

Séparation des isotopes de l'hydrogène par adsorption sur zéolithes: rôles de la composition chimique, de la taille des pores et de la température

M. Giraudet

ASTER, Dept. INTERFACES, Laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne, UMR 6303 CNRS-Université de Bourgogne Franche-Comté, 9 Av. Alain Savary, BP 47870, 21078 DIJON Cedex, FRANCE

Dans l'industrie nucléaire, la séparation des isotopes de l'hydrogène pour la récupération et le recyclage des isotopes lourds peut être effectuée par adsorption sélective sur des zéolithes à basse température (40 – 100 K). Ce procédé de séparation, appelé « *tamissage quantique* », repose sur l'adsorption préférentielle des isotopes les plus lourds à basse température par des solides microporeux dont les pores ont des dimensions comparables au diamètre cinétique des molécules d'hydrogène (~ 0,29 nm). Cependant, les mécanismes de coadsorption mis en jeu et les paramètres physico-chimiques du matériau adsorbant qui gouvernent cette sélectivité ne sont pas encore bien connus.

Afin d'identifier les caractéristiques de l'adsorbant (rapport Si/Al, nature du cation compensateur de charges, géométrie et diamètre d'ouverture des pores) qui conduisent à une adsorption préférentielle de l'isotope le plus lourd de l'hydrogène, les propriétés des deux structures zéolithiques FAU et LTA ont été étudiées en détail. Des matériaux avec différents cations compensateurs de charge (Li, Na, K, Mg, Mn, Ca, Sr, Ba) ont été préparés et, pour la première fois, leurs sélectivités thermodynamiques d'adsorption du deutérium par rapport à l'hydrogène ont été déterminées dans un large domaine de pression (0,1 – 1000 hPa) et de température (50 – 100 K). Deux approches complémentaires ont été mises en œuvre pour accéder aux sélectivités d'adsorption : calculs par la théorie IAST (*Ideal Adsorbed Solution Theory*) à partir des isothermes d'adsorption des corps purs et mesures directes par manométrie de coadsorption couplée à la spectrométrie de masse.

Ces deux approches ont révélé des tendances similaires, quelle que soit la zéolithe. Il est démontré que la sélectivité d'adsorption est toujours en faveur du deutérium à faible remplissage et qu'elle diminue à plus fort remplissage. Elle est fortement influencée par la taille des cations compensateurs de charges et leur localisation dans les cages de la zéolithe. Par ailleurs, il a été établi que la température joue un rôle clé dans le processus de séparation et que l'évolution de la sélectivité peut être prédite simplement à partir des bases théoriques sur lesquelles repose le tamissage quantique. L'ensemble des résultats obtenus a permis de déterminer la formulation de l'adsorbant ainsi que les conditions opératoires optimales pour le développement d'un procédé de séparation efficace des isotopes de l'hydrogène.