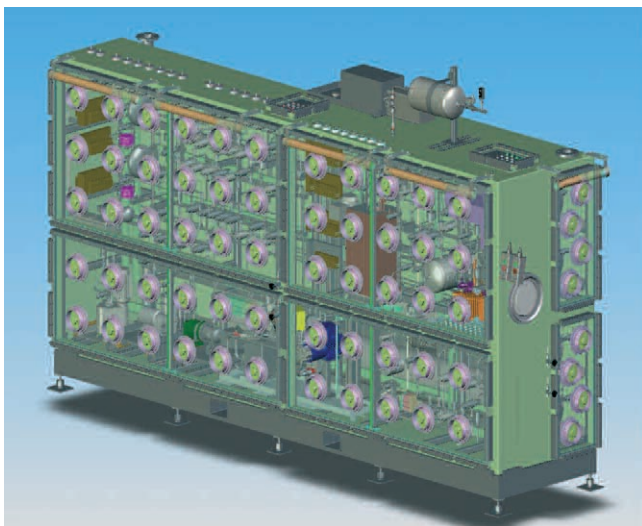


Figure 2
Vue 3D de la boîte à gants TCAP.
Modèle 3D du procédé TCAP implanté en boîte à gants réalisé sous SolidWorks™.