

## SOMMAIRE

- Introduction
- les différentes étapes du cycle du combustible
- L'enrichissement de l'uranium
  - Les procédés classiques à faible sélectivité
    - La diffusion gazeuse
    - L'ultracentrifugation
    - Les procédés aérodynamiques et chimiques
    - Les procédés avancés
- Le traitement et les déchets nucléaires
  - Les objectifs du traitement
  - Les combustibles nucléaires usés
  - Le procédé Purex de retraitement
  - Les déchets issus du traitement
  - Les recherches sur le retraitement
- Bibliographie
- Classification

# NUCLÉAIRE

## Cycle du combustible

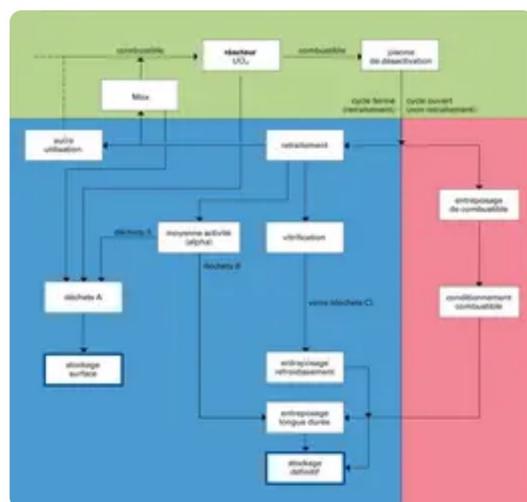
### ÉCRIT PAR

**Bernard BOULLIS** : directeur de programme - Technologie du Cycle et gestion des déchets

**Noël CAMARCAT** : directeur du cycle du combustible au Commissariat à l'énergie atomique

Le développement industriel des réacteurs nucléaires n'est possible que grâce à la création d'industries spécialisées, souvent fort complexes, en particulier celles qui assurent les différentes phases de transformation du combustible nucléaire destiné à l'alimentation des réacteurs. Il s'agit tout d'abord d'extraire le minerai d'uranium, de le mettre sous les formes physiques et chimiques permettant l'entretien de la réaction en chaîne dans les réacteurs et de gérer les combustibles usés une fois que l'énergie nucléaire en a été extraite. On s'intéressera surtout dans cet article aux réacteurs à eau légère, qui constituent la majorité du parc mondial. Le cycle du combustible associé à ces réacteurs utilise obligatoirement l'uranium enrichi. Pour la gestion des combustibles usés, deux grandes options sont déployées sur le plan industriel :

- le cycle fermé, dans lequel les matières valorisables sont récupérées dans des usines particulières pour être recyclées et produire encore de l'énergie nucléaire, les déchets ultimes étant conditionnés pour être entreposés ou stockés ;



### Opérations conduisant au retraitement ou au stockage des déchets...

*Encyclopædia Universalis France*

- le cycle ouvert, dans lequel les combustibles usés sont entreposés

dans l'attente d'une solution définitive.

## les différentes étapes du cycle du combustible

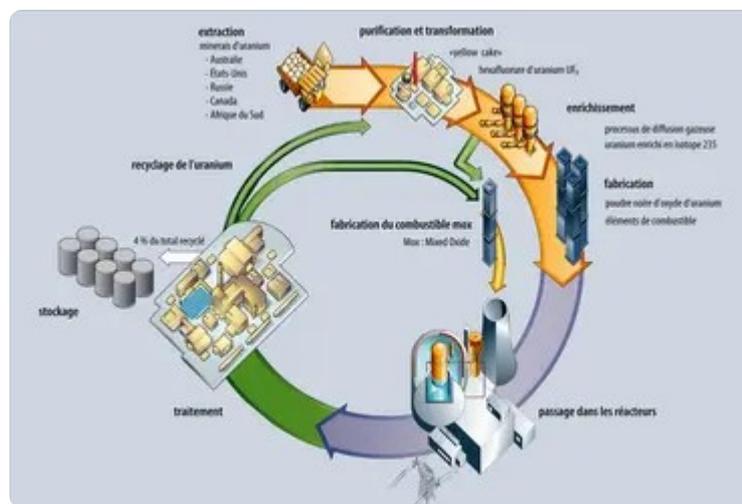
En partant du minerai d'uranium naturel, cinq grandes étapes sont nécessaires pour obtenir les éléments combustibles que l'on charge en réacteur. Ces phases, représentant l'amont du cycle, sont les suivantes :

- l'exploitation minière de l'uranium et la production de concentrés purifiés sous forme de di-uranate  $(\text{NH}_4)_2\text{U}_2\text{O}_7$  ;
- la conversion chimique de ces concentrés en hexafluorure  $\text{UF}_6$  gazeux, en passant par les phases oxydes  $\text{UO}_3$  et  $\text{UO}_2$  ;
- l'enrichissement de l'hexafluorure, permettant d'augmenter la teneur en uranium 235 aux valeurs compatibles avec l'entretien d'une réaction en chaîne dans les réacteurs à eau légère (de 3,25 p. 100 à 4,5 p. 100 selon les gestions des éléments combustibles en réacteur) [cf. *L'enrichissement de l'uranium*] ;
- la conversion de l'hexafluorure enrichi  $\text{UF}_6$  en oxyde  $\text{UO}_2$  sous forme de poudre, qui constitue la matière de base des assemblages des réacteurs à eau légère ;
- la fabrication des assemblages qui passe par la transformation de la poudre en pastilles par pressage mécanique puis frittage et usinage. Ces pastilles sont enfilées dans des gaines en alliage métalliques de zirconium pour constituer des crayons. Ces derniers sont ensuite regroupés pour former des assemblages.

Ce sont ces assemblages qui sont chargés dans les réacteurs à eau légère, où ils séjournent entre 36 et 54 mois selon les modes d'exploitation. Pour ce type de réacteurs, toutes ces étapes sont nécessaires.

Après leur passage en réacteur, où ils ont subi des modifications physico-chimiques, les assemblages sont déchargés. Ils font alors l'objet de deux grandes étapes qui constituent l'aval du cycle du combustible :

- l'entreposage pour refroidissement en sortie de réacteur, réalisé sous eau en piscine dans le bâtiment combustible de la centrale ;



## Le cycle du combustible

CEA

– le retraitement (ou encore traitement) destiné à séparer les matières valorisables qui pourront être recyclées et à conditionner les déchets ultimes (cf. *Le traitement et les déchets nucléaires*).

Ce cycle du combustible nucléaire (fig. 1) représente une part importante du coût du kilowattheure nucléaire (environ un quart, si on retire l'amortissement des investissements), dont la moitié pour les deux phases essentielles que sont l'enrichissement et le retraitement. Ces dernières sont aussi importantes à d'autres titres : elles permettent le bouclage économiquement très souhaitable du cycle du combustible et, par le retraitement, l'ouverture vers une utilisation rationnelle du plutonium (élément produit dans les réacteurs) dans la filière des réacteurs à eau légère (combustible Mox, c'est-à-dire combustible mixte uranium-plutonium) et dans la filière des surgénérateurs, pour le plus long terme. Le cycle du combustible fermé apparaît comme l'élément clé du développement d'options nucléaires durables. Le mode de gestion des matières est en effet déterminant tant pour la préservation des ressources que pour minimiser l'impact à l'environnement.

Des évolutions importantes ont marqué la fin des années 1990. Dans l'amont du cycle, les procédés avancés sur lesquels on plaçait beaucoup d'espoirs en termes de recherche ont laissé la place à l'ultracentrifugation qui s'impose désormais comme le procédé industriel de référence pour l'enrichissement de l'uranium. Le marché de l'uranium naturel s'est retourné à partir de 2004 et est passé d'une phase de déstockage, qui durait depuis les années 1990, à une nouvelle phase d'exploration minière active dans la perspective de la reprise de la construction des réacteurs nucléaires après 2010. Parallèlement, les capacités de conversion sont en phase de modernisation, sans toutefois

que les procédés chimiques de base esquissés plus haut aient été fondamentalement modifiés. Dans l'aval du cycle, le retraitement associé au recyclage du plutonium et de l'uranium est de plus en plus perçu dans le monde entier comme la solution indispensable pour permettre une expansion de l'énergie nucléaire à long terme.

## L'enrichissement de l'uranium

L'enrichissement de l'uranium est une étape essentielle du cycle du combustible nucléaire, grâce à laquelle la teneur en  $^{235}\text{U}$ , isotope fissile de l'uranium, peut être portée de 0,72 p. 100 (teneur naturelle) à la valeur nécessaire (de 3 à 4,5 p. 100) à l'alimentation des réacteurs à eau légère qui constituent de loin la filière la plus répandue dans le monde.

Cette opération met en œuvre les techniques de la séparation isotopique, techniques de mise au point industrielle difficile, et dont la maîtrise s'accompagne du risque de prolifération de l'arme nucléaire. Ce sont indiscutablement ces caractéristiques qui ont justifié le secret très strict qui continue à entourer les détails des procédés et de leur mise en œuvre. De par son importance économique et en raison de l'ampleur des problèmes scientifiques et technologiques posés, cette étape mérite une attention toute particulière. La séparation des isotopes d'un élément est toujours une opération délicate, car les caractéristiques physico-chimiques de ces isotopes sont très voisines et dépendent en fait de l'écart de masse des noyaux atomiques, égal à 1,3 p. 100 dans le cas de l'uranium.

La petitesse de l'effet séparateur unitaire des procédés actuellement industrialisés et la faiblesse de la teneur en  $^{235}\text{U}$  de l'uranium naturel se conjuguent pour conduire à des usines de très grande taille. Les procédés de séparation peuvent être plus ou moins sélectifs, mais la sélectivité n'est pas le seul critère de choix, il faut également tenir compte de l'investissement et de la consommation en énergie qui affectent ce choix de façon majeure.

état	site	propriétaire	procédé	capacité (milliers d'U.T.S./an)	remarques
Allemagne de l'Est	Valanduba	U.K.O.R.	aérodynamique	0,30 <sup>(1)</sup>	
Allemagne	Gronau	Urenco	ultracentrifugation	0,40 <sup>(1)</sup>	mise en service en 1988
Israël		Nucleon	aérodynamique ou ultracentrifugation	2 <sup>(1)</sup>	
États-Unis	Oak Ridge Fakubak	O.R.E. (Department of Energy)	diffusion gazeuse	7,30	mise en service en 1955
	11,30 <sup>(2)</sup>				
	Portsmouth			2,90 <sup>(1)</sup>	de 1978 à 1988, capacité de 1978 à 1988
France	Tricastin	Eurodif	diffusion gazeuse	10,00 <sup>(1)</sup>	mise en service depuis 1978
Japon	Ningyo Pass Rokasho-mura	F.N.C. (Fueled Nuclear Corporation) J.N.P.I. (Japan Nuclear Fuel Industry)	ultracentrifugation	0,26 <sup>(1)(3)</sup>	mise en service depuis 1978
				2000 à 1,5 M.U.T.S.	mise en service depuis 1991
Pays-Bas	Almelo	Urenco	ultracentrifugation	1,00 <sup>(1)</sup>	mise en service depuis 1977
Royaume-Uni	Capenhurst	Urenco	ultracentrifugation	1,00 <sup>(1)</sup>	mise en service depuis 1977
ex-U.R.S.S.	Sibérie		diffusion gazeuse et ultracentrifugation	> 10 <sup>(1)</sup>	

1. Usine en projet.  
2. Usine en construction.  
3. Usine en fonctionnement.  
4. Dont une partie importante est opérable.  
5. Usine en cours d'accroissement de capacité par tranche de 0,15 M.U.T.S.

## Usines d'enrichissement dans le monde

*Encyclopædia Universalis France*

Les procédés qui sont actuellement appliqués dans les principales usines de séparation à caractère industriel sont :

- d'une part, les procédés classiques à faible sélectivité : la diffusion gazeuse, qui se pratique dans la majorité des usines en exploitation ; l'ultracentrifugation, qui est le procédé concurrent le plus développé ; les procédés aérodynamiques (procédé E. W. Becker, procédé U.K.O.R) et les procédés chimiques ;
- d'autre part, les procédés avancés, qui font appel à l'excitation électromagnétique sélective de l'un des isotopes par laser ou dans un plasma sur lesquels d'importants efforts de recherche ont été menés de 1975 à 2000 par les pays ayant développé une industrie du cycle du combustible nucléaire (États-Unis, Japon, France, Angleterre...).

Par ailleurs, il était nécessaire de choisir une unité permettant d'exprimer les besoins en enrichissement des réacteurs ainsi que les capacités des usines de séparation isotopique. Le choix s'est porté sur l'unité de travail de séparation (U.T.S), définie à partir de la théorie des cascades ; elle est d'un usage universel et, ayant les dimensions d'une masse, elle s'exprime en kilogrammes, mais ne doit pas être confondue avec les quantités d'uranium soumises à la séparation. Ainsi, il faut dépenser 1 000 U.T.S. pour assurer la séparation de 1 238 kg d'uranium naturel en deux lots de 210 kg d'uranium enrichi à 3,2 p. 100 et 1 028 kg d'uranium appauvri à 0,2 p. 100. Il faut donc un peu plus de 100 000 U.T.S. pour enrichir l'uranium nécessaire à l'alimentation d'un réacteur à eau pressurisée (R.E.P. ou P.W.R., Pressurized Water Reaction) de 900 MWe pendant un an.

Dans les années 1980, le procédé industriel d'enrichissement le plus

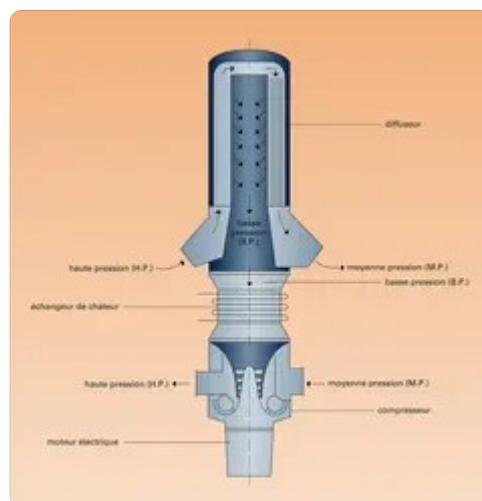
utilisé était la diffusion gazeuse dans un marché surcapacitaire mais stable. Les stratégies de recherche étaient alors fondées à cette époque sur l'introduction d'un procédé mutant (coût de l'U.T.S. divisé par 2), soit pour reconquérir des parts de marché à court terme (États-Unis), soit pour remplacer à plus long terme ce procédé de diffusion gazeuse obsolète (en France), soit encore pour éviter des situations de monopoles de production (Japon). La fin de la guerre froide a introduit un élément de complexité supplémentaire dans la détermination de l'offre d'uranium enrichi, avec la mise à disposition exclusive des États-Unis d'uranium provenant de la dilution des matières militaires russes. L'accord, signé en janvier 1994 entre le ministère russe et l'United States Enrichment Corporation (U.S.E.C.), a prévu la livraison à cette dernière de 1,8 million d'U.T.S par an jusqu'en 1998 et de 5,5 millions d'U.T.S. par an au cours des quinze années suivantes.

## Les procédés classiques à faible sélectivité

### La diffusion gazeuse

La diffusion gazeuse est un des plus anciens procédés de séparation, utilisé dès 1920 par Lindemann, Aston et Harkins, puis par Hertz en 1932, pour séparer les isotopes du néon. Appliquée à l'uranium dès 1943 dans le Manhattan Project, aux États-Unis, cette technique, qui assurait encore en 2000 plus de 90 p. 100 de la capacité d'enrichissement mondial, possède les références industrielles les plus complètes : États-Unis (Paducah, Portsmouth), Russie (Oural), France (Pierrelatte, Tricastin), Chine (Langzhou).

Ce procédé tire parti du passage préférentiel des molécules les plus légères d'un mélange gazeux à travers une paroi poreuse dont le diamètre des pores est petit par rapport au libre parcours moyen des molécules. Le composé utilisé est l'hexafluorure d'uranium ( $\text{UF}_6$ ) gazeux à la pression atmosphérique au-dessus de  $56^\circ\text{C}$ , relativement stable, mais corrosif et réagissant avec les composés hydrogénés, et de surcroît toxique. Le facteur d'enrichissement idéal est alors de 1,004 3 ; il est en fait de l'ordre de 1,002 0 en tenant compte des rendements de séparation.



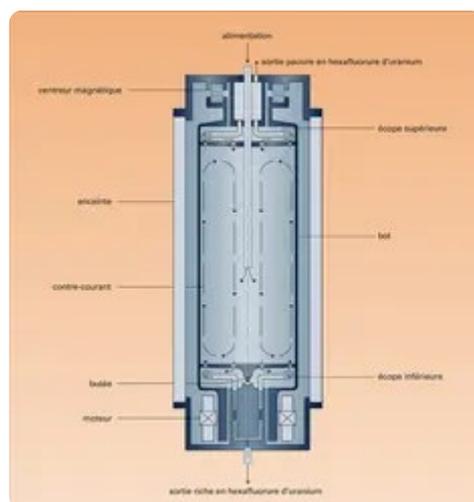
## Diffusion gazeuse : Tricastin

*Encyclopædia Universalis France*

Ces quelques caractéristiques permettent d'emblée de donner une image des usines de diffusion gazeuse (fig. 2) : l'effet élémentaire étant très faible, elles comportent de très nombreux étages en série, organisés en cascade (1 400 pour l'usine du Tricastin) ; elles travaillent à une température élevée, de l'ordre de 100 à 150 °C, pour éviter la cristallisation de l'hexafluorure, et cela pose des problèmes de conditionnement et de ventilation ; les flux de gaz à faire circuler sont très importants, et il en résulte une forte consommation d'énergie de l'ordre de 2 500 kWh par U.T.S., énergie qu'il faut extraire sous forme calorifique tout au long de la cascade ; l'étanchéité des circuits doit être quasi absolue, même au passage des arbres de compresseurs ; le choix des matériaux constitutifs et leur propreté sont fondamentaux, eu égard aux problèmes de corrosion. L'économie de ce procédé est très sensible à l'effet de taille, ce qui incite à concevoir des usines de grande taille (de 9 à 10 millions d'U.T.S./an), dont l'insertion sur le marché n'est aisée qu'en cas d'expansion rapide.

Cette technologie a connu son apogée à la fin des années 1990. L'usine Georges-Besse I, mise en service au Tricastin (site situé à cheval sur les départements de la Drôme et du Vaucluse) en 1978, paraissait difficilement prolongeable au-delà des années 2010 en raison du vieillissement des structures et de l'importance de la consommation électrique dans un marché qui allait être dérégulé. Il fallait de plus la remplacer par un procédé plus modulaire, permettant de déployer des unités de capacité plus faible. Après une vive compétition entre les différentes générations de procédés de centrifugation et les procédés avancés par laser, c'est la technologie d'ultracentrifugation développée par le consortium européen Urenco qui a été retenue.

## L'ultracentrifugation



### Centrifugeuse à contre-courant

*Encyclopædia Universalis France*

Appliquée en 1935, par J. W. Beams, à la séparation des isotopes du chlore, il a fallu attendre les années 1958-1960 pour voir un développement significatif de l'ultracentrifugation. Elle est alors appliquée aux isotopes de l'uranium aux États-Unis par Gernot Zippe, qui après la Seconde Guerre mondiale avait mis au point le procédé en U.R.S.S., et en République fédérale d'Allemagne par Wilhelm Groth puis G. Zippe. C'est actuellement le procédé concurrent de la diffusion gazeuse. Le facteur d'enrichissement relativement important (de 1,3 à 1,4) est obtenu au moyen d'un champ centrifuge imprimé au gaz de procédé ( $UF_6$ ) et réalisé à l'intérieur d'un bol tournant à grande vitesse, combiné avec un effet de cascade obtenu au moyen d'une circulation à contre-courant à l'intérieur même de la machine (fig. 3). La capacité unitaire, dépendant de la technologie retenue, reste faible : de 5 à 40 U.T.S. par an pour les machines courtes à moyenne vitesse (Urenco, Japon), quelques centaines d'U.T.S. par an pour les machines longues à grande vitesse (États-Unis), dont les développements, qui ont été arrêtés en 1985, ont redémarré après 2000.

Cela définit une structure d'usine notablement différente de celle des usines de diffusion gazeuse : nombre d'étages en série relativement faible, chaque étage étant constitué d'un nombre important de machines. En fait, les usines sont en général constituées d'un grand nombre de cascades autonomes complètes disposées en parallèle. Ce procédé, caractérisé par une très faible inertie, permet une montée très rapide à l'équilibre isotopique et est donc parfaitement adapté à la production des uraniums très enrichis. Il suffit de modifier les couplages série-parallèle de l'usine de séparation pour obtenir l'enrichissement souhaité. L'économie du procédé est sensible à l'effet de série et

s'adapte bien à un marché en expansion régulière qui permet l'amortissement correct de l'usine destinée à produire les centrifugeuses. Ce procédé consomme en outre très peu d'énergie, entre 100 et 200 kWh/U.T.S., voire moins pour l'ultracentrifugation de haute performance. Ces dernières machines mettent en œuvre des matériaux à fibres de carbone leur permettant d'atteindre des vitesses périphériques élevées, et donc des pouvoirs de séparation unitaires importants. Tel est le fondement de la technologie développée par Urenco et qui sera mise en œuvre à l'horizon 2012 dans l'usine Georges-Besse II, après l'arrêt de l'usine de diffusion gazeuse du Tricastin (Georges-Besse I).

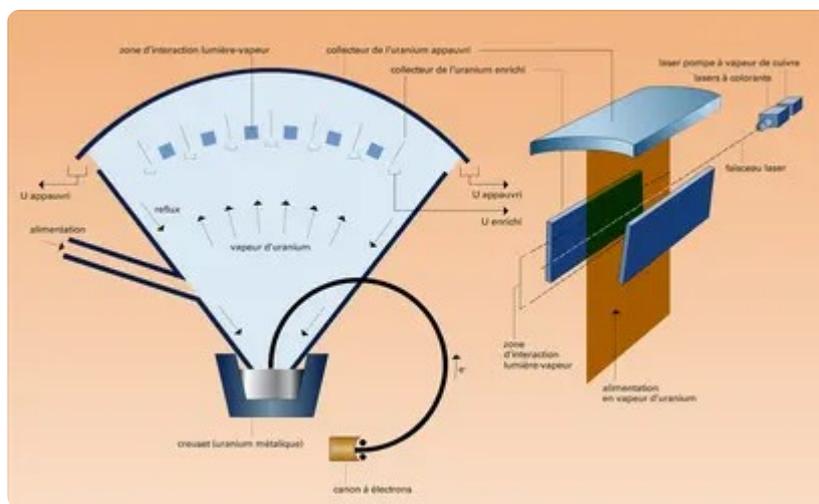
## Les procédés aérodynamiques et chimiques

Les procédés aérodynamiques (tuyère de Becker, vortex U.K.O.R. en Afrique du Sud) sont fondés sur la rotation d'un jet gazeux (hexafluorure d'uranium dilué dans un gaz léger comme He ou H<sub>2</sub>) engendrée par la circulation contre les parois courbes de l'élément séparateur. Leur consommation d'énergie importante (4 000 kWh/U.T.S.) n'a pas favorisé leur emploi dans la décennie 1995-2005 et a provoqué leur arrêt dans les rares pays qui avaient développé cette technologie.

Les procédés chimiques reposent sur les différences observées entre les cinétiques des deux isotopes lors d'échange entre phases liquides non miscibles contenant des sels d'uranium de valences différentes.

## Les procédés avancés

Des procédés très sélectifs ont démontré du point de vue scientifique la possibilité d'enrichir l'uranium à la teneur des réacteurs à eau légère (de 3,2 à 4,5 p. 100) en une seule étape. Les procédés de séparation par laser sont fondés sur l'excitation sélective vibrationnelle ou rotationnelle de l'un des isotopes de l'uranium (ou des molécules d'UF<sub>6</sub>) par des rayonnements lumineux.



### Procédé S.I.L.V.A.

*Encyclopædia Universalis France*

En France, l'étape de la faisabilité scientifique du procédé S.I.L.V.A. (séparation isotopique par laser en vapeur atomique) a été franchie au milieu des années 1990, sur le site du C.E.A. (Commissariat à l'énergie atomique) de Saclay. En partant d'un lingot métallique, plusieurs grammes d'uranium ont été enrichis avec des titres isotopiques visés pour un procédé industriel. À la fin de cette même décennie, des difficultés d'extrapolation ont été rencontrées à l'échelle de la séparation de plusieurs kilogrammes d'uranium enrichi. Des évolutions ont été apportées au programme de recherche, mais les choix industriels se sont portés sur l'ultracentrifugation compte tenu de la maturité de cette technologie et des risques qu'il restait pour porter le procédé S.I.L.V.A. au même niveau de développement à l'horizon 2010-2015 qui est celui du remplacement des usines de diffusion gazeuse. Les dernières phases de démonstration dans les installations de Pierrelatte (Drôme), en 2003, ont permis d'évaporer un flux d'uranium naturel de 1 000 kilogrammes pendant une durée d'essais d'une centaine d'heures. 204 kilogrammes d'uranium enrichi ont été séparés, avec un titre isotopique en  $U^{235}$  de 2,5 p. 100. Ces paramètres établissent à l'échelle 1 la capacité de ce procédé laser à enrichir l'uranium aux teneurs des réacteurs à eau légère en une seule étape, comme l'avaient anticipé les physiciens dans le milieu des années 1970.

## Le traitement et les déchets nucléaires

Le fonctionnement des centrales électronucléaires entraîne la production de combustibles irradiés qui contiennent, d'une part, des produits de valeur en matière fissile (uranium, plutonium) utilisables pour alimenter les futures centrales, et, d'autre part, des déchets radioactifs : produits de fission et transuraniens, mais aussi déchets de structure (tête, pied et

gaine de l'élément combustible retraité).

En France, à la sortie du réacteur, les combustibles irradiés sont entreposés en piscine pendant quelques mois afin de permettre la décroissance d'une fraction importante de la radioactivité des produits de fission à vie courte. Puis, la majorité d'entre eux (environ les deux tiers aujourd'hui) sont transportés sur le site de l'usine de traitement de la Hague (Manche) afin d'y être traités après un temps de refroidissement complémentaire (de 3 à 5 ans). Les combustibles restants sont entreposés en piscine dans l'attente de décisions industrielles qui dépendent de considérations technico-économiques sur le recyclage du plutonium et de l'uranium et des résultats des recherches sur les déchets à haute activité et à vie longue.

## Les objectifs du traitement

Séparer les divers radionucléides présents dans les combustibles nucléaires usés relève pour l'essentiel d'un double objectif : il s'agit, d'une part, de récupérer, pour les recycler, les éléments valorisables – qui peuvent constituer une proportion essentielle de la matière présente et présenter un potentiel d'énergie significatif – et, d'autre part, de dégager, pour ce que l'on considérera comme le déchet ultime, la ou les solutions qui apparaissent les plus appropriées (en particulier au regard des considérations de sûreté).

Le traitement des combustibles nucléaires usés, tel qu'il est aujourd'hui mis en œuvre en France, procède d'une telle stratégie (fig. 1) : l'extraction et le recyclage du plutonium (sous la forme de combustible Mox, combustible mixte d'oxyde d'uranium et d'oxyde de plutonium) sont aujourd'hui une réalité industrielle, et les produits de fission sont pour l'essentiel concentrés et conditionnés sous la forme de blocs de verre dont il est établi qu'ils peuvent constituer un confinement efficace pour de longues durées. Un tel schéma peut être considéré comme la transposition au domaine nucléaire du concept plus général de préservation des ressources naturelles et de limitation de l'impact sur l'environnement par un recyclage systématique. Il n'est toutefois pas mis en œuvre par tous les pays qui disposent d'un parc électronucléaire. Certains, tels les États-Unis et la Suède, envisagent plutôt le stockage en l'état du combustible usé, au regard de diverses considérations d'ordre économique, technique, politique (non-prolifération).

Le devenir des déchets ultimes fait l'objet de recherches importantes. En France, la loi du 28 juin 2006 énonce à cet égard deux principes : celui de la recherche d'une réduction du déchet ultime par le recyclage (validant

la stratégie du traitement telle qu'elle est mise en œuvre aujourd'hui, mais ouvrant aussi la voie à des options peut-être plus poussées dans lesquelles on sépare d'autres radionucléides que le plutonium et l'uranium) ; celui d'un stockage réversible en couches géologiques profondes comme la solution de référence pour les déchets ultimes (cf. NUCLÉAIRE - Les déchets nucléaires). Cela donne deux axes essentiels pour la poursuite des recherches, un troisième concernant l'entreposage temporaire des déchets et matières (facteur de flexibilité dans les modes de gestion).

## Les combustibles nucléaires usés

L'essentiel des combustibles nucléaires usés provient de l'irradiation, dans les réacteurs électronucléaires, de pastilles d'oxyde d'uranium enrichi (et aujourd'hui aussi, pour partie, d'oxyde mixte d'uranium et de plutonium). En France, du parc des 58 réacteurs de la filière à eau pressurisée qu'exploite E.D.F., et qui fournit de l'ordre de 450 TWh par an – soit les trois quarts de la consommation électrique du pays –, on décharge annuellement de l'ordre de 1 150 tonnes d'uranium irradié.

La composition du combustible a évidemment évolué au cours de l'irradiation en réacteur pour aboutir, au moment du déchargement, à la composition moyenne suivante :

- de l'ordre de 95 p. 100 d'uranium résiduel ;
- environ 1 p. 100 de plutonium ainsi que d'autres transuraniens dits mineurs (un ordre de grandeur en dessous) comme l'américium, le neptunium, le curium... ;
- de l'ordre de 4 p. 100 de produits issus de la fission, mais aussi de phénomènes de capture neutronique, et présentant une radioactivité très importante (environ  $10^{17}$  Bq par tonne d'uranium irradié).

élément	isotope	quantité (g/t)	teneur isotopique (%)
uranium (U)	234	222	0,02
	235	10 300	1,07
	236	4 224	0,46
	238	940 000	98,4
plutonium (Pu)	238	176	1,8
	239	5 673	58,3
	240	2 214	22,7
	241	1 187	12,2
	242	490	5,0

### Nucléaire : actinides majeurs de l'uranium et du plutonium

*Encyclopædia Universalis France*

L'uranium contenu dans le combustible utilisé a évolué durant l'irradiation

en réacteur qui consomme les noyaux fissiles. Les conditions d'irradiation généralement mises en œuvre dans les réacteurs du parc français, soit un taux de combustion (énergie thermique produite par unité de masse d'uranium chargé) de 30 à 50 GWj/t, conduisent à abaisser la teneur en isotope 235 de l'uranium. Généralement, les combustibles initiaux et irradiés contiennent, respectivement, 3,5 p. 100 et 0,9 p. 100 d'uranium 235. L'uranium présent dans le combustible utilisé reste donc légèrement plus riche en isotope fissile que l'uranium naturel pour lequel la teneur en uranium 235 est de 0,7 p. 100. Mais il faut également mentionner la présence, en quantité plus faible mais significative parce que gênante au regard de certains critères (propriétés neutroniques et radiologiques en particulier), d'autres isotopes ( $^{232}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$ ) qui sont absents du combustible initial (tabl. 1). Ces teneurs dépendent évidemment de la composition du combustible initial et des conditions d'irradiation.

Les processus de captures neutroniques et de désintégrations successives ont donné lieu à la formation de noyaux lourds présentant eux-mêmes, ou par l'intermédiaire de leurs produits de filiation, une période radioactive longue : ce sont les éléments de la famille des actinides, et parmi eux essentiellement le plutonium, mais aussi, pour l'essentiel, le neptunium, l'américium et le curium, dénommés actinides mineurs en raison de leur abondance moindre. Quant aux phénomènes d'activation de noyaux d'éléments non radioactifs, ils concernent surtout les matériaux de structure. Le carbone 14 est formé par activation neutronique des impuretés en azote du combustible.

Ce sont les produits issus de la fission de l'uranium 235 initial et de celle du plutonium formé (isotopes 239 et 241) qui constituent la source essentielle de la radioactivité du combustible utilisé au moment de son déchargement. On dénombre plus de 300 radionucléides (dont les deux tiers auront toutefois disparu, par décroissance radioactive, dans les quelques années qui suivent l'irradiation) répartis selon une quarantaine d'éléments de la classification périodique.

famille	masse en kg/t
gaz rares (Kr, Xe) .....	5
alcalins (Cs, Rb) .....	4
alcalino-terreux (Sr, Ba) .....	2
yttrium et lanthanides .....	10
zirconium .....	4
chalcogènes (Se, Te) .....	0,5
molybdène .....	3
halogènes (I, Br) .....	0,2
technétium .....	1
Ru, Rh, Pd .....	4
divers : Ag, Cd, Sn, Sb .....	0,3

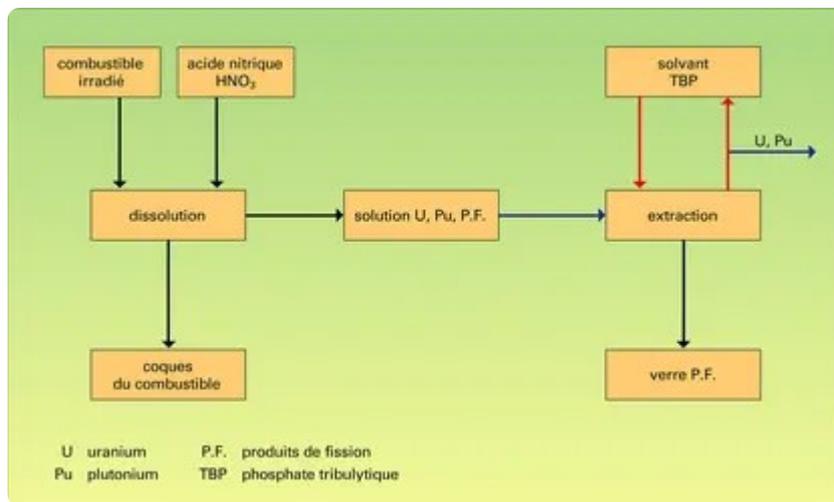
### Nucléaire : produits de fission

*Encyclopædia Universalis France*

Les radionucléides sont donc caractérisés par une extrême diversité : diversité des propriétés radioactives (avec des nucléides très radioactifs, à durée de vie très courte, et, à l'opposé, d'autres dont la période radioactive se mesure en millions d'années) et diversité des propriétés chimiques (tabl. 2). Cela nécessite, pour recycler les produits énergétiques valorisables et pour gérer les déchets ultimes, de mettre en œuvre des procédés complexes.

## Le procédé Purex de retraitement

Le procédé mis en œuvre pour retraiter les combustibles nucléaires usés est aujourd'hui, de façon quasi exclusive, le procédé Purex (Plutonium Uranium Refining by Extraction). Fondé sur l'extraction sélective de l'uranium et du plutonium par un composé organique, le phosphate tributylque (TBP), il est aujourd'hui fort de près de soixante-dix années d'études et de développement. Le concept a été établi au cours des années 1940 aux États-Unis. Il a débouché sur des applications industrielles aux États-Unis (Savannah River, 1954), au Royaume-Uni (Windscale, 1964) et en France (Marcoule, usine UP1, 1958). Ce procédé est aujourd'hui mis en œuvre dans le cadre de la stratégie de retraitement-recyclage, par la société française Areva N.C. (nuclear cycle) à La Hague (complexe UP2/UP3, d'une capacité nominale de retraitement de 1 600 tonnes par an d'uranium irradié), par la compagnie B.N.F.L. (British Nuclear Fuel Limited) au Royaume-Uni (complexe Thorp) et une unité analogue doit être mise industriellement en service à Rokkashomura, au Japon, avant 2010.



## Nucléaire : procédé Purex

*Encyclopædia Universalis France*

Le procédé Purex consiste dans une première phase à mettre en solution l'ensemble des éléments qui constituent le combustible utilisé (fig. 4). Dans une deuxième phase, l'uranium et le plutonium sont extraits sélectivement de cette solution en mettant à profit l'affinité du TBP envers ces éléments. Ces opérations sont conduites dans des conditions contraignantes en raison de la haute radioactivité et permettent d'obtenir des taux de séparation très élevés. On obtient ainsi :

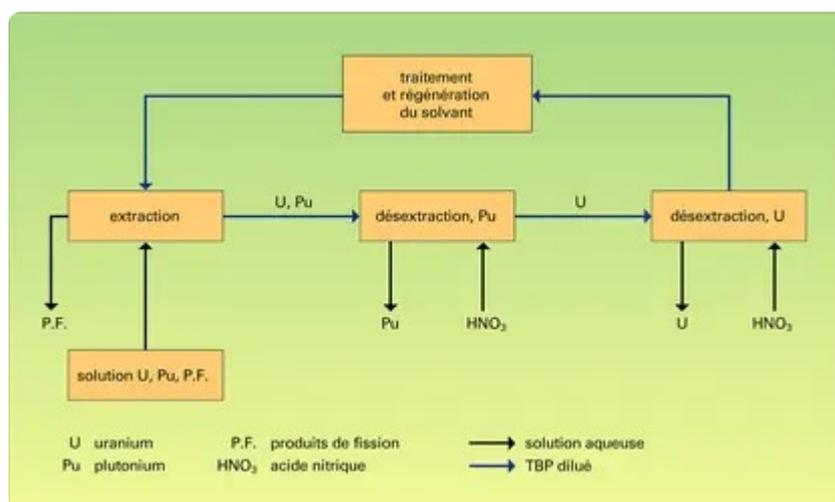
- de l'uranium et du plutonium, récupérés à mieux que 99,8 p. 100 et ne présentant in fine qu'une contamination résiduelle très faible ;
- des produits de fission, des actinides mineurs et des produits d'activation, qui constituent les déchets.

Les opérations de retraitement ne sont menées qu'à l'issue d'une phase d'entreposage, aujourd'hui de l'ordre de quelques années en moyenne, qui permet une décroissance significative de la radioactivité du combustible usé (pour une tonne d'uranium initial, environ 10<sup>13</sup> Bq après trois années d'entreposage).

La première étape du procédé Purex est un traitement mécanique qui consiste à mettre à nu le combustible pour que son attaque chimique puisse s'effectuer. Tronçonnés en morceaux de quelques centimètres de longueur, les aiguilles, ou crayons de combustible, sont envoyés dans un dissolvant, où s'effectue la dissolution sélective de l'oxyde dans de l'acide nitrique bouillant. Les morceaux de gaines (coques et embouts) non attaqués sont rincés puis envoyés aux déchets pour compactage. Des produits insolubles, dits « fines de dissolution », qui représentent les résidus de gaines et des platinoïdes, issus du combustible, restent présents dans les solutions. Leur quantité croît avec le taux de

combustion. Pour éviter qu'elles ne perturbent les opérations d'extraction, ces fines sont éliminées par centrifugation (clarification) et envoyées à la vitrification. La solution clarifiée est alors transférée vers les cycles d'extraction par solvant.

Au cours de ces opérations de dissolution et de clarification, des produits gazeux de fission ou d'activation sont libérés (krypton, xénon, mais aussi iode formé et désorbé à la suite de la dissolution de l'iodure de césium, ou du  $\text{CO}_2$  provenant de la présence de carbone 14). Ils sont accompagnés par des oxydes d'azote, des aérosols radioactifs et de la vapeur d'eau tritiée. L'air utilisé pour la ventilation fait l'objet d'un lavage pour arrêter les particules entraînées, recombinaison des oxydes d'azote, d'acide nitrique et faire refluer le tritium. L'iode est piégé sous forme d'iodure dans une solution basique ou sur des sorbants solides. Les gaz rares sont rejetés par la cheminée (le krypton 85 est le principal nucléide radioactif, mais son effet biologique est considéré comme négligeable du fait de son inertie chimique).



### Nucléaire : un cycle d'extraction du procédé Purex

*Encyclopædia Universalis France*

L'extraction consiste ensuite à faire passer un corps d'une phase liquide dans une autre phase non miscible avec la première. Pour extraire l'uranium et le plutonium, on utilise le TBP, qui est désormais devenu le solvant industriel de référence. Il est dilué à 30 p. 100 en volume dans du kérosène ou du dodécane afin de diminuer sa densité et sa viscosité. Pour obtenir une extraction totale et sélective, il faut procéder à une succession d'opérations élémentaires d'extraction liquide-liquide (cycles d'extraction) réalisées dans des extracteurs à multiples étages, où les phases circulent à contre-courant (fig. 5). Dans une première étape (premier cycle), on coextraie l'uranium et le plutonium dans une phase organique, les produits de fission restant pour l'essentiel dans la phase

aqueuse. Un deuxième cycle d'extraction permet leur séparation. Le plutonium passe alors en phase aqueuse, tandis que l'uranium reste dans le solvant, d'où il sera réextrait à son tour. L'uranium et le plutonium subissent alors séparément d'autres cycles d'extraction-réextraction, ce qui permet de parachever leur purification vis-à-vis des contaminants initialement présents. Après chaque cycle, le solvant est traité, régénéré et recyclé. Les cycles d'extraction sont assurés dans plusieurs types de contacteurs liquide-liquide : batteries de mélangeurs-décanteurs, extracteurs centrifuges, colonnes pulsées.

Le conditionnement final des produits valorisables, en vue de leur entreposage puis de leur recyclage, consiste à transformer le nitrate de plutonium en oxyde  $\text{PuO}_2$  par précipitation oxalique sous forme d'oxalate qui est ensuite décomposé par calcination. Le nitrate d'uranyle est parallèlement converti en oxyde.

Toutes les opérations de retraitement sont soumises à un contrôle très poussé assurant le suivi des matières fissiles, afin de disposer en permanence d'un bilan très précis des quantités entrantes et sortantes. Ce bilan permet de répondre aux exigences des réglementations internationales régissant l'utilisation des matières nucléaires à des fins civiles.

Une fois le plutonium et l'uranium séparés, les résidus sont considérés comme des déchets.

Le retraitement d'un combustible correspondant au fonctionnement d'un R.E.P. 1 000 MWe (19 t/an d'uranium) génère des rejets gazeux, des effluents liquides rejetés et des déchets ultimes conditionnés sous forme de verres (tabl. 3 et 4). L'activité rejetée (de l'ordre de  $47 \times 10^5$  GBq/an) dans les effluents représente moins de 2 p. 100 de l'activité conditionnée dans les déchets ultimes et environ 0,7 p. 100 de l'activité contenue dans le combustible irradié trois ans après sa sortie du réacteur.

déchets de procédé	activité (GBq/an)		matériaux d'incorporation ou d'enrobage	volume (m <sup>3</sup> /an)
	émetteurs β, γ	émetteurs α		
solution de produits de fission .....	270 . 10 <sup>6</sup>	3,5 . 10 <sup>6</sup> (1)	verre	3
déchets de structures (coques et embouts) et déchets technologiques de zone 4 (2) .....	12,5 . 10 <sup>6</sup>	18 500	compacté	5
boues de traitement des effluents liquides .....	0	0	-	0
déchets technologiques de zones 2 et 3	52	négligeable	ciment	20

(1) Dont plus de 99,5 % de transuraniens (moins de 0,5 % de plutonium).  
(2) Les zones 4, 3 et 2 correspondent à un risque potentiel décroissant de dissémination radioactive.

## Nucléaire : déchets ultimes

*Encyclopædia Universalis France*

	activité (GBq/an)
effluents gazeux	
krypton 85 .....	45 . 10 <sup>5</sup>
iode 131 .....	1,7 . 10 <sup>-2</sup>
iode 129 .....	0,25
tritium .....	1 125
effluents liquides	
émetteurs β, γ .....	580
tritium .....	175 000
émetteurs α .....	0,7

## Nucléaire : effluents annuels issus du retraitement du combustib...

*Encyclopædia Universalis France*

Les déchets ultimes sont conditionnés suivant leur contenu radioactif et leur nature chimique. Leur volume (< 0,4 m<sup>3</sup>/tU) est cinq fois moins important que le volume du combustible irradié non retraité correspondant.

## Les déchets issus du traitement

En France, les déchets issus du traitement des combustibles usés appartiennent à trois des cinq catégories de déchets (cf. NUCLÉAIRE - Les déchets radioactifs) :

- La catégorie des déchets F.M.A.-V.C. (de faible et de moyenne activité, et de vie courte) ne contient que des radionucléides dont la période est inférieure ou égale à trente ans et seulement des traces d'émetteurs à vie longue. Ils proviennent surtout des parties des usines en aval de la séparation des produits de fission.

- La catégorie des déchets M.A.-V.L. (moyenne activité et vie longue) comprend en quantité significative des radionucléides à vie longue dont la période de décroissance est supérieure à trente ans. Ceux-ci sont essentiellement constitués d'émetteurs  $\alpha$ . Ils ne dégagent pas, ou seulement très peu, de chaleur. Ils proviennent surtout des ateliers des usines gérant les flux uranium et plutonium ou des restes de parties mécaniques d'assemblages en tête d'usine, à condition qu'on en ait retiré suffisamment de produits de fission.
- La catégorie H.A. (haute activité) renferme principalement des solutions de produits de fission vitrifiées. Ces déchets sont en outre caractérisés par un fort dégagement de chaleur au moment de leur fabrication. Les combustibles usés qui ne seraient pas traités, considérés alors comme des déchets, entreraient dans cette dernière catégorie. Les solutions de produits de fission issues des premiers ateliers des usines de retraitement sont envoyés vers des ateliers particuliers, de haute activité : les ateliers de vitrification.

Les déchets provenant du traitement représentent en radioactivité contenue la partie de loin la plus importante des déchets de l'industrie nucléaire. Mais, en volume de déchets à stocker, ils ne représentent environ que 20 p. 100 de l'ensemble ; les 80 p. 100 restant proviennent des secteurs du cycle combustible en amont du retraitement (hors secteur mine d'uranium), ainsi que des diverses activités nucléaires (radioéléments, médecine, laboratoires de recherche, etc.). Toutefois, les déchets de traitement contiennent la quasi-totalité des émetteurs à vie très longue, et font l'objet de recherches en vue d'optimiser leur mode de gestion.

L'objectif du traitement des déchets est de concentrer la radioactivité sous un volume minimal et de stabiliser les déchets pour les conditionner dans une matrice adaptée. Les déchets technologiques sont compactés puis bloqués dans du ciment. Les déchets de structure (coques et embouts) sont compactés et les galettes produites sont conditionnées dans des conteneurs métalliques. Les solutions concentrées de produits de fission et d'actinides sont vitrifiées.

La vitrification consiste à transformer les solutions très radioactives en un verre minéral de type borosilicaté ou aluminoborosilicaté. Ce traitement permet d'effectuer la conversion des cations, radioactifs ou non, qui sont contenus dans les solutions (en général sous forme de nitrate), en oxydes faisant alors partie intégrante du réseau vitreux.

La transformation de la solution en verre passe par trois phases :

- l'évaporation qui élimine l'eau ;
- la calcination (vers 500 °C) qui décompose une partie des sels et en transforme les cations en oxydes ou en nitrates acides ;
- la vitrification qui complète la décomposition des sels et au cours de laquelle les oxydes réagissent entre eux pour former le verre à des températures de l'ordre de 1 000 à 1 200 °C.

Le verre est ensuite coulé dans un conteneur métallique puis entreposé sur le site de l'usine de retraitement. Des recherches sont effectuées pour accroître les durées de vie des équipements de vitrification et le débit des solutions traitables (vitrification en creuset froid avancé).

Le verre est un matériau minéral inerte chimiquement et stable dans le temps. L'objectif du conditionnement des déchets étant d'assurer un confinement performant et durable pour toutes les phases de gestion ultérieure des colis. Les recherches menées depuis les années 1990 ont permis de mieux connaître le comportement à long terme des verres et des autres colis dans les conditions d'entreposage et de stockage en couches géologiques profondes.

Par ailleurs, on s'attache toujours, en France comme dans de nombreux autres pays, à chercher à réduire la toxicité radiologique résiduelle à très long terme des déchets ultimes, notamment par un recyclage poussé des actinides mineurs, qui en sont les principaux contributeurs. Un volet important des recherches concerne donc la mise au point de procédés complémentaires pour séparer ces actinides mineurs. Ce qui est un préalable à une gestion différenciée de ces éléments et à une éventuelle « transmutation » (cf. NUCLÉAIRE - Les déchets radioactifs). Les études sont menées principalement avec des techniques de séparation chimique et hydrométallurgique à partir du procédé de retraitement actuel ou en aval de celui-ci, et concernent non seulement les actinides mineurs mais aussi certains produits de fission abondants dans le combustible utilisé ou potentiellement plus mobiles dans les stockages.

## Les recherches sur le retraitement

Le retraitement des combustibles irradiés par le procédé Purex permet donc, par une succession d'opérations mécaniques puis chimiques, d'aboutir aux séparations visées. On obtient ainsi à l'issue du traitement les produits suivants :

- 1. Les produits recyclables, uranium et plutonium, pour lesquels le degré de pureté est très élevé ; ces produits seront conditionnés sous la

forme adaptée aux spécifications du recyclage (dioxyde de plutonium par exemple pour la fabrication de combustible Mox).

- 2. Les déchets dits « de structure » (gaines, pièces mécaniques des assemblages) qui renferment l'essentiel des produits d'activation formés au cours de l'irradiation.
- 3. L'ensemble des actinides mineurs et la quasi-totalité des produits de fission initialement présents dans le combustible utilisé, groupé dans une même solution. Pour cette solution, on élabore un conditionnement particulièrement stable. Dans les pays qui utilisent le procédé Purex à l'échelle industriel (notamment la France, le Royaume-Uni et le Japon), c'est le procédé de vitrification qui est mis en œuvre.

Le procédé de retraitement atteint industriellement aujourd'hui son objectif de séparation pour valorisation des matières recyclables et réduction des déchets ultimes. Il délivre de bonnes performances, tant en ce qui concerne le taux de récupération, qui est supérieur à 99 p. 100, que pour les taux d'épuration de l'uranium et du plutonium récupérés (mieux que 10<sup>6</sup>).

Des recherches sont effectuées afin de préparer les évolutions futures du retraitement :

- pour adapter le concept à l'évolution des combustibles (vers des taux de combustion plus élevés, en particulier), à celle des stratégies de recyclage et des contraintes ;
- pour améliorer encore cette technologie ; mais il s'agit moins ici d'accroître les performances globales (aujourd'hui remarquables) que de procéder à des simplifications permettant d'obtenir le même service pour un coût moindre (compacité accrue des équipements unitaires notamment) ou de réduire encore le niveau des déchets et effluents issus de ces opérations ;
- pour chercher à compléter, dans une démarche de progrès continu, ces opérations par la récupération et le recyclage d'actinides mineurs, afin de réduire la toxicité à long terme des déchets ultimes.

— Noël CAMARCAT

— Bernard BOULLIS

## Bibliographie

A.E.N.-O.C.D.E., *L'Énergie nucléaire et son cycle de combustible*, 1987 ;

*Gestion du combustible irradié*, 1987 ; *Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation*, 1999

A.E.I.A., *Back End of the Nuclear Fuel Cycle : Strategies and Options*, 1987

J. Y. BARRE, *Uranium Enrichment : a Success Today, an Asset for the Future*, conférence U.S.C.E.A., Washington, 1991

J. Y. BARRE & J. P. PERVES, « La Recherche dans le domaine de l'enrichissement S.I.L.V.A. : la séparation isotopique par laser », in *Annales des Mines*, oct. 1992

M. BENEDICT, T. H. PIGFORD & H. W. LEVI, *Nuclear Chemical Engineering*, McGraw-Hill, 1981

M. BOURGEOIS, « Génie énergétique, cycle du combustible », in *Les Techniques de l'ingénieur*, vol. B 8 II, 1990

M. CLERC & P. RIGNY, *Physique des procédés de séparation des isotopes de l'uranium par laser*, R.G.N., 1985

J. H. COATES & M. D'ORIVAL, *A French Point of View on Laser Enrichment*, conférence U.S.C.E.A., Washington, 1991

J. H. COATES, P. RIGNY & A. SCHNEIDER-MAUNOURY, *The Silva Perspective*, conférence U.S.C.E.A., Monterey, 1989

« Les Déchets radioactifs et leur gestion », n° spéc. 4 de *R.G.N.*, Paris, 1988

J. LEFEBVRE, *Les Déchets nucléaires*, Eyrolles, Paris, 1987

F. A. LINDEMANN & J. G. ASTON, *Phil. Mag.*, 37, 523 ; 38, 173, Londres, 1919

J. MÉGY, « Le Retraitement dans l'ensemble des opérations du cycle du combustible », in *Notes d'information du C.E.A.*, n° 3, P.U.F., Paris, 1984

M. D'ORIVAL, *Reprocessed Uranium Front End Cycle Enrichment and Fabrication*, conférence international Nuclear Fuel Seminar, Saclay, 1989

J. A. PAISNER, « Atomic Vapor Laser Isotope Separation », in *Appl. Phys. B*, vol. XLVI, p. 253, 1988

P. RIGNY, « R & D Update on S.I.L.V.A. French Laser Enrichment Process », in *Nuclear Europe Worldscan*, 1990

J. .P. SCHAPIRA dir., *Proceedings of the Workshop Innovative Options in the Field of Nuclear Fission Energy*, Centre de physique des Houches,

Éditions de physique, 1998

H. DE W. SMITH, *Atomic Energy for Military Purposes*, Princeton Univ. Press, Princeton (N.J.), 1945

J. TEILLAC, *Les Déchets nucléaires*, P.U.F., 1988

R. TURLEY dir., *Les Déchets nucléaires, un dossier scientifique*, Société française de physique, Éditions de physique, 1997.

## CLASSIFICATION

Techniques

Énergie

Énergie nucléaire

Cycle du combustible nucléaire

Techniques

Énergie

Énergie nucléaire

Cycle du combustible nucléaire

Enrichissement du combustible nucléaire

Techniques

Énergie

Énergie nucléaire

Cycle du combustible nucléaire

Déchets nucléaires

Techniques

Énergie

Énergie nucléaire

Cycle du combustible nucléaire

Retraitement des combustibles irradiés

Bernard BOULLIS, Noël CAMARCAT, « **NUCLÉAIRE** - Cycle du combustible », *Encyclopædia Universalis* [en ligne], consulté le 28 septembre 2023. URL :

<https://www-universalis-edu-com.ezproxy.normandie-univ.fr/encyclopedie/nucleaire-cycle-du-combustible/>