

# Bulletin de l'Union des Physiciens

Association de professeurs de Physique et de Chimie

## Le cycle du combustible nucléaire

### INTRODUCTION.

Encore inconnue il y a quarante ans, l'énergie atomique a pris un essor spectaculaire à l'issue de la Seconde Guerre mondiale, d'abord dans le secteur militaire, ensuite — et de façon plus constructive — pour la production d'énergie. Aujourd'hui, alors qu'une crise mondiale se développe en ce domaine parce que certaines sources risquent de se tarir à plus ou moins brève échéance, l'énergie nucléaire vient d'atteindre sa maturité et fait l'objet d'une exploitation importante par les producteurs d'électricité dans la plupart des grands pays industriels. La France, pour sa part, est dans le « peloton de tête ». Elle a lancé un programme d'équipement ambitieux qui prévoit d'assurer notre approvisionnement en énergie en faisant appel au nucléaire pour 20 % de nos besoins en 1985 et pour un tiers, peut-être, à la fin du siècle.

Une des branches les plus importantes de l'industrie nucléaire a pour mission d'alimenter les réacteurs en combustible. Cette tâche est celle des mineurs, des chimistes, des physico-chimistes et des métallurgistes qui extraient, concentrent, raffinent, enrichissent et façonnent l'uranium et qui, après le séjour de celui-ci en pile, récupèrent et recyclent le plutonium engendré par la réaction en chaîne. Toutes ces transformations constituent ce que l'on appelle le CYCLE DU COMBUSTIBLE. Elles sont rappelées sur les figures nos 1 et 2. La fig. n° 2 montre les quantités de matières nucléaires mises en jeu pour une puissance installée de 1 000 MWE (à raison de 6 600 h par an) pour les trois principales filières de réacteurs :

- UNGG (Uranium Naturel - Graphite - Gaz),
- Eau légère (PWR : centrales à eau pressurisée),
- Neutrons rapides.

Le cycle de la filière à neutrons rapides diffère peu de celui de la filière à eau légère, si ce n'est que l'étape « enrichissement »

est court-circuitée puisque la matière fissile incorporée à l'uranium naturel dans le combustible est le plutonium.

Si l'on considère le seul programme français, le total cumulé d'oxyde d'uranium enrichi utilisé pour les centrales de l'E.d.F. sera de 10 000 tonnes en l'an 1990. A la même époque, la production annuelle de combustible correspondra à 10 000 tonnes d'uranium naturel raffiné, 1 000 à 1 500 tonnes d'oxyde d'uranium enrichi, 100 tonnes de combustibles au plutonium. Un tel programme implique un approvisionnement sûr en uranium et une maîtrise parfaite de toutes les étapes du cycle du combustible. Cette maîtrise s'entend aussi bien sur le plan de l'économie que sur celui de la sûreté.

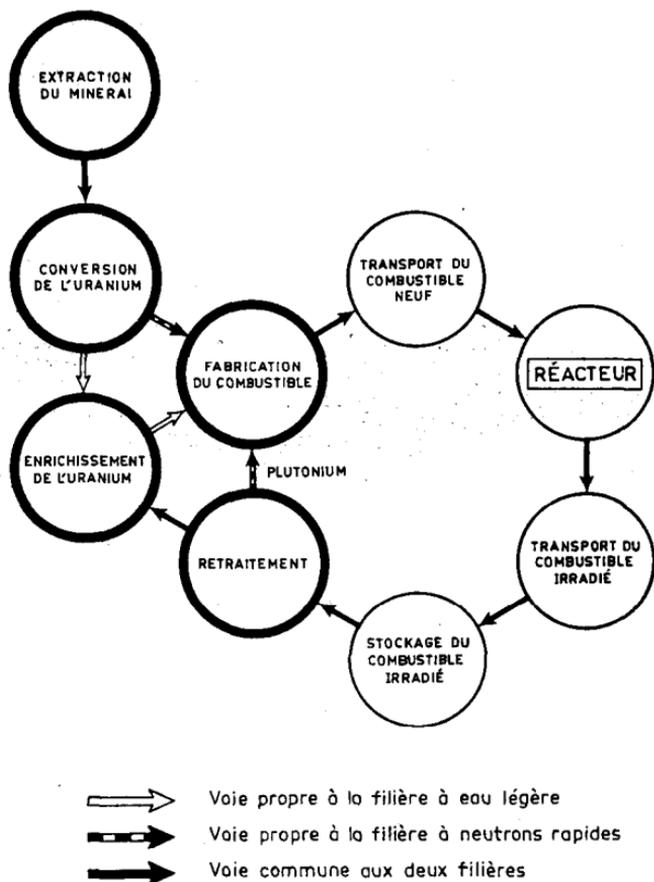


Fig. 1. — Le cycle du combustible.

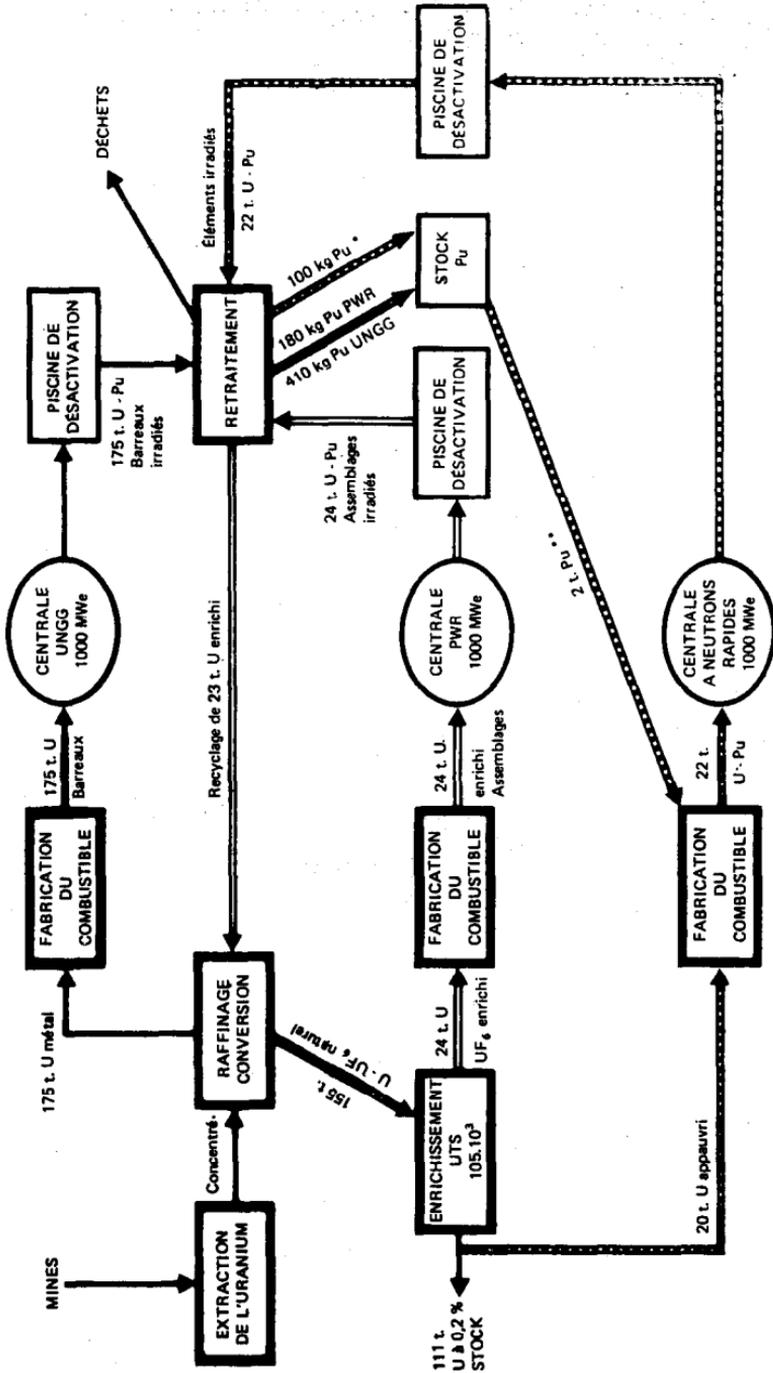


Fig. 2. — Le cycle du combustible irradié (quantités de matières nucléaires mises en jeu).

Remarques : Les quantités sont données pour un fonctionnement de 6 000 h/an à l'équilibre  
 \* Production nette de surrégénération  
 \*\* Besoins pour une recharge

## I. L'APPROVISIONNEMENT EN URANIUM NATUREL

### I.1. Les ressources en uranium.

Les documents internationaux publiés par l'O.C.D.E. et l'A.I.E.A. et concernant le monde à économie de marché, évaluent les ressources en uranium « raisonnablement assurées » à 1 650 millions de t à moins de 80 \$/kg d'U et 0,54 million de t entre 80 \$ et 130 \$/kg soit au total un peu plus de 2 millions de t auxquelles s'ajoute une quantité équivalente de ressources supplémentaires estimées et 6,5 à 15 millions de t de ressources dites spéculatives.

Ainsi, d'une façon générale la comparaison des prévisions d'équipement nucléaire (1 000 GWe en 2000 et 4 500 d'U par GWe pour 30 ans) avec les estimations des ressources ne fait pas apparaître de problème de fourniture d'uranium d'ici l'an 2000. Au-delà, le recours à des filières économisant cette matière première c'est-à-dire les surgénérateurs apparaît nécessaire notamment pour les pays importateurs d'uranium.

Les ressources en uranium sont cependant inégalement réparties dans le monde et localisées essentiellement en Amérique du Nord (U.S.A., Canada, 40 %) en Afrique (Afrique du Sud, Namibie, Niger, Gabon, 20 %), en Europe (France, Suède, Espagne, Portugal, Yougoslavie, 20 %), en Australie (10 %) et en Amérique Latine (réserves encore mal connues) et les pays qui en sont dépourvus peuvent craindre des difficultés d'approvisionnement à relativement court terme. Pour ces pays et même pour la France qui dispose de 2 % des réserves du monde occidental, il conviendra d'adopter une politique d'approvisionnement basée sur :

- le développement des ressources, par la poursuite d'un effort intensif de prospection sur le territoire national et à l'extérieur (diversification des ressources extérieures),
- la recherche de méthodes pour exploiter les minerais pauvres,
- l'économie d'uranium par le développement des surgénérateurs à long terme et par le développement du retraitement (recyclage de l'uranium) et de l'enrichissement (diminution de la teneur de rejet) à moyen terme.

#### CAS DE LA FRANCE.

Le Commissariat à l'Energie Atomique s'est dès son origine en 1945, lancé dans un programme très ambitieux de prospection en uranium sur le territoire national, en Afrique, à Madagascar puis sur d'autres continents.

Cet effort de prospection associé à la mise en place d'une importante industrie minière de l'uranium s'est avéré fructueux et a placé la France dans une position privilégiée sur le marché

de l'uranium (4<sup>me</sup> ou 5<sup>me</sup> producteur mondial en 1979) (1) compensant ainsi quelque peu sa pauvreté relative en matières énergétiques fossiles.

De 1948 à 1979, des gisements importants ont été mis en évidence et exploités par le C.E.A. dont les activités minières ont été reprises par sa filiale, la C.O.G.E.M.A., en 1975.

La C.O.G.E.M.A. est ainsi devenue le premier producteur français d'uranium (80 %) mais d'autres sociétés françaises s'intéressent à cet élément et notamment, dans l'ordre alphabétique :

- La C.I.M. (Compagnie Industrielle et Minière, filiale de RHÔNE-POULENC, qui a une activité de recherche d'uranium en France et à l'étranger (Espagne...).

- DONG-TRIEU, filiale du Groupe EMPAIN-SCHNEIDER, qui a mis en exploitation en 1979 un important gisement dans la Creuse (200 t. an<sup>-1</sup>) et prospecte en France et à l'étranger.

- La Société Nationale ELF AQUITAINE qui poursuit une activité de prospection en France et à l'étranger (Canada, U.S.A., Australie...).

- IMÉTAL qui, par l'intermédiaire de la C.F.M.U., exploite une usine en Lozère (Langogne, 200 t. an<sup>-1</sup>). Il est aussi opérateur des exploitations de la C.O.M.U.F. au Gabon et des mines d'AMOK au Canada. Il participe à une Société du Niger.

- MINATOME (filiale de P.U.K. et de C.F.P.) qui dispose de participations au Niger, au Gabon, au Canada et en Namibie (gisement de Rössing) et qui prospecte en France, aux U.S.A., en Australie, en Colombie. MINATOME contrôle la S.C.U.M.R.A. qui possède des gisements de Sain-Pierre-du-Cantal (90 à 100 t. an<sup>-1</sup>) et de Bertholène dans le Rouergue (100 à 200 t. an<sup>-1</sup>).

Aujourd'hui, le potentiel minier de la C.O.G.E.M.A. comprend essentiellement en France :

- les divisions minières de Vendée (600 t. an<sup>-1</sup>), du Forez (épuisée en 1980) et de la Crouzille (Limousin) (1 000 t. an<sup>-1</sup>),

- les usines de concentration de minerais de l'Ecarpière (Vendée) et de Bessines exploitées par la S.I.M.O. (Société C.O.G.E.M.A.-P.U.K. dont la C.O.G.E.M.A. a pris le contrôle),

- la Division qui sera chargée d'exploiter les gisements de Lodève dans l'Hérault (900 t. an<sup>-1</sup>),

---

(1) En 1979, les productions nationales ont été : 2 329 t pour la France, 14 653 t pour les U.S.A., 13 045 t pour l'Afrique, 7 094 t pour le Canada. A l'horizon 1985, la France devrait au total intervenir sur le marché de l'uranium à hauteur d'environ 11 000 t d'U/an.

- un gisement en cours de développement en Nord Aquitaine (réserves supérieures à 10 000 t. d'U),
- une participation dans la Société C.O.M.U.R.H.E.X. qui sera définie dans ce qui suit.

A l'étranger, la C.O.G.E.M.A. possède des participations dans :

- la Compagnie des Mines d'Uranium de Franceville, C.O.M.U.F. au Gabon (part française de 67,5 %) (1 000 t. an<sup>-1</sup>),
- la Société Minière de l'A.I.R., S.O.M.A.I.R., au Niger (part française de 54 %) (2 500 t. an<sup>-1</sup>),
- la Compagnie des Mines d'Akouta, C.O.M.I.N.A.K., au Niger (part française de 34 %) (2 000 t. an<sup>-1</sup>),
- et de la Compagnie A.M.O.K. au Canada (1 500 t. an<sup>-1</sup>).

Elle dispose en outre d'un certain nombre de permis de recherches en France et à l'étranger.

Au total, on estime que les réserves prouvées en France sont de l'ordre de 100 000 tonnes d'uranium contenu. La production dans l'Hexagone qui a été de 2 200 tonnes en 1978 devrait atteindre 2 800 à 3 200 tonnes vers 1985.

Ces ressources nationales doivent permettre de couvrir les besoins propres à hauteur de 70 % en 1980, 55 % en 1983 et 45 % en 1985 en considérant les données du tableau suivant :

Année	1977	1980	1985	1990
Puissance installée (GWe) ..	4,6	17,5	39,4	65,2
Besoins annuels (t. d'U) .....	2 450	3 600	7 300	9 750
Besoins cumulés (t. d'U) ....	2 450	12 000	41 600	86 750

Pour compléter ses approvisionnements, la France peut compter sur ses participations à l'exploitation des mines étrangères. Néanmoins, elle doit d'ores et déjà intensifier la prospection et l'effort de diversification et se lancer sur les voies d'économie d'uranium (minerais pauvres, retraitement, surgénérateurs).

Le marché de l'uranium, essentiellement lié à l'équilibre de l'offre et de la demande et aux politiques nationales en matière d'énergie nucléaire, est très complexe et difficilement prévisible. On s'attend cependant à un accroissement de la demande au cours de la décennie 80 et une stabilisation des cours. Il existe une référence de prix reconnue internationalement par les vendeurs et les acheteurs qui se situait entre 40 et 45 US \$/livre d'U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> au cours des années 1978-1979.

## 1.2. Les méthodes d'extraction de l'uranium (1).

### a) CARACTÉRISTIQUES DES GISEMENTS.

L'uranium est un métal assez répandu dont la présence est en général liée à des roches acides ignées ou à des roches qui en sont dérivées. Les gisements à minéralisation diffuse filonienne ou sédimentaire sont le plus souvent groupés dans des régions uranifères.

*Les gisements à minéralisation diffuse* où l'uranium se trouve sous forme d'uraninite (\*) se rencontrent dans des pegmatites ou des granites à faciès pegmatites.

*Les gisements filoniens* sont également associés aux roches cristallines acides ou métamorphiques : l'uranium s'y trouve le plus souvent sous forme de pechblende (\*) ou de minéraux secondaires oxydés.

*Les gisements sédimentaires* les plus répandus (80 %) se présentent sous plusieurs formes dont deux seulement donnent lieu actuellement à des exploitations.

- Ceux des bassins continentaux dont le remplissage gréseux ou argileux provient de la destruction de roches granitiques ou volcaniques où l'uranium se trouve sous forme de pechblende ou de minéraux secondaires.
- Ceux des formations conglomératiques du Canada et d'Afrique du Sud.

### b) LE TRAITEMENT DES MINERAIS.

Les minerais extraits des mines souterraines ou à ciel ouvert sont sélectionnés par comptage radiométrique et contiennent en général 0,1 à 0,5 % en uranium. Ces faibles teneurs obligent à les concentrer au plus près des mines. L'échec des procédés gravimétriques et de flottation a conduit à un traitement chimique, plus onéreux bien sûr, puisque la totalité du minerai doit être attaquée par l'acide sulfurique ou plus exceptionnellement par voie alcaline lorsqu'il s'agit d'un minerai riche en éléments consommateurs d'acide (minerai sédimentaire de Lodève).

---

(1) Certains développements de ce chapitre sont tirés de discussions avec M. Michel P., Chef de service à la branche Uranium de la C.O.G.E.M.A.

(\*) *N.D.L.R.* : L'uraninite et la pechblende sont deux oxydes d'uranium : l'uraninite est constituée de cristaux cubiques de  $UO_2$  ; la pechblende est toujours mal cristallisée. Ces oxydes sont non-stoechiométriques avec notamment des ions de U(VI). La pechblende contient souvent du thorium (Th).

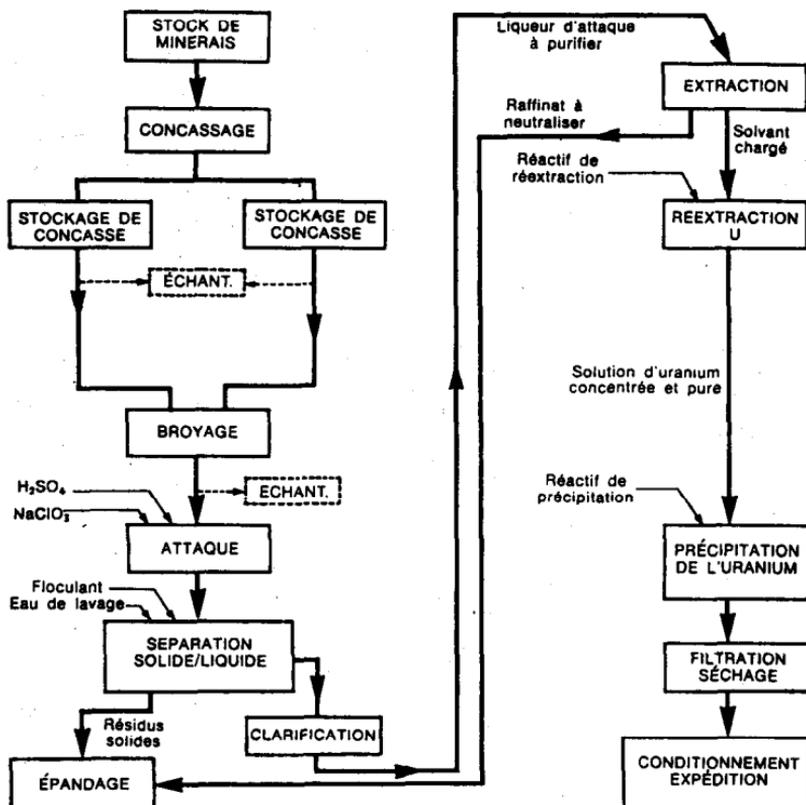


Fig. 3. — Schéma de principe du traitement chimique des minerais d'uranium.

• *Le traitement type par voie acide* consiste (comme le montre la fig. n° 3) à concasser le minerai à 15/85 mm, puis à le broyer à 400-800 microns de façon à libérer l'uranium. Le minerai est ensuite soumis à une attaque en milieu sulfurique dilué, en présence d'un oxydant (chlorate de sodium) pour oxyder l'uranium de la valence 4 à la valence 6 sous laquelle il devient soluble. Le minerai attaqué est séparé de la liqueur et lavé avec de l'eau acidulée par des décantations successives à contre-courant ou par filtration.

L'attaque fournit des solutions uranifères diluées (300 à 1 500 mg $l^{-1}$ ) contenant l'uranium (90 à 98 %) et des impuretés (Fer, Molybdène, Aluminium, Vanadium, etc.). Ces solutions clarifiées sont purifiées et concentrées au moyen d'échangeurs d'ions (résines ou extraction à l'aide d'un solvant liquide de la famille des amines). L'éluat obtenu, riche en uranium, est par la suite

traité par la magnésie, ou la soude ou l'ammoniaque à pH 7 à 8 en vue de précipiter l'uranate de magnésium ou de sodium ou le diuranate d'ammonium qui sont séchés et expédiés à l'usine de raffinage.

Les effluents solides sont généralement rejetés dans un champ d'épandage après neutralisation à la chaux et les liquides sont également neutralisés à la chaux et traités pour éliminer le radium avant rejet (coprécipitation du sulfate de Ra avec le sulfate de Ba par addition de  $\text{Cl}_2\text{Ca}$ ).

Une variante de ce procédé acide, qui s'applique aux minerais à faible teneur, consiste à effectuer l'attaque en arrosant par l'acide sulfurique dilué le minerai brut déposé en tas sur des aires imperméables permettant la récupération et le recyclage d'une partie du réactif. Cette méthode appelée lixiviation en tas est appliquée en France depuis 1958.

• *Le traitement par voie alcaline* consiste à attaquer le minerai en autoclaves sous pression au moyen d'un mélange carbonate-bicarbonate de sodium en présence d'oxygène pour former  $\text{UO}_2\text{Na}_4(\text{CO}_3)_3$  soluble. La pulpe obtenue est ensuite filtrée et la liqueur résultante traitée par la soude pour précipiter l'uranate de soude. Les eaux-mères de précipitation sont recarbonatées et recyclées pour l'essentiel à l'attaque. Dans le cas particulier du minerai de Lodève, ce procédé a dû être adapté pour tenir compte de la présence dans le minerai de sulfures, de molybdène et de matières organiques.

Hormis ces procédés acide et alcalin utilisés industriellement, la C.O.G.E.M.A. et les producteurs d'uranium se préoccupent de développer de nouveaux procédés pour traiter les ressources annexes en uranium qui peuvent s'avérer indispensables à l'avenir.

Ces procédés concernent :

- l'exploitation des minerais classiques à faible teneur soit par lixiviation en tas, soit par accroissement de la capacité des usines,
- le traitement de minerais nouveaux difficiles à exploiter dans les conditions habituelles, par lixiviation *in situ* ou utilisation de résines en pulpe,
- l'emploi de sources auxiliaires d'uranium comme l'acide phosphorique ou à long terme l'eau de mer,
- le développement de nouveaux procédés et appareillages (échangeurs d'ions en pulpe, broyeur semi autogène, filtres à bande, colonnes pulsées...).

### 1.3. Raffinage et conversion.

Les concentrés produits dans les nombreuses usines de traitement de minerais sont transportés dans les usines de raffinage et conversion. En règle générale, et à quelques variantes près, ils y subissent les opérations suivantes :

- Mise en solution du concentré dans l'acide nitrique.
- Filtration de la liqueur obtenue et traitement dans un cycle d'extraction liquide-liquide utilisant le sulfate de tributyle.
- La solution de réextraction est concentrée et précipitée par l'ammoniaque pour former le diuranate d'ammonium (DUA) insoluble qui est filtré.
- Le DUA est séché et grillé pour obtenir  $UO_3$  en four tunnel.
- L'oxyde  $UO_3$  est réduit par l'hydrogène en  $UO_2$  puis converti en  $UF_4$  au moyen de HF gazeux. En France, on effectue ces deux opérations dans un seul appareil appelé four en « L ».
- L' $UF_4$  peut être soit transformé en uranium métal par réduction au moyen de calcium ou de magnésium métallique (calcio ou magnésio-thermie) soit en hexafluorure ( $UF_6$ ) par réaction avec du fluor gazeux. L' $UF_6$  gazeux au-delà de  $65^\circ C$  est condensé pour stockage avant envoi à une usine d'enrichissement isotopique par diffusion gazeuse.

Dans le monde occidental, il existe cinq sociétés de raffinage et conversion :

- Deux aux U.S.A. (Ker Mac Gee à Gore Oklahoma et Allied Chemical à Metropolis - Illinois).
- Une au Canada (Eldorado Nuclear Corp, à Port Hope, Ontario).
- Une en Grande-Bretagne (BNFL à Springfields).
- Une en France, à Malvési et à Pierrelatte : la C.O.M.U.R.H.E.X. (55 % P.C.U.K., 35 % C.O.G.E.M.A. et 10 % I.M.E.T.A.L.). Les unités de C.O.M.U.R.H.E.X. ont une capacité de 10 000 tonnes d'U par an. L'usine de Malvési produit l' $UF_4$  et l'U métal. L' $UF_4$  est transformé en  $UF_6$  sur le site de Pierrelatte.

## II. L'ENRICHISSEMENT DE L'URANIUM

Que l'uranium soit destiné à alimenter les réacteurs électrogènes à eau légère ou les petites centrales du type « Thermos » affectées au chauffage urbain, il doit avoir une teneur de 3 à 4 % en isotope 235. L'uranium naturel n'en renfermant que 0,72 %, il faut donc augmenter artificiellement la concentration de cet isotope, c'est-à-dire procéder à l'ENRICHISSEMENT de l'uranium.

Historiquement, cette opération a d'abord été pratiquée afin de produire l'uranium 235 presque pur pour les premières bombes atomiques. Elle a donc été réalisée en premier lieu aux U.S.A. Lorsque l'enrichissement s'est avéré indispensable pour le développement de la filière à eau légère, ce pays a profité des moyens importants dont il s'était doté pour ses besoins militaires pour conquérir le marché civil à relativement bon prix. Ainsi, les Etats-Unis ont conservé le monopole de l'enrichissement pendant de longues années avant que les pays européens se décident à se mettre sur les rangs. De même, le procédé de diffusion gazeuse a été longtemps le seul à être exploité industriellement. Il représente encore — et de très loin — la plus grosse capacité mondiale de production, mais, là aussi, le « monopole » est en passe d'être entamé.

## II.1. Les procédés de séparation isotopique.

Pour obtenir l'uranium enrichi en isotope 235, il faut faire appel aux différences des propriétés physiques ou chimiques des isotopes d'un même élément. Ces différences sont toujours minimes, mais jamais inexistantes et de nombreux phénomènes peuvent être exploités. Compte tenu de son importance commerciale et stratégique, l'enrichissement de l'uranium a été largement étudié et plusieurs dizaines de procédés différents ont été examinés et comparés. On peut établir une distinction entre les procédés industriels à ce jour, ceux qui commencent à atteindre ce stade et ceux qui n'en sont encore qu'au stade du développement.

### II.1.1. PROCÉDÉS INDUSTRIELS.

#### II.1.1.1. *Abandonnés.*

Deux procédés de séparation qui avaient été utilisés pour la production d'uranium très enrichi dans le cadre du « Manhattan Project » ont été abandonnés au profit de la diffusion gazeuse dès que ce procédé a été mis en œuvre : ce sont la séparation électromagnétique et la diffusion thermique.

La séparation électromagnétique utilise la déviation différente des ions chargés électriquement sous l'action combinée d'un champ électrique et d'un champ magnétique. C'est le principe qui est utilisé dans les spectromètres de masse. L'effet séparatif est en principe infini, mais sa mise en œuvre pratique ne permet pas d'atteindre ces performances. C'est par ailleurs un procédé discontinu imposant des opérations chimiques délicates pour la récupération des produits collectés.

---

*Nota.* — La plupart des développements de ce chapitre sont tirés de l'article de M. MEZIN : Le devenir de la séparation isotopique de l'uranium. Revue Générale Nucléaire - mars-avril 1979 (n° 2).

La diffusion thermique est basée sur la différence de vitesse des molécules en fonction de la température. Ainsi, lorsque de l'hexafluorure d'uranium liquide est soumis à un gradient thermique important, les molécules légères tendent à se rassembler près de la paroi chaude. Mais l'effet séparatif est faible, les problèmes technologiques délicats et la consommation énergétique élevée.

#### II.1.1.2. *En exploitation.*

La diffusion gazeuse, bien qu'ayant été mise au point la dernière, a rapidement supplanté ses deux devancières. Ce procédé est basé sur la différence de vitesse de passage de molécules gazeuses en fonction de leur masse, au travers d'une paroi poreuse. A une température donnée, l'effet de séparation dépend de la racine carrée de l'inverse des masses moléculaires des deux isotopes. Avec de l'hexafluorure d'uranium  $UF_6$ , ce rapport est de :

$$\alpha = \sqrt{\frac{U^{238} F_6}{U^{235} F_6}} = \sqrt{\frac{352}{349}} = 1,0043.$$

Ce chiffre, indiquant l'effet obtenu sur la fraction enrichie par rapport à l'uranium initial, déjà faible, n'atteint en pratique que des valeurs voisines de 1,002, soit un coefficient d'enrichissement d'environ  $20 \cdot 10^{-4}$ . De ce fait, une usine d'enrichissement est constituée d'un nombre important d'étages en série : 1 400 dans l'usine Eurodif du Tricastin pour couvrir la gamme allant d'une production d'uranium enrichi à 3,25 % à un rejet d'uranium appauvri à 0,25 %.

Chaque étage de diffusion comprend trois composants principaux :

- le diffuseur qui renferme les barrières et, dans lequel le gaz entrant est séparé en deux fractions presque égales :
  - l'une enrichie lors de la diffusion au travers des barrières,
  - l'autre appauvrie que l'on recueille à la sortie des barrières,
- le compresseur qui assure la circulation des gaz entre les étages et le maintien des niveaux de pression ;
- l'échangeur qui enlève les calories de compression.

Les étages sont reliés entre eux de telle sorte que le flux d'alimentation d'un étage soit constitué à partir du flux enrichi provenant de l'étage immédiatement inférieur et du flux appauvri provenant de l'étage immédiatement supérieur. L'expérience cumulée sur ce procédé dans les usines de Oak Ridge, Portsmouth et Paducah aux Etats-Unis, Capenhurst en Grande-Bretagne et

Pierrelatte en France, est de l'ordre de 250 000 étages/an pour une capacité installée d'environ 18 millions d'U.T.S./an (\*). Des améliorations, en particulier sur les barrières, doivent permettre de réduire quelque peu la consommation électrique de ce procédé et lui conserver encore un certain avantage par rapport aux procédés concurrents nouveaux.

### II.1.2. PROCÉDÉS EN COURS D'INDUSTRIALISATION.

Seul, le procédé d'ultracentrifugation mérite à ce jour cette qualification.

Ce procédé est basé sur l'action de la force centrifuge sur de l' $UF_6$  gazeux contenu dans un bol tournant à grande vitesse. Le facteur de séparation  $\alpha$  dépend de la différence des masses, de la puissance 4 de la vitesse périphérique et de la hauteur du bol en rotation. Ainsi, à 293°K, lorsque la vitesse périphérique passe de 450 à 800 m/s, le facteur théorique passe de 1,13 à 1,48. C'est donc sur la recherche de matériaux à hautes performances, tel l'acier maraging, ou mieux, les fibres de carbone ou de kevlar, que le développement des bols est essentiellement axé. Néanmoins, il ne faut pas négliger les problèmes d'aérodynamique interne, ni de mise en parallèle, car la capacité individuelle d'une centrifugeuse reste faible, même pour les machines des plus évoluées : elle s'échelonne de quelques U.T.S./an pour celles installées dans les usines d'Urenco Centec, à plusieurs dizaines d'U.T.S./an, ou plus, dans celles que le D.O.E. met au point actuellement aux Etats-Unis en vue de la réalisation de l'extension de Portsmouth. Ainsi, bien qu'une usine n'aie que peu d'étages en série, la faible capacité unitaire implique un nombre très important de machines en parallèle.

A l'heure actuelle, deux tranches de 200 000 U.T.S./an de capacité sont en cours de mise en service progressif à Capenhurst (Grande-Bretagne) et à Almelo (Pays-Bas).

### II.1.3. PROCÉDÉS EN COURS DE DÉVELOPPEMENT.

Trois grandes classes de procédés sont l'objet de développements intensifs et semblent avoir atteint un stade qui permet d'envisager une percée éventuelle sur le marché. Ce sont :

— les procédés chimiques,

---

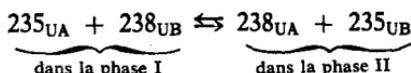
(\*) « L'U.T.S. (Unité de Travail de Séparation isotopique) a été définie de manière précise dans le B.U.P. n° 634 p. 1071. Pour fixer les idées, rappelons ici simplement que la production d'un kg/an d'uranium enrichi à 3,3 % (combustible PWR) requiert 6,5 kg/an d'uranium naturel et 4,5 UTS/an en considérant que l'on rejette un uranium appauvri à 0,25 %. L'enrichissement du combustible d'un réacteur PWR de 1 000 MW (recharge) nécessite environ 100 000 UTS/an. »

- les procédés aérodynamiques,
- les procédés photochimiques.

### II.1.3.1. Les procédés chimiques.

Parmi les nombreux types d'échanges possibles applicables à la séparation isotopique, soit liquide-liquide, liquide-solide, gaz-liquide ou gaz-solide étudié dans le monde et en particulier aux Etats-Unis, au Japon et en France, un procédé basé sur un système bien particulier a été annoncé en 1977 à la conférence de Salzbourg par le C.E.A. Ce procédé se distingue par un coefficient d'enrichissement environ double de celui des autres systèmes chimiques publiés à ce jour.

Si l'on considère deux composés UA et UB de l'uranium, l'équilibre entre l'uranium 235 et l'uranium 238 associés aux composés UA et UB dépend de la phase considérée (\*) :



Le facteur de séparation exprimé en fonction des nombres de molécules d'uranium 235 et d'uranium 238 dans chacun des composés s'exprime à l'équilibre par :

$$\alpha_{th} = \frac{\frac{^{235}\text{UB}}{^{238}\text{UB}}}{\frac{^{235}\text{UA}}{^{238}\text{UA}}} = 1 + 2 \varepsilon_{th}$$

Dans ce cas, le facteur de séparation est basé sur le rapport des teneurs du flux enrichi au flux appauvri et non du flux enrichi au flux initial, d'où le facteur 2 sur le coefficient d'enrichissement  $\varepsilon$ .

Une usine basée sur un procédé d'échange chimique comprend un ensemble d'unités de séparation isotopique aux extrémités riche et pauvre duquel des reflux permettent à la fois le recyclage d'une ou des phases et la conversion du composé UA en composé UB ou vice versa.

Bien qu'il s'agisse d'un procédé d'équilibre, donc thermodynamiquement réversible, les reflux portent sur des quantités impor-

---

(\*) N.D.L.R. : La nature des produits qui réagissent et la plupart des données qui interviennent dans ce procédé restent hautement confidentielles.

tantes comparativement aux productions enrichies et appauvries et leur consommation énergétique et leurs investissements pèsent sensiblement dans l'économie des procédés chimiques. L'autre partie de la consommation énergétique liée à la circulation des phases et au renouvellement des interfaces a un poids assez faible dans l'économie d'ensemble.

### II.1.3.2. *Les procédés aérodynamiques.*

#### a) LE PROCÉDÉ A TUYÈRES :

Le professeur BECKER qui le développe au Centre d'Etudes Nucléaires de Karlsruhe définit son procédé comme étant une centrifugation à paroi fixe. L'élément essentiel est une tuyère de très faible dimension (0,3 mm) et à paroi courbe (rayon 0,1 mm) à la sortie de laquelle le mélange entrant (vitesse 300 à 500 m/s) et contenant 5 % molaire d' $UF_6$  dans l'hydrogène est séparé en une fraction légère enrichie en uranium 235 et une fraction lourde appauvrie en uranium 235 et en hydrogène.

Le facteur de séparation est élevé : ainsi une usine basée sur les prototypes actuellement à l'essai (capacité de 500 000 à 1 000 000 U.T.S./an) pour une production enrichie à 3 % et un rejet à 0,3 % serait composée de 300 gros étages et 200 petits étages. La technologie de ce procédé est relativement simple mais il est l'un des plus gros consommateurs d'énergie.

#### b) LE PROCÉDÉ U.C.O.R. :

Ce procédé, étudié en Afrique du Sud, repose également sur des effets centrifuges sur un mélange  $UF_6-H_2$ .

Une usine pilote a été construite à Valindaba (Transvaal) et son bon fonctionnement annoncé en avril 1975. Depuis, un module prototype de taille réduite 6 000 à 8 000 U.T.S./an a été développé, étape intermédiaire en vue de la construction d'une usine commerciale de grande taille.

### II.1.2.3. *Les procédés photochimiques : le laser.*

Ces procédés sont basés sur une excitation sélective de l'espèce isotopique recherchée au moyen d'un rayonnement approprié et monochromatique que seul le laser permet d'obtenir. Deux voies peuvent être suivies, basées soit sur l'uranium atomique et les lasers à colorant, soit sur des composés moléculaires gazeux de l'uranium, essentiellement de l' $UF_6$ . Dans le premier cas, il s'agit d'obtenir une source d'uranium atomique de faible coût et facile à entretenir. Dans l'autre cas, il faut réaliser des lasers de puissance dans les bandes IR d'absorption de l' $UF_6$  ( $625\text{ cm}^{-1}$  ou bien  $1\,300$  et  $1\,800\text{ cm}^{-1}$ ). Une fois l'excitation sélective obtenue, il faut éviter son transfert, par exemple par choc, à l'isotope indé-

sirable ou sa perte par désactivation avant que la séparation effective ait eu lieu soit par photo-ionisation, soit par photochimie ou photo-prédissociation.

Parmi les procédés en cours de développement, c'est certainement sur le laser que pèsent le plus d'inconnues. C'est le procédé miracle par excellence qui, selon certains, produira du travail de séparation à la moitié ou au tiers du coût de la diffusion gazeuse et qui réduira les besoins en uranium naturel par abaissement de la teneur de rejet et surtout réutilisation des stocks d'uranium appauvri. Mais c'est un procédé encore au stade laboratoire et pour lequel les estimations de coût et de délai de mise au point semblent plutôt optimistes.

## II.2. L'industrie de l'enrichissement.

### II.2.1. DIFFUSION GAZEUSE.

Il existe au moins huit usines d'enrichissement par diffusion gazeuse dans le monde :

- 3 aux Etats-Unis : Oak Ridge, Paducah, Portsmouth.
- 1 (au moins) en Union Soviétique : Novo Sverdlovsk.
- 1 en Grande-Bretagne : Capenhurst.
- 1 en Chine : Lan-Tchéou.
- 2 en France : Pierrelatte et Le Tricastin (Eurodif) sur deux sites adjacents.

L'usine de Pierrelatte, construite pour des besoins militaires, a démarré en 1964. Elle fonctionne depuis sans défaillance, notamment grâce à la qualité des barrières de diffusion et au bon fonctionnement des compresseurs. Tout en produisant de l'uranium enrichi à 93 %, elle a servi de banc d'essai à l'usine civile d'EURODIF (3) qui a commencé à fonctionner en mars 1979. La capacité de cette usine est de 10,8 millions d'U.T.S./an, à comparer à la capacité totale installée aux Etats-Unis : 20 MUTS actuellement, 27 vers 1975.

Les carnets de commande d'Eurodif étant pratiquement complets jusqu'en 1990, une seconde usine civile d'enrichissement est à l'étude : COREDIF (4).

---

(3) EURODIF : France = 51,55 %, Italie = 16,25 %, Espagne = 11,10 %, Belgique = 11,10 %, Iran = 10 %.

(4) COREDIF : Eurodif = 51 %, COGEMA = 29 %, Iran = 20 %.

### III. LA FABRICATION DES COMBUSTIBLES

Les combustibles qui alimentent les réacteurs de puissance des filières à « eau légère » et « rapides » ont en commun les caractéristiques générales suivantes :

- La matière fissile est à l'état d'oxyde.
- Elle est disposée sous forme d'un empilement de pastilles frittées dans des gaines métalliques étanches et résistant à la corrosion.
- Ainsi remplis, ces tubes métalliques — appelés « aiguilles » ou « crayons » — sont rassemblés en faisceaux — ou « grappes » — par des pièces de structures métalliques qui assurent leur cohésion et leur rigidité, et permettent leur manutention (tête) et leur mise en place (pied).

Là s'arrête l'analogie car les autres caractéristiques diffèrent :

Caractéristiques	Filière	
	Eau légère	Neutrons rapides (cœur)
Composition de l'oxyde ..	UO <sub>2</sub> (3 à 4 % <sup>235</sup> U)	UO <sub>2</sub> - PuO <sub>2</sub> naturel 15 à 20 % ou appauvri
Nature de la gaine .....	Zircaloy	acier inoxydable
Section de l'assemblage ..	carrée	hexagonale
Pièces de structure .....	entretoises, tirants, etc. (grande variété de systèmes d'assemblage)	• rails aux extrémités, • étui rigide épais, • fil espaceur hélicoïdal autour de chaque aiguille.
Dimension des aiguilles	Longueur (m) ..	1,8 (Phénix) 2,7 Super-Phénix).
	Diamètre (mm) ..	6 à 9
Nombre d'aiguilles par assemblage .....	36 à 64 (BWR) 200 à 300 (PWR)	217 (Phénix) 271 (Super-Phénix)

Les assemblages combustibles pour les réacteurs à eau pressurisée sont fabriqués par des firmes privées : FRAMATOME et la

Société Franco-Belge de Fabrication de Combustibles (5) sous licence Westinghouse dans deux usines situées l'une à Dessel (Belgique), l'autre à Romans (France).

Portée à un niveau de 600 t/an en 1978 puis en 1 000 t/an en 1982, la capacité de fabrication se situera au niveau des grands producteurs mondiaux General Electric et Westinghouse aux U.S.A., R.B.U. en R.F.A. La fabrication des tubes de gainage en zircaloy, actuellement importés est maintenant assurée par Zircotube (filiale de de P.U.K. et de Framatome) à partir de demi-produits fournis par Ugine-Acier.

- *Le zircaloy II* : utilisé dans les réacteurs bouillants (BWR), contient du zirconium, de l'étain (1,5 %), du Fe (0,12 %), du chrome (0,10 %) et du nickel (0,6 %) ;
- *Le zircaloy IV* : utilisé dans les réacteurs pressurisés (PWR), ne diffère du précédent que par l'absence de nickel.

Les composants des assemblages « rapides » sont fournis par plusieurs industriels français mais la partie la plus importante de la fabrication est réalisée par le C.E.A. lui-même dans ses ateliers spécialisés de Cadarache. En effet, la manipulation de quantités importantes de plutonium pose de nombreux problèmes (radioactivité  $\alpha$  et  $\gamma$ , risques d'excursion/critique, protection contre tout détournement, etc.) auxquels seul le C.E.A. est à même de faire face actuellement.

#### IV. LE RETRAITEMENT DES COMBUSTIBLES

Au cours de son séjour en pile, le combustible subit d'importantes modifications sous l'effet de l'irradiation neutronique :

- la teneur en matière fissile diminue et la formation de plutonium ne compense qu'en partie la disparition progressive de l'uranium 235,
- de nouveaux éléments apparaissent : les produits de fission et les transuraniens, tous plus ou moins consommateurs de neutrons,
- le combustible change de structure, augmente de volume et les éléments combustibles ont tendance à se déformer et à se fissurer.

---

(5) FBFC - Actionnaires : Framatome, Westinghouse, MMN (Belgique) et PUK.

Ainsi, la teneur en matière fissile décroît, les poisons s'accumulent, les risques de rupture de gaine augmentent, les coefficients de transfert thermique baissent... Il arrive un moment où il faut sortir le combustible pour le renouveler si l'on ne veut pas compromettre le bon fonctionnement du réacteur. Ce moment arrive d'ailleurs bien avant que toute la matière fissile ait été consommée. Les combustibles sont alors extraits du réacteur et entreposés quelques années dans des « piscines » pour laisser décroître, de mort naturelle, la fraction la plus importante de la radioactivité des produits de fission. On dit qu'ils « refroidissent ».

#### IV.1. Nécessité du retraitement.

Que faire du combustible usé ? Continuer à le stocker indéfiniment, ou bien le traiter pour récupérer les matières valorisables qu'il contient, et notamment le plutonium ? Plusieurs arguments militent en faveur du retraitement :

— Le stockage n'offre pas une garantie « éternelle » : les altérations qu'a subies le combustible dans le réacteur le préparent très mal à supporter un stockage prolongé. Il faudrait multiplier les « barrières » et les contrôles et personne ne voit encore clairement jusqu'où il faudrait aller dans cette voie. A cet égard, l'expérience du retraitement est plus ancienne et l'on sait qu'il permet un confinement sûr et relativement peu volumineux des déchets radioactifs.

— Le stockage est cher : toutes les précautions évoquées précédemment se traduisent par des coûts qui sont loin d'être négligeables devant celui du retraitement.

— En immobilisant sans profit de la matière fissile et fertile qui a son origine dans les minerais, le stockage accélère l'épuisement des réserves.

— En stérilisant le plutonium, le stockage empêche l'avènement des surgénérateurs. Or, ceux-ci sont les seuls qui permettent de consommer la quasi-totalité des noyaux lourds.

— Le stockage, enfin, compromet l'indépendance de certains pays — telle la France — en les obligeant à se procurer à l'étranger une matière première qu'ils ont pourtant « sous la main », dans leurs combustibles irradiés.

Pour toutes ces raisons, on préfère envoyer le combustible plus ou moins « refroidi » dans une usine de retraitement. Pour son expédition (par la route, le rail ou le bateau), on le place dans des conteneurs plombés et étanches conçus pour résister à tous les accidents possibles et imaginables qui pourraient surve-

nir au cours du trajet : chocs, chutes, incendie, immersion. En outre, ces conteneurs sont munis de systèmes de refroidissement pour évacuer la chaleur dégagée par le combustible.

A son arrivée à l'usine, le combustible est à nouveau stocké dans une piscine en attendant d'être traité.

#### IV.2. Le procédé.

En prenant comme exemple les combustibles issus des réacteurs à eau légère — le cas le plus courant — le problème du retraitement est le suivant : à partir d'uranium contenant environ 1 % de plutonium et 3 % d'isotopes divers représentant toutes les familles d'éléments (alcalins, alcalino-terreux, terres rares, métaux nobles, halogènes, gaz rares, etc.) et pour la plupart hautement radioactifs, il faut obtenir séparément et avec un rendement élevé, l'uranium et le plutonium complètement débarrassés des produits de fission, c'est-à-dire parfaitement décontaminés pour qu'on puisse les manipuler comme s'ils n'avaient pas été irradiés. Pour cela, il faut que leurs concentrations finales en produits de fission tombent à des valeurs de  $10^{-11}$  à  $10^{-12}$ , ce qui impose des facteurs de décontamination de l'ordre de  $10^7$  à  $10^9$ . Ces chiffres donnent une idée des difficultés à surmonter, surtout si l'on se souvient que tous ces corps se trouvent au départ enfermés dans une gaine étanche, solide et réfractaire aux réactifs chimiques usuels, et que leur radioactivité intense impose des conditions de travail tout à fait particulières.

La figure n° 4 donne le schéma simplifié du procédé universellement adopté, baptisé PUREX, qui utilise un passage en voie aqueuse pour effectuer toutes les séparations chimiques nécessaires.

Dans ses grandes lignes, le retraitement des oxydes « rapides » est comparable à celui des oxydes « eau légère », avec toutefois des différences importantes :

- Structure différente des assemblages d'aiguilles et gaines en acier inoxydable au lieu de zircaloy.
- Taux de combustion plus élevé (50 à 100 000 MWj. t<sup>-1</sup> au lieu de 30 à 40 000) d'où : concentrations plus fortes en produits de fission, radioactivité et puissance thermique plus intenses.
- Teneur en plutonium de 15 à 20 % au lieu de 1 %.

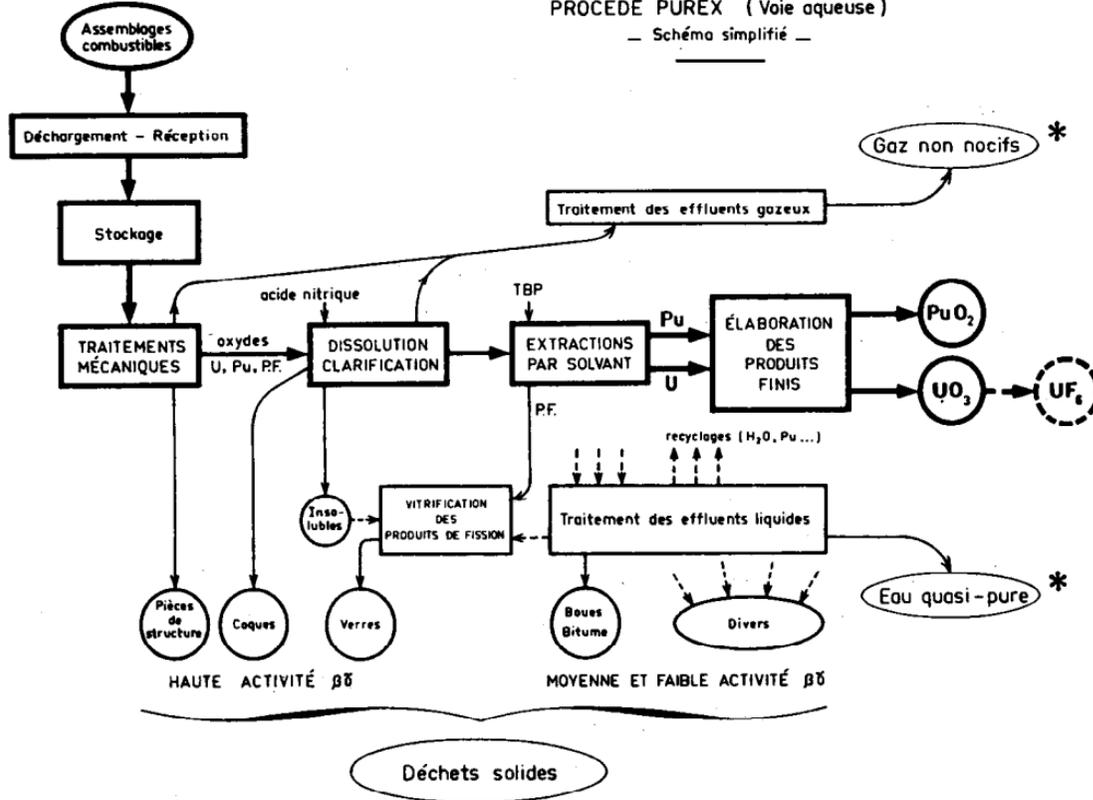
Dans les deux cas, la succession des opérations est la suivante :

##### II.2.1. DÉGAINAGE.

Pour mettre à nu les oxydes, on procède à un cisailage des aiguilles, soit par faisceaux entiers (eau légère), soit après déman-

# FIG.4. LE TRAITEMENT DES COMBUSTIBLES IRRADIÉS

PROCÉDÉ PUREX (Voie aqueuse)  
— Schéma simplifié —



(\* ) c'est-à-dire nettement en deçà des normes de rejet.

tèlement (rapides). Cette opération réduit les aiguilles en tronçons de quelques centimètres.

#### IV.2.2. DISSOLUTION dans l'acide nitrique.

Ce réactif digère rapidement l'uranium et le plutonium ainsi que la plupart des produits de fission, mais n'attaque pas les gaines en zircaloy ou en acier inoxydable. Cette opération est suivie d'une clarification de la solution par filtration ou centrifugation, afin de séparer les corps insolubles et les petits fragments de gaine (l'ensemble étant appelé « fines » de dissolution).

#### IV.2.3. PURIFICATION DE L'URANIUM ET DU PLUTONIUM.

On commence par éliminer les éléments les plus gênants : les produits de fission. Dans ce but, on fait appel à une méthode qui a déjà été utilisée pour le raffinage de l'uranium : l'extraction par solvant en milieu nitrique, en choisissant un solvant particulièrement sélectif de l'uranium et du plutonium et aussi peu sensible que possible aux radiations : le phosphate tributylque (en abrégé : TBP), dilué dans des hydrocarbures pour diminuer sa densité et sa viscosité.

On extrait donc l'uranium et le plutonium ensemble, la majeure partie des produits de fission restant dans la solution aqueuse. Ensuite, après avoir lavé la phase organique par de l'acide dilué, on les réextrait par une nouvelle phase aqueuse en faisant changer les conditions du milieu (acidité, concentrations). Toutefois, vu les facteurs de décontamination très élevés qu'il faut obtenir, une seule opération n'est pas suffisante. On effectue donc plusieurs cycles d'extraction — lavage — réextraction. En général, trois cycles suffisent.

Le plutonium est séparé de l'uranium au cours d'un de ces cycles (le 1<sup>er</sup> ou le 2<sup>me</sup>) par réduction sélective à la valence III, insoluble dans le solvant. On utilise l'uranium tétravalent ou l'hydroxylamine. Dans ces conditions, l'uranium, toujours hexavalent, reste dans la phase organique tandis que le plutonium passe dans la phase aqueuse.

Toutes ces opérations « liquide-liquide » sont réalisées dans des « colonnes pulsées » garnies de plateaux perforés dans lesquelles le brassage des deux liquides est assuré par un mouvement de va-et-vient : la « pulsation ». Des extracteurs centrifuges — mono ou multi-étages — peuvent ainsi être utilisés.

#### IV.2.4. CONDITIONNEMENT FINAL DES PRODUITS.

La solution de nitrate de plutonium purifié est concentrée par évaporation, puis le plutonium est précipité par l'acide oxalique. L'oxalate est ensuite filtré et séché, et une calcination à 450° le décompose en oxyde  $\text{PuO}_2$ .

De son côté, la solution de nitrate d'uranyle (VI) est concentrée par évaporation pour être provisoirement stockée ou expédiée à l'usine chimique qui transformera le nitrate en hexafluorure  $UF_6$  en vue d'un nouvel enrichissement isotopique.

#### IV.3. Principes adoptés pour la conception des usines.

Le retraitement est l'étape du cycle du combustible la plus difficile en raison des problèmes de sécurité que pose la manipulation de quantités considérables de matières radioactives (une usine de retraitement doit par exemple traiter chaque année de l'ordre de 1 milliard de curies d'émetteurs  $\beta\gamma$  et plus de 10 tonnes d'éléments fissiles).

Ces matières, très diversifiées par leur nature et leurs propriétés, doivent être traitées sans exposer le personnel d'exploitation de l'usine et sans aucun risque pour l'environnement, ce qui impose une conception tout à fait particulière des usines avec des protections biologiques, des moyens de contrôle à distance et des systèmes permettant de prévenir les risques de criticité ou de fuites et les risques provenant d'événements extérieurs (séismes ou chutes d'objets volants, détournement de matières fissiles à des fins militaires, conséquences de l'arrêt intempestif de certaines fonctions essentielles de l'usine,...).

##### IV.3.1. PRÉVENTION DES RISQUES DE CRITICITÉ.

Le traitement de combustibles riches en matières fissiles dans un milieu aqueux (qui est modérateur des neutrons) fait encourir des risques de criticité et de grandes précautions doivent être prises pour éviter les accumulations de ces éléments fissiles et plus particulièrement du plutonium.

Ces précautions consistent :

- dans tous les cas, à observer des consignes opératoires très strictes et à effectuer des contrôles redondants des concentrations de plutonium dans les appareils,
- à utiliser des poisons neutroniques, c'est-à-dire des éléments « neutrophages » (par exemple : le gadolinium) qui sont, soit incorporés dans les matériaux de structure des appareillages (empoisonnement hétérogène) soit ajoutés aux solutions aqueuses (empoisonnement homogène),
- ou à utiliser des appareils présentant une géométrie sûre quelles que soient les concentrations de plutonium.

On a de plus en plus tendance à adopter cette dernière solution qui est évidemment la plus sûre et d'importants efforts de recherches sont actuellement déployés pour la mise au point d'appareils sous critiques présentant à la fois une géométrie sûre

et des performances élevées sur le plan de la capacité et de l'efficacité.

Les futures usines seront ainsi, par exemple, équipées de dissolvants continus rotatifs ou annulaires et de colonnes d'extraction annulaires qui remplaceront respectivement les dissolvants discontinus du type « marmite » et les mélangeurs-décanteurs non sous critiques et actuellement utilisés avec de multiples précautions pour éviter les accumulations de Pu.

#### IV.3.2. CONFINEMENT DE LA RADIOACTIVITÉ.

Pour obtenir un confinement sûr de la radioactivité, on met d'abord en œuvre des appareils étanches en acier inoxydable « bas carbone » qui constituent en quelque sorte une première barrière. Ces appareils sont implantés à leur tour à l'intérieur de plusieurs zones de confinement successives ventilées et disposées suivant des conditions normalisées pour assurer très largement la protection du personnel d'exploitation. Sur les sorties des effluents gazeux ou liquides sont interposés des pièges, des filtres ou des systèmes d'épuration permettant d'arrêter la quasi-totalité de la radioactivité à l'exception de quelques radionucléides dont le rejet est autorisé et strictement réglementé. Ce rejet est toujours inférieur aux limites fixées par la réglementation ; les autorisations de rejet pour les sites de retraitement sont délivrés tous les trois ans par le ministère de l'industrie. Les usines sont en outre conçues de manière à limiter au maximum les interventions humaines en zone active qui présentent des risques d'irradiation pour le personnel, produisent des déchets supplémentaires et font perdre un temps précieux.

Dans la conception des usines, on recherche par conséquent une grande fiabilité des équipements et leur implantation dans des conditions qui permettent les interventions à distance. Pour ce qui concerne la fiabilité des appareils, on s'efforce par exemple d'éviter dans la mesure du possible les organes mécaniques (systèmes de transfert pneumatique) et de soigner tout particulièrement le matériel chaudronné (contrôle très poussé des matériaux et des soudures).

Les appareils soumis à des risques de panne élevés sont décomposés en sous-ensembles faciles à démonter et à dépanner ou doublés, triplés et placés dans des cases indépendantes et adaptées pour les interventions directes (après décontamination) ou indirecte (par des télémanipulateurs).

Des dispositifs sont par ailleurs prévus pour le déclassement et le démantèlement des installations au terme de leur existence.

#### IV.4. Traitement et conditionnement des déchets.

L'industrie et la recherche nucléaires produisent, comme toute activité humaine, des résidus. Il s'agit en l'occurrence de corps radioactifs qui font l'objet d'un niveau de confinement jamais atteint dans aucune autre industrie.

Les déchets proviennent de toutes les activités du cycle, des réacteurs et de disciplines diverses utilisant les radioéléments (médecine,...).

La plus grande partie de ces déchets nucléaires contenant des éléments très actifs et de longue période, se retrouve cependant au stade du retraitement dont l'une des principales fonctions est d'assurer leur conditionnement.

##### IV.4.1. CARACTÉRISTIQUES ET CLASSEMENT DES DÉCHETS.

Sur le plan de la terminologie, il convient de distinguer les notions d'*effluents* constitués par les éléments rejetés dans l'environnement et de *déchets* constitués par les solutions ou les matériaux radioactifs non utilisables et dont le rejet ne saurait être toléré.

Les déchets considérés d'une façon globale peuvent être classés en :

- déchets de haute activité issus des appareils (ou déchets de procédé) contenant la quasi-totalité de la radioactivité produite dans les réacteurs,
- déchets de faible et moyenne activité provenant du traitement des effluents ou de l'entretien quotidien des installations (déchets technologiques).

Ces deux catégories de déchets et plus particulièrement la seconde se subdivisent encore selon qu'elles contiennent ou non des radioéléments à longue période constitués pour l'essentiel par les émetteurs  $\alpha$ . Les modalités de gestion et de stockage seront très différents selon la présence ou non de ces émetteurs  $\alpha$ .

##### IV.4.2. GESTION DES DÉCHETS AU COURS DU RETRAITEMENT.

La gestion des déchets est réalisée à tous les stades du processus de retraitement avec les objectifs suivants :

- réduire au maximum les volumes,
- trier les déchets en fonction de leurs compositions,
- les conditionner sous une forme solide non lixiviable et dans des conteneurs successifs constituant plusieurs barrières de confinement.

En pratique, cette gestion consiste principalement à :

1. amener et maintenir la majeure partie des radionucléides (plus de 99,5 %) dans les solutions nitriques destinées à la concentration puis à la calcination et à la vitrification. Ces solutions réunissent un ensemble de liqueurs (telles que les raffinats d'extraction, les solutions recyclées, les solutions de rinçage d'appareils) dans lesquelles on minimise l'introduction d'ions ou de réactifs susceptibles d'accroître le volume ou la lixivabilité des déchets solidifiés ;
2. recycler les réactifs de procédé après évaporation ou régénération chimique ( $\text{HNO}_3$ , solvant...) pour limiter les purges ou « sorties » susceptibles de donner naissance à des déchets difficiles à traiter ;
3. séparer les déchets en fonction de leurs caractéristiques en vue de leur faire subir des traitements et conditionnements spécifiques et appropriés (coques, résidus de dissolution, concentrats de PF, produits de fusion, produits incinérables, métaux décontaminables...);
4. adopter des systèmes d'épuration des effluents liquides et gazeux qui n'engendrent pas de déchets difficiles à solidifier.

#### IV.4.3. TRAITEMENT ET STOCKAGE DES DÉCHETS.

##### *Déchets de haute activité.*

Ces déchets, constitués par les coques de dégainage, les résidus de dissolution (platinoïdes), les réactifs de piégeage de l'iode, les concentrats de produits de fission doivent être solidifiés puis placés dans des conteneurs successifs constituant plusieurs barrières de confinement.

Pour les plus actifs d'entre eux, on disposera ainsi 3 ou 4 barrières :

- le solide dans lequel sont incorporés les radionucléides,
- un conteneur en acier,
- un conteneur en béton ou un puits de désactivation,
- une infrastructure de surface ou un milieu géologique stable pour un confinement provisoire ou définitif.

Pour les coques et structures de gainage, plusieurs modes de conditionnement sont actuellement développés et basés sur des techniques de compactage, de fusion, d'enrobage dans des ciments ou de mise en conteneurs céramiques.

Pour les fines de dissolution, pour le moment stockées en solution, on envisage aussi des techniques d'incorporation dans le verre ou les métaux.

Pour les radionucléides concentrés en milieu nitrique, on a étudié plusieurs procédés de solidification sous forme de calcinats (aux U.S.A.), de verre, de céramiques ou de produits composites (calcinats enrobés ou matrices métalliques...).

Parmi ces modes de confinement, celui qui est jugé le plus sûr consiste à incorporer les produits de fission dans un verre, corps à la fois stable, inerte, insensible à la plupart des agents chimiques et relativement bon conducteur de la chaleur. On va donc procéder à une VITRIFICATION de ces produits en les calcinant, en les mélangeant avec les ingrédients nécessaires (silicates, etc.) et en fondant le mélange à 1 100 - 1 200°.

Le premier atelier industriel de vitrification a été mis en service en 1978 à Marcoule (AVM). Il a déjà permis de vitrifier près de 300 m<sup>3</sup> de solutions actives et, devant le succès de cette technique, plusieurs pays européens ont engagé des pourparlers avec la France en vue d'étudier la possibilité d'adopter le système français de vitrification.

#### *Déchets de basse et moyenne activité.*

Ces déchets constitués par des résines échangeuses d'ions des piscines, des résidus issus de l'épuration des effluents, des déchets technologiques, etc., sont traités pour réduire leur volume (triage, lavage, compactage, incinération des composés organiques, évaporation des liquides...) puis incorporés selon leur nature dans du béton, du bitume ou des résines thermodurcissables.

#### *Stockage.*

Le stockage des déchets est confié en France à l'A.N.D.R.A. (Agence Nationale pour les déchets radioactifs). Jusqu'à présent, on a prévu pour les déchets les plus actifs ou contenant des éléments de longue période des stockages transitoires dans des structures de surface surveillées. Pour l'avenir, on envisage cependant des stockages définitifs ne nécessitant pas de surveillance :

- une formation géologique profonde et stable formée de granit, d'argile ou de sel ;
- une formation géologique sub-océanique ;
- l'espace extra-terrestre.

Ce sont les deux premières possibilités qui sont actuellement explorées par des études nationales ou internationales, notamment sous l'égide de la C.E.E. Quelques opérations expérimentales réversibles sont envisagées.

Les qualités nécessaires pour le « site définitif » varient avec la durée de stockage requise. Il paraît donc *a priori* très intéressant de séparer les produits de fission des éléments à vie longue (transuraniens et <sup>129</sup>I). Si cette séparation s'avérait éco-

nomiquement praticable, on pourrait envisager des stockages de grande stabilité pour de faibles volumes d'éléments à vie longue ou encore la désintégration de ces derniers par irradiation.

#### IV.5. L'industrie du retraitement et son avenir.

Les premières usines de retraitement ont eu pour but d'extraire le plutonium pour ses applications militaires. Elles appartiennent toutes aux états intéressés : Handford et Savannah River aux U.S.A., Windscale en Grande-Bretagne, Marcoule et La Hague en France (sans parler des usines des pays de l'Est). L'usine d'Idaho-Falls aux U.S.A. a été construite pour traiter des combustibles à uranium très enrichi (U-Al ; U-Zr).

Dans une seconde phase, on a vu apparaître des installations de taille plus modeste, conçues pour préparer l'ère industrielle du retraitement. Ces Unités « pilotes » ont été, toutes ou partie, subventionnées par les gouvernements : Dounreay en Ecosse, l'Atelier Pilote de Marcoule, AT. 1 à La Hague (combustibles du réacteur « rapide » RAPSODIE), Trombay (Inde), Karlsruhe (R.F.A.), Tokai-Mura (Japon), ou par une société européenne : EUROCHEMIC à Mol (Belgique).

La phase industrielle a commencé vers 1970.

A l'heure actuelle, la situation est assez confuse, on peut la résumer de la façon suivante :

- aux Etats-Unis aucune usine ne fonctionne, par suite de problèmes techniques et politiques. Les premières usines de Nuclear Fuel Services (West-Valley ( $1 \text{ t j}^{-1}$ ) et de General Electric (Morris  $1 \text{ t j}^{-1}$ ) avaient été nettement sous-estimées par les industriels et les installations construites ou en projet d'Allied General Nuclear Service (Barnwell) et d'Exxon (Oak Ridge) n'ont pas obtenu de permis de l'Administration du Président CARTER qui est opposée au retraitement dans le cadre de sa politique de non prolifération ;
- en Europe, la situation est meilleure. L'association au sein d'United Reprocessors depuis 1971 de la R.F.A. (K.E.W.A.), de la Grande-Bretagne (B.N.F.L.) et de la France (C.O.G.E.M.A.) a permis de mettre sur pied une politique cohérente en matière de retraitement s'appuyant sur des complexes en service ou projetés à :
  - La Hague pour la France (UP<sub>2</sub> - HAO - Projet UP<sub>3</sub>),
  - Windscale pour la Grande-Bretagne (Projet THORP),
  - projet d'une usine de  $1\,500 \text{ t./an}^{-1}$  pour la R.F.A.

De tous ces pays occidentaux, la France paraît avoir la position la plus avantageuse en raison de l'expérience acquise dans

UP 1 à Marcoule et dans l'usine HAO de La Hague, la seule qui traite actuellement des oxydes dans le monde. On y a traité à ce jour plus de 250 tonnes d'oxydes de la filière eau légère et plus de 2 tonnes d'oxyde au plutonium provenant du cœur de Phénix.

On prévoit actuellement la mise en œuvre à La Hague avant la fin de la décennie de deux usines d'une capacité de 800 t./an<sup>-1</sup> d'oxyde (LWR) pour lesquelles la C.O.G.E.M.A. a conclu des contrats à long terme (6 000 t d'oxyde LWR) avec plusieurs pays étrangers. Ces contrats prévoient que les déchets seront retournés aux pays clients. Le C.E.A. et sa filiale C.O.G.E.M.A. étudient en outre un projet d'usine pour la filière à neutrons rapides.

Ces ambitions françaises dans le domaine du retraitement s'appuient :

- sur une structure industrielle adaptée (le C.E.A., la C.O.G.E.M.A. et sa filiale pour l'ingénierie S.G.N. (Société Générale Techniques Nouvelles, anciennement Saint-Gobain Nucléaire),
- sur la grande expérience acquise à Marcoule, à La Hague, à Eurochemic et à Tokai-Mura,
- sur un effort de recherches et développement très important consenti depuis de nombreuses années au C.E.A. dans les laboratoires de Fontenay-aux-Roses et le complexe semi-industriel de Marcoule où sont menées simultanément des expériences inactives sur des appareils prototypes à l'échelle 1 et des expériences pilote en actif dans des conditions représentatives.

Pour l'adaptation du retraitement aux éléments de la filière « rapides », le C.E.A. vient de lancer un pilote appelé « T.O.R. » (Traitement des Oxydes Rapides) qui permettra de traiter le cœur de Phénix et d'éprouver des appareillages nouveaux.

## CONCLUSION.

Le cycle du combustible nucléaire dont on vient de décrire sommairement les principales étapes constitue une industrie déjà notable et appelée à un grand développement dans un avenir proche sur la base des prix actuels et des programmes connus. Le chiffre d'affaires mondial du cycle de combustible atteindra 60 · 10<sup>9</sup> F en 1985. Entre 1978 et 1985, la production annuelle d'uranium aura plus que doublé pour avoisiner les 50 10<sup>3</sup> t, les besoins d'enrichissement auront triplés, dépassant les 30 millions d'U.T.S. par an et le tonnage à retraiter sera considérable eu égard aux capacités actuellement disponibles.

Malgré des réajustements spectaculaires des coûts de ses différents maillons au cours de la dernière décennie, le cycle du

combustible qui comporte lui-même une part d'investissements (environ 20 %), n'entre que pour 30 % (6) dans le coût actualisé du kilowatt-heure produit, qui reste lui-même inférieur à celui des centrales brûlant des combustibles fossiles, sauf conditions locales particulières.

Sur le plan technique et malgré les difficultés politiques rencontrées récemment pour lancer le retraitement, on peut dire que le cycle du combustible est maintenant bien maîtrisé malgré toutes les questions qui peuvent encore être soulevées dans les domaines de la sûreté et du conditionnement des déchets.

La mise en place d'une organisation pour étudier la sûreté nucléaire dans tous les pays et notamment en France, la normalisation en cours et l'effort considérable de recherche entrepris devraient permettre de réaliser des installations présentant les garanties nécessaires et de rassurer progressivement l'opinion.

Le problème essentiel des déchets radioactifs semble actuellement raisonnablement résolu et de grands progrès sont attendus prochainement pour assurer leur conditionnement à long terme.

Ce problème des déchets ne devrait nullement être considéré comme un « goulot d'étranglement » pour l'énergie nucléaire pour les raisons suivantes :

1. La sûreté des stockages liquides à court terme (quelques dizaines d'années) est très bien assurée.
2. La fiabilité et la sûreté des stockages solides à long terme (quelques centaines d'années) paraissent tout à fait valables (cas de stockages surveillés réalisés par exemple à Marcoule).
3. Le dossier des stockages à très long terme est en cours de constitution et fait l'objet d'un intense effort de recherches, de réflexions et d'échanges.

Dans ces conditions, l'industrie française du cycle qui occupe une place de premier plan sur la scène internationale devrait pouvoir continuer de se développer et de contribuer ainsi à assurer la sécurité des approvisionnements énergétiques et même à améliorer les exportations et la balance commerciale du pays.

J. SAUTERON et P. MIQUEL,  
*(Centre d'Etudes Nucléaires  
de Fontenay-aux-Roses).*

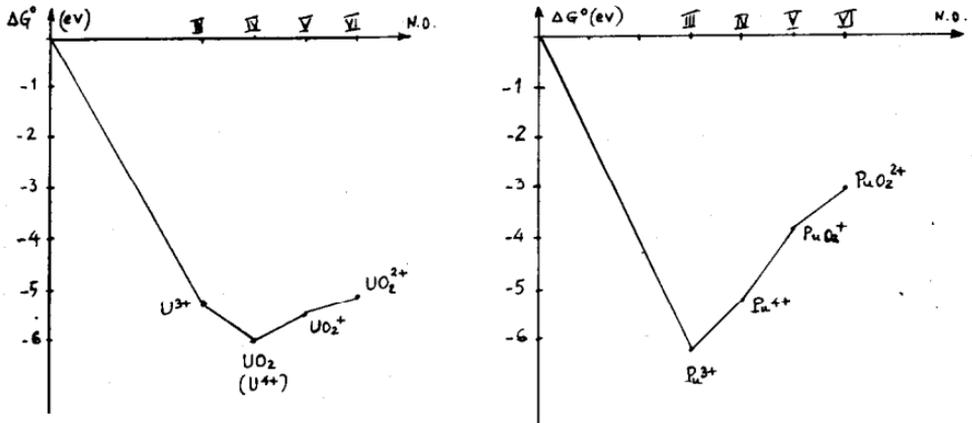
---

(6) Dans le cycle du combustible (LWR), le coût de la production des concentrés représente environ 35 % du chiffre d'affaire, l'enrichissement 30 %, le retraitement 25 %, la fabrication 10 %.

## ANNEXE

## Rappel des principaux composés de l'uranium et du plutonium

Les principaux composés de l'uranium et du plutonium rencontrés au cours des opérations du cycle du combustible apparaissent sur le diagramme de FROST et le tableau suivant :



Diagrammes donnant les enthalpies libres (en eV) des états d'oxydation de l'uranium et du plutonium en solution aqueuse, à  $pH = 0$ .

Les composés  $UO_2^+$  et  $PuO_2^+$  sont, comme le montre le diagramme ci-après, particulièrement instables.

Dans les milieux nitriques du retraitement, on rencontre les composés  $U^{4+}$ ,  $UO_2^{2+}$ ,  $Pu^{3+}$ ,  $Pu^{4+}$  et  $PuO_2^{2+}$ .  $U(NO_3)_4$  et  $Pu(NO_3)_3$  doivent cependant être stabilisés en solution nitrique par addition d'un antinitrite (nitrate d'hydrazine par exemple).

Nbre d'oxy- dation	URANIUM		PLUTONIUM	
	Formule	Nom	Formule	Nom
<b>I O N S</b>				
III	$U^{3+}$	ion uranium III	$Pu^{3+}$	ion plutonium III
IV	$U^{4+}$	ion uranium IV	$Pu^{4+}$	ion plutonium IV
V	$UO_2^+$	ion uranyle V	$PuO_2^+$	ion plutonyl V
VI	$UO_2^{2+}$	ion uranyle VI	$PuO_2^{2+}$	ion plutonyl VI
	$UnO_{3n+1}$	ions uranate et polyuranate		
	$1 \leq n \leq 6$			
	$UO_4^{2-}$	ion uranate	$Pu_3O_{10}^{2-}$	ion triplutonate
	$U_2O_7^{2-}$	ion diuranate...		
<b>O X Y D E S</b>				
IV	$UO_2$	dioxyde d'uranium	$PuO_2$	dioxyde de plutonium
	$U_3O_8$	octoxyde de triuranium		
VI	$UO_3$			
<b>H A L O G E N U R E S (X = F, Cl, Br et I)</b>				
III	$UX_3$		$Pu X_3$	
IV	$UX_4$		$Pu F_4$	
V	$UF_5, UCl_5$			
VI	$UF_6, UCl_6$		$Pu F_6$	
<b>N I T R A T E S</b>				
III			$Pu (NO_3)_3$	
IV	$U (NO_3)_4$		$Pu (NO_3)_4$	
V				
VI	$UO_2 (NO_3)_2$		$PuO_2 (NO_3)_2$	