

LE PREMIER REACTEUR NUCLEAIRE, LA PRODUCTION DE PLUTONIUM ET SON EXTRACTION PAR DES PROCEDES CHIMIQUES

par

Glenn T. Seaborg

PRESIDENT DE LA COMMISSION DE L'ENERGIE ATOMIQUE DES ETATS-UNIS

Le présent numéro spécial du Bulletin de l'Agence commémore le vingtième anniversaire de la mise en service du premier réacteur nucléaire, au Laboratoire de métallurgie de l'Université de Chicago, le 2 décembre 1942. Cette première expérience, généralement considérée comme marquant le début de l'ère atomique, avait à l'époque un seul objectif : montrer qu'il était possible de fabriquer quantitativement le nouvel élément, le plutonium, en soumettant l'uranium naturel à une réaction nucléaire en chaîne.

Une fois démontré qu'un tel réacteur nucléaire était réalisable, deux problèmes importants restaient à résoudre. Le premier était de construire un réacteur nucléaire de ce genre, utilisant l'uranium naturel, qui puisse fonctionner à une puissance telle qu'elle permette de produire des quantités suffisantes de plutonium dans le bref délai imparti. Le second problème était de mettre au point des méthodes chimiques pour séparer, dans ce bref délai, le plutonium de l'uranium et des quantités énormes de produits de fission radioactifs en présence.

Tels étaient les deux problèmes très difficiles que le "Projet Plutonium" américain avait à résoudre. Les solutions de ces problèmes étaient, dans une grande mesure, indépendantes l'une de l'autre et le programme de recherche concernant chacun d'eux était confié à des chercheurs spécialisés dans deux domaines différents : la physique et la chimie.

On n'étudiera dans cet article que le deuxième de ces problèmes, à savoir, la mise au point de méthodes chimiques de séparation et de purification du plutonium. Heureusement, cette tâche a été facilitée par les nombreux travaux de chimie déjà consacrés à l'étude de cet élément.

Le plutonium avait été découvert près de deux ans auparavant et ses propriétés chimiques avaient déjà fait l'objet de nombreuses études. Il a été isolé au cours d'expériences faites entre décembre 1940 et janvier-février 1941, à la suite de la production et de l'identification chimique de l'isotope de nombre de masse 238, produit par bombardement de l'uranium au moyen de deutérons obtenus à l'aide d'un cyclotron de 60 pouces [152,4 cm] à Berkeley, Univer-



Glenn T. Seaborg

sité de Californie. L'isotope fissile du plutonium, le plutonium-239, dont la production constituait l'objectif du "Projet Plutonium", a été obtenu pour la première fois au début de 1941 par bombardement d'uranium naturel au moyen d'un flux intense de neutrons, obtenu à l'aide du même cyclotron. Le fait que sa fission peut être réalisée au moyen de neutrons lents a été démontré également pour la première fois le 28 mars 1941, au Laboratoire de Berkeley, avec des neutrons obtenus à l'aide d'un cyclotron de 37 pouces [93,98 cm]. Le grand intérêt que présente cet isotope pour la production d'énergie nucléaire se trouvait ainsi démontré.

Les propriétés chimiques du plutonium ont alors été étudiées par la méthode des indicateurs, à l'Université de Californie, pendant à peu près un an,

en utilisant surtout le plutonium-238. Ces expériences ont montré que le plutonium comporte au moins deux états d'oxydation; à l'état inférieur, ses propriétés chimiques ressemblent beaucoup à celles des ions des terres rares et, à l'état supérieur, elles sont analogues à celles de l'ion uranyle. En outre, on a démontré qu'il était possible d'obtenir du plutonium à l'état d'oxydation supérieur en traitant le plutonium à l'état d'oxydation inférieur par des agents oxydants comme les ions persulfate et argentique, les ions dichromate, permanganate ou périodate, et que l'état supérieur pouvait être ramené à l'état inférieur par traitement au moyen d'agents réducteurs comme l'anhidride sulfureux ou l'ion brome.

On a démontré qu'à l'état d'oxydation inférieur, le plutonium est entraîné par des composés tels que les fluorures des terres rares, mais qu'il est soluble en présence de ces fluorures lorsqu'il se trouve à l'état d'oxydation supérieur. En partant de ces expériences, on a établi le principe du cycle oxydation-réduction - principe qui est à la base des procédés chimiques qui devaient être ultérieurement mis au point au cours du "Projet Plutonium".

Lorsque les hommes de science des diverses disciplines se réunirent au Laboratoire de métallurgie, au début de 1942, et que les chimistes et ingénieurs chimistes furent chargés de mettre au point le procédé de séparation chimique, les premières études faites à Berkeley servirent de point de départ à leurs travaux. Pendant les premiers mois, les recherches menées au Laboratoire de métallurgie ont porté sur les méthodes de séparation qui pouvaient être appliquées, notamment la précipitation, l'extraction par solvants, la volatilité, l'adsorption-élution et les procédés pyrométallurgiques et pyrochimiques. En fait, tous les procédés chimiques déjà employés dans les usines de plutonium ou encore à l'étude figuraient dans ce premier programme de recherches de 1942. On décida, avant la fin de 1942, d'employer un procédé fondé sur la précipitation, car il semblait offrir les meilleures chances d'obtenir au moins un succès limité dans le bref laps de temps imparti, bien qu'il ne fût pas en fin de compte très efficace et qu'il ne permît pas de récupérer l'uranium pour l'utiliser à nouveau.

Le problème consistait à mettre au point un procédé pour obtenir, à partir de plusieurs tonnes d'uranium d'une teneur maximum de 250 ppm, des quantités suffisantes de plutonium d'une grande pureté. A cause de cette faible teneur, il n'était pas possible de précipiter les composés de plutonium; tout procédé de séparation par précipitation devait donc être fondé sur des phénomènes de coprécipitation, c'est-à-dire sur l'emploi d'"entraîneurs" de plutonium. En outre, il fallait séparer le plutonium des produits de fission radioactifs qui se forment dans l'uranium en même temps que le plutonium, par suite

de la fission de l'uranium-235, de manière que le produit final contienne moins d'une partie pour 10^7 parties de produits radioactifs initialement présents en même temps que le plutonium. Cette condition devait être réalisée pour que le plutonium puisse être manipulé sans danger, car s'il n'était pas séparé des produits de fission, le plutonium obtenu pour chaque tonne d'uranium posséderait une activité de plus de 10^5 curies de rayonnements gamma. Le procédé consistant à éliminer les produits de fission est appelé "décontamination". Ce procédé est donc essentiellement caractérisé par le fait qu'il est nécessaire de séparer complètement le plutonium des divers éléments et de mener cette séparation à bien en opérant à distance, derrière de grands écrans, afin que le personnel chargé de l'opération soit protégé contre l'irradiation.

On pensait que le procédé de séparation pouvait être fondé sur l'emploi du plutonium sous les deux états d'oxydation découverts au cours des premiers travaux accomplis à l'Université de Californie, mais il restait à mettre au point certains détails comme celui du choix des entraîneurs et des agents d'oxydation et de réduction. L'entraînement quantitatif par le phosphate de bismuth du plutonium (IV) contenu dans une solution acide, phénomène imprévu découvert en décembre 1942, et le non-entraînement, prévu cette fois, du plutonium (VI) par le même composé, ont joué un rôle décisif dans la mise au point du procédé utilisé. Ce procédé, dit au phosphate de bismuth, a été appliqué de la manière suivante: on a dissous dans l'acide azotique de l'uranium soumis à une irradiation par neutrons, et, après avoir ajouté de l'acide sulfurique pour empêcher la précipitation de l'uranium, on a fait coprécipiter le plutonium (IV) par le phosphate de bismuth. Le précipité était dissous dans l'acide azotique, le plutonium (IV) était transformé en plutonium (VI) par oxydation et l'on obtenait, comme sous-produit, un précipité de phosphate de bismuth que l'on éliminait, le plutonium (VI) restant en solution. Après réduction du plutonium (VI) en plutonium (IV), on faisait à nouveau coprécipiter celui-ci par le phosphate de bismuth, et l'on reproduisait tout le cycle de "décontamination". On a remplacé ensuite l'entraîneur utilisé par du fluorure de lanthane et réalisé un cycle oxydation-réduction analogue afin d'obtenir une décontamination plus complète et un produit plus concentré. L'isolement final a alors été réalisé, sans intervention d'entraîneurs, par précipitation du peroxyde de plutonium contenu dans la solution acide.

Le procédé au phosphate de bismuth a été mis au point en un temps remarquablement court. Le plutonium a été découvert en décembre 1940, et un composé de plutonium a été isolé pour la première fois en août 1942. La propriété du phosphate de bismuth d'entraîner le plutonium a été découverte en décem-

bre 1942, et le procédé au phosphate de bismuth a été inauguré avec succès dans l'installation-pilote des Laboratoires Clinton, Tennessee, en décembre 1943. Ainsi, en l'espace de moins d'un an, avant que la quantité totale de plutonium produite par bombardement dans un cyclotron ait atteint deux milligrammes, le procédé avait été presque entièrement mis au point. Les installations de traitement chimique de Hanford, Washington, ont commencé à fonctionner en décembre 1944. En tout, quatre années seulement se sont écoulées entre la découverte du plutonium et le moment où il a été isolé pour la première fois en quantité. Pour arriver à ce résultat, non seulement il a fallu disposer d'immenses ressources financières et d'ingénieurs et de chimistes compétents, préparer soigneusement des plans, obtenir en priorité des matières, de la main-d'oeuvre qualifiée et des moyens de construction, mais il a fallu aussi de l'imagination et beaucoup de chance.

On avait pu, grâce à des recherches sur des quantités infinitésimales, établir, dans ses grandes lignes, un procédé de séparation chimique, mais on ne pouvait définir ce procédé avec précision avant d'essayer d'utiliser le plutonium au taux de concentration pratiqué dans les grandes usines de séparation. Cet essai était d'autant plus nécessaire que l'on connaissait mal le mécanisme suivant lequel le plutonium (IV) est entraîné par le phosphate de bismuth, et que beaucoup doutaient que ce phénomène puisse se produire avec du plutonium présentant le même taux de concentration qu'à l'usine de Hanford. L'essai devait être effectué aussitôt que possible après la découverte du procédé au phosphate de bismuth et il eut lieu au Laboratoire de métallurgie, au début de 1943, alors que le plutonium avait été isolé à l'automne précédent. Cet essai a donné des résultats positifs bien que l'on ne disposât que de quantités de plutonium de l'ordre du microgramme, en opérant à l'échelle dite ultramicrochimique. Les quantités de plutonium-239, de l'ordre du microgramme, avaient été obtenues par irradiation d'énormes quantités

d'uranium au moyen de neutrons produits dans des cyclotrons.

Avant cet essai, effectué à l'échelle ultramicrochimique, du procédé au phosphate de bismuth, on avait pour la première fois isolé le plutonium au Laboratoire de métallurgie. Le premier composé chimique du plutonium, exempt d'entraîneur et de toute autre substance étrangère, a été obtenu le 18 août 1942. Cette date historique marque la première apparition de l'élément plutonium et, en fait, la première apparition d'un isotope produit par synthèse d'un élément quelconque. Le 10 septembre 1942 a eu lieu la première pesée d'un composé pur de plutonium; elle a porté sur 2,77 microgrammes de l'oxyde de plutonium (PuO_2). Il y a donc maintenant vingt ans que l'élément plutonium a été isolé et pesé pour la première fois.

Le procédé au phosphate de bismuth a été appliqué pendant plusieurs années à l'usine de Hanford, et il constitue indubitablement un succès pour les méthodes de recherche en radiochimie et en ultramicrochimie. Ce procédé a été finalement remplacé par des méthodes d'extraction par solvants.

Il n'est pas possible dans ce court article de décrire le rôle que le plutonium pourrait jouer en temps de paix dans le domaine de l'utilisation de l'énergie atomique à des fins pacifiques comme source d'énergie dans d'autres applications particulières. Le plutonium est riche de possibilités, et son utilisation pourrait prendre un grand essor dans ces domaines. Ce serait sortir aussi du cadre de cet article que de décrire la découverte d'autres éléments transuraniens et les premiers travaux dont ils ont fait l'objet, ainsi que les rapports entre ces travaux et ceux qui ont été consacrés au plutonium. Ces éléments appartiennent à la même famille que le plutonium et la description des liens qui les unissent aurait aussi un grand intérêt.