

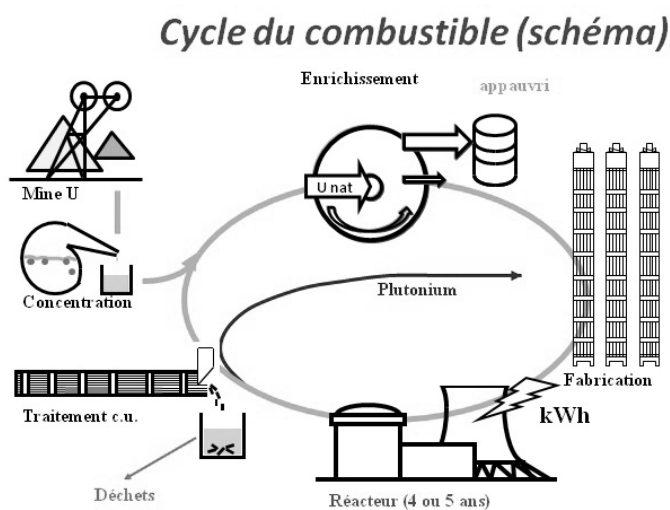
## Annexe 14

### Le Cycle du combustible et ses différentes étapes

Bertrand Barré

Classiquement, un combustible est une substance que l'on peut combiner à l'oxygène pour produire de la chaleur par combustion. Par extension, on appelle combustible nucléaire un matériau qui peut produire de la chaleur par fission des noyaux des atomes d'éléments lourds qu'il contient (uranium et éléments plus lourds).

On ne met pas directement dans le réservoir de sa voiture le pétrole brut jailli du puits. De même ce n'est pas directement le minerai d'uranium qui constitue le combustible nucléaire. Pour que des noyaux lourds puissent fournir de la chaleur utile par fission, ils doivent suivre un *cycle du combustible*, qui combine de nombreuses étapes industrielles schématisées sur la figure ci-dessous :



Les cycles du combustible dépendent du type de réacteur considéré et du choix du couple de noyaux lourds fissile et fertile choisi. Le cycle habituel du combustible des REP et des REB comporte les étapes suivantes :

- **extraction du minerai** d'uranium en mines souterraines, mines à ciel ouvert ou par lixiviation *in situ* ;
- **concentration** du minerai (qui contient souvent moins de 1 % d'uranium) sur le site même de l'extraction ;
- **conversion** des concentrés d'uranium en hexafluorure  $UF_6$ , solide à l'ambiante et gazeux à température modérée ;
- **enrichissement** isotopique de  $UF_6$ , pour augmenter la proportion de noyaux fissiles  $^{235}U$ , trop faible dans l'uranium naturel ;
- **fabrication** du combustible (conversion du fluorure en oxyde d'uranium enrichi  $UO_2$ , pastillage, frittage des pastilles, mise des pastilles en crayon, réunion des crayons en assemblage).

### Production d'électricité pendant 4 ans environ dans le réacteur

- **Entreposage** temporaire, sous eau, du combustible utilisé.
- **Gestion du combustible utilisé** et recyclage éventuel des matières récupérables.

Entre chaque étape, il y a de nombreux contrôles et quelques phases de transport. Chaque étape est elle-même un processus industriel complet, comme détaillé ci-dessus dans l'étape de fabrication.

Chaque installation du cycle, usine d'enrichissement, de fabrication ou de retraitement est dimensionnée pour alimenter plusieurs dizaines de réacteurs de grande taille : l'industrie du cycle du combustible est multinationale par nature.

L'activité du combustible augmente considérablement lors du passage en réacteur

#### **Cycle ouvert et cycle fermé**

La dernière étape, la gestion du combustible utilisé, diffère selon que l'on choisit un *cycle fermé*, comme celui décrit sur le schéma, qui correspond aux choix français et japonais, ou un *cycle ouvert*, retenu notamment en Suède et en Finlande.

Dans le cycle fermé, on trouve les sous-étapes suivantes :

- **traitement** chimique du combustible utilisé pour récupérer les noyaux lourds fissiles et fertiles d'uranium résiduel et de plutonium qu'il contient encore, en vue de les recycler ;
- **recyclage** du plutonium en combustibles MOX et ré-enrichissement de l'uranium résiduel ;
- **conditionnement** des déchets, et, en particulier, vitrification des déchets très radioactifs, résidus de la fission ;
- **entreposage et dépôt** des déchets conditionnés dans des stockages.

Le cycle ouvert – qui n'est pas un cycle du tout – se termine par le dépôt en stockage du combustible utilisé, considéré alors en bloc comme un déchet ultime. L'étape d'entreposage du combustible utilisé en piscine pour que leur activité diminue est souvent suivie de leur entreposage à sec. Quasiment tous les pays sont à l'étape d'entreposage. Certains ont repoussé à plus tard le choix entre cycle ouvert et cycle fermé.

#### **Extraction et conversion de l'uranium**

L'uranium est le plus lourd des éléments naturels restant sur la Terre. Son noyau est entouré de 92 électrons. Il est essentiellement composé de deux isotopes  $^{235}\text{U}$  et  $^{238}\text{U}$ .

| Isotope | Période (ans)  | Abondance relative actuelle sur Terre(en % U total) |
|---------|----------------|---|
| 235     | 713 millions   | 0.72  |
| 238     | 4.47 milliards | 99.275  |

La composition isotopique de l'uranium naturel se retrouve partout sur Terre<sup>1</sup>, aucun processus physique ou chimique à l'œuvre dans le milieu naturel n'ayant conduit à une séparation significative des deux isotopes.

<sup>1</sup> A l'exception du gisement d'Oklo, où ont eu lieu des réactions nucléaires naturelles qui ont consommé de l'uranium 235, et bouleversé la composition isotopique de l'uranium restant.

La période radioactive de  $^{238}\text{U}$  étant beaucoup plus longue que celle de  $^{235}\text{U}$ , le rapport  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  a diminué au cours de l'histoire de la Terre : c'est ainsi que 4,5 milliards d'années après la formation de notre planète, il reste encore la moitié de  $^{238}\text{U}$ , mais seulement 2 % de  $^{235}\text{U}$  initial.

Chimiquement, l'uranium ressemble au chrome et au tungstène. C'est un élément qui a une affinité marquée pour l'oxygène. Il entre dans la composition d'au moins deux cent minéraux. Dans la croûte terrestre, la teneur moyenne en uranium est d'environ 3 grammes par tonne (3 ppm).

L'uranium est largement dispersé dans les différentes roches de l'écorce terrestre. On le retrouve dans toutes les roches et sols, avec des concentrations particulières dans les phosphates, certains granites ou certaines roches ignées. On le rencontre aussi bien dans des terrains granitiques que sédimentaires, et même dans les eaux.

### LA PROSPECTION DE L'URANIUM

Le premier travail de la prospection d'un secteur, quelle qu'en soit la taille, est de rassembler toutes les données géologiques et minières déjà existantes. Aujourd'hui, la détection des zones potentiellement favorables est considérablement facilitée, avec l'avènement des techniques d'imagerie satellite, et la mise en œuvre de méthodes géophysiques de prospection.

La prospection radiométrique est la méthode géophysique spécifique à la détection de l'uranium, parce qu'elle est précisément basée sur la radioactivité. En fait, on détecte davantage le radium, descendant de l'uranium, dont le rayonnement est beaucoup plus pénétrant. La prospection radiométrique peut être faite à pied, portée (en automobile) ou aéroportée, pour les maillages à grande échelle et les régions d'accès difficile.

Les mesures radiométriques correctement interprétées, permettent certes de détecter les minerais d'uranium, mais ne donnent guère d'information sur la quantité ou la concentration de ce minerai. Des informations complémentaires peuvent être obtenues via une investigation du milieu par des méthodes électriques, électromagnétiques et magnétiques et par une étude géochimique consistant à détecter les signes de la proximité d'un gisement grâce au halo de perturbation chimique qu'il induit.

S'ils sont encourageants, les résultats de cette exploration peuvent être complétés par des sondages, qui donnent un accès direct au matériau.

### LES PRINCIPAUX GISEMENTS DANS LE MONDE

Les ressources mondiales identifiées, récupérables à un coût inférieur à 260 \$/kg d'uranium, s'élèvent à environ 6,3 millions de tonnes. Les ressources « ultimes » sont estimées à 16 millions de tonnes

À titre de comparaison, 2 millions de tonnes d'uranium ont été produites depuis les débuts de l'industrie nucléaire, soit une quantité proche du tiers des réserves identifiées aujourd'hui. Sur ces 2 millions, 1,2 millions de tonnes ont été consommés dans les réacteurs civils, et le reste est en réserve. **Au rythme de la consommation actuelle** (environ 60 000 tonnes par an), les ressources identifiées devraient assurer plus d'un siècle de consommation, et les réserves ultimes, près de trois. Au-delà de cet horizon, les millions de tonnes d'uranium contenus dans les phosphates pourraient ensuite être exploités mais il est à craindre que les milliards de tonnes contenus dans l'eau des océans restent toujours hors de prix.

|                |       |
|----------------|-------|
| Australie      | 1 679 |
| Kazakhstan     | 832   |
| Russie         | 566   |
| Canada         | 546   |
| USA            | 472   |
| Afrique du Sud | 295   |
| Namibie        | 284   |
| Brésil         | 279   |
| Niger          | 276   |

Table – Répartition des réserves (ressources) identifiées d'uranium dans le monde (milliers de tonnes)

La majeure partie de l'uranium produit dans le monde vient actuellement du Kazakhstan, de l'Australie et du Canada. On peut remarquer que certains gros consommateurs – actuels comme le Japon et les pays européens, ou potentiels, comme la Chine ou l'Inde – sont particulièrement mal dotés dans cette loterie des ressources naturelles.

### LES MINES D'URANIUM

Pour extraire l'uranium, il est nécessaire d'accéder au gisement, soit en décapant la partie de la roche stérile qui le recouvre (c'est le cas des mines à ciel ouvert), soit en creusant des galeries dans cette même roche stérile si le minerai se situe plus en profondeur (c'est le cas des mines souterraines), soit par « lixiviation ».

Les mines d'uranium *à ciel ouvert* présentent les avantages d'un accès facile au minerai. Les techniques et les engins employés sont comparables à ceux en service dans les carrières ou les chantiers de travaux publics. La couverture est décapée au bulldozer, puis le minerai est extrait à la pelle mécanique et transporté par camion par une rampe jusqu'au niveau du sol. Après exploitation, l'excavation peut dans certains cas être inondée et transformée en lac. Mais le plus souvent, le trou est rebouché avec les matériaux excavés. Ensuite, on remet en place la couche de sol.

La *lixiviation in situ* est une technique qui permet l'extraction de l'uranium en profondeur sans avoir à creuser d'ouvrages souterrains de grande ampleur. Plusieurs puits sont percés jusqu'au minerai. Une solution, habituellement alcaline, injectée dans un des puits, dissout l'uranium et est récupérée par pompage dans les puits avoisinants.

Le minerai dont l'exploitation est actuellement considérée comme rentable contient au moins un (voire quelques) kilos d'uranium par tonne. Les minerais canadiens de la Saskatchewan ont des teneurs de quelques pour cent, et parfois plus de 10%.

### **Traitement du minerai**

Après concassage et broyage, le minerai en pulpe est attaqué chimiquement. Le traitement le plus courant est une attaque à l'acide sulfurique. Le taux de récupération de l'uranium est en général supérieur à 90 %.

Après clarification et purification sur solvant ou résines échangeuses d'ions, l'uranium de la solution est précipité par addition d'ammoniaque, de magnésie, d'hydroxyde de magnésium ou de soude.

Lavé et filtré, le concentré contient environ 75 % d'uranium métal et est appelé le « yellowcake ». Ce dernier peut éventuellement être grillé pour obtenir l'oxyde d'uranium  $U_3O_8$ . Yellowcake et oxyde d'uranium représentent les produits commercialisables de l'usine de traitement.

L'industrie de l'uranium laisse d'énormes quantités de résidus miniers stockés sur place.

## La conversion

Arrivé au stade du yellowcake, l'uranium est encore loin de pouvoir être utilisé dans un réacteur nucléaire ! Il doit d'abord être mis sous la forme d'hexafluorure d'uranium  $UF_6$  (gazeux) pour subir un enrichissement isotopique.

Il s'agit d'abord de purifier le yellowcake pour le débarrasser des éléments comme le bore ou le cadmium, absorbeurs de neutrons et gênant la fission, ainsi que des éléments formant des fluorures volatils susceptibles de contaminer l'hexafluorure d'uranium produit plus tard. Cette purification se fait par extraction avec du tri-butyl-phosphate, après dissolution du yellowcake ou de l'oxyde d'uranium dans l'acide nitrique.

La solution de nitrate d'uranyle purifiée est ensuite transformée en une poudre d'oxyde d'uranium  $UO_3$  par chauffage à  $300^\circ$ , puis en  $UO_2$  par chauffage au four en présence d'hydrogène. La poudre d'oxyde  $UO_2$  est ensuite fluorée dans un four rotatif à  $450^\circ C$  en présence de fluorure d'hydrogène gazeux.

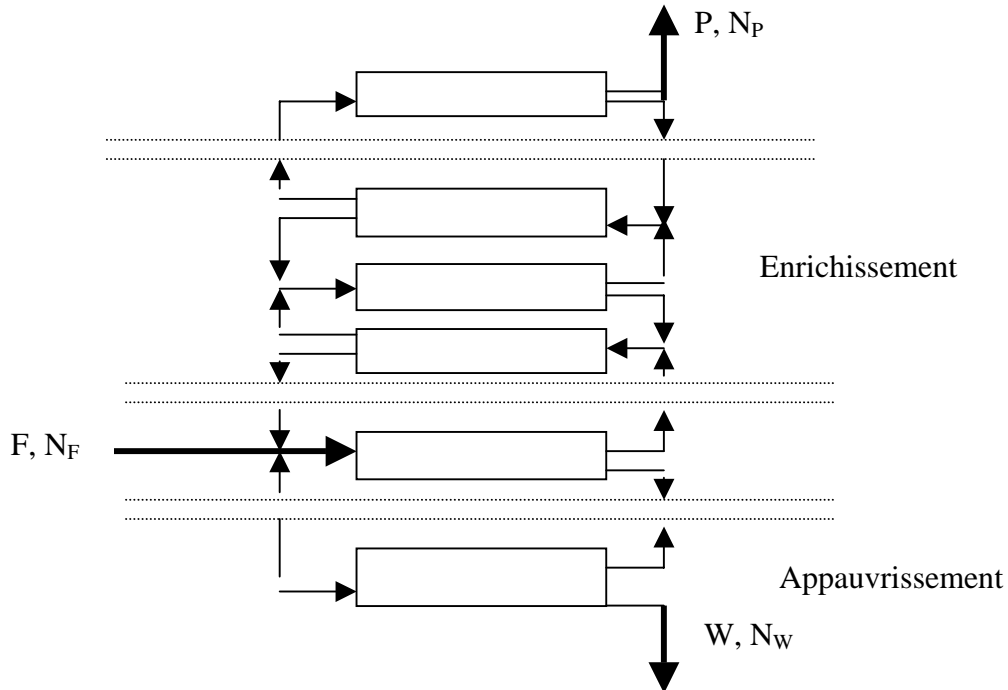
Le tétrafluorure  $UF_4$  ainsi obtenu est enfin converti en hexafluorure  $UF_6$  par une nouvelle fluoration à  $450^\circ C$ , cette fois-ci en présence de fluor gazeux. Cet hexafluorure d'uranium est ensuite acheminé sous forme solide, dans des conteneurs sous pression, vers l'usine d'enrichissement.

## L'enrichissement de l'uranium

Dans les réacteurs à eau ordinaire, l'enrichissement en  $^{235}U$ , de 0,7 % à 4 % ou plus, est imposé par le choix de l'eau ordinaire comme modérateur et caloporteur, et a pour but de compenser les captures de neutrons par l'hydrogène de l'eau.

Les propriétés physiques d'un élément pur dépendent de la composition isotopique de cet élément, mais ces différences de propriétés sont en général extrêmement faibles, et il n'est pas aisé de les exploiter pour la séparation isotopique. Les procédés mis en œuvre utilisent la différence de masse des isotopes à séparer, soit directement (spectrométrie de masse et ultracentrifugation), soit indirectement (diffusion gazeuse). Quant aux propriétés chimiques des éléments, elles dépendent en général très peu de l'isotope considéré, ce qui rend d'autant plus difficile la séparation isotopique par voie chimique.

## Cascades

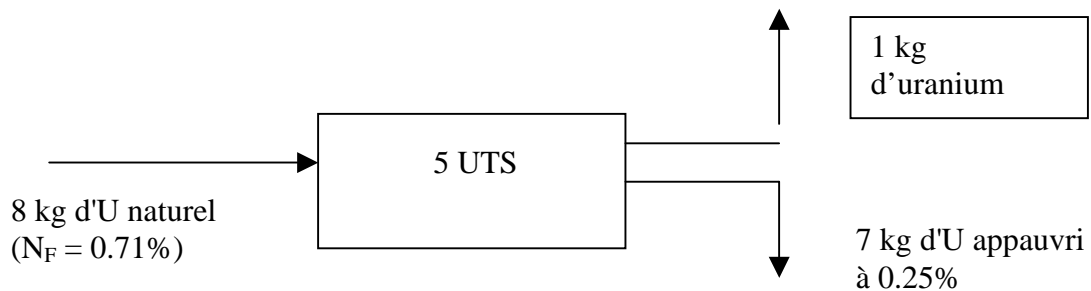


Un exemple de cascade. Chaque rectangle représente une étape de séparation élémentaire.  $P$ ,  $W$ ,  $F$  désignent les débits respectifs de produit enrichi, de rejet appauvri et d'alimentation, et  $N_p$ ,  $N_w$  et  $N_f$ , les teneurs isotopiques correspondantes.

Les méthodes commerciales de séparation ont un pouvoir séparateur élémentaire faible ou très faible, ce qui oblige à constituer des cascades en recommençant plusieurs fois l'étape élémentaire pour obtenir l'enrichissement désiré  $N_p$  (figure). La cascade est souvent constituée de deux parties : la plus importante est consacrée à l'enrichissement proprement dit. Quelques étages sont aussi utilisés pour appauvrir les résidus, le but étant de rendre maximum le travail de séparation de la cascade.

Le choix de la teneur de l'uranium appauvri résulte d'une optimisation économique entre le prix de l'uranium naturel et le coût de l'enrichissement. Plus  $N_w$  est élevé, plus l'enrichissement est facile, mais plus on consomme de matière première. Afin de mener à bien cette optimisation, on introduit la notion d'unité de travail de séparation (UTS), combinant les teneurs et les débits des trois flux.

La figure ci-dessous illustre les valeurs typiques des ces paramètres dans le cas de l'enrichissement de l'uranium civil :

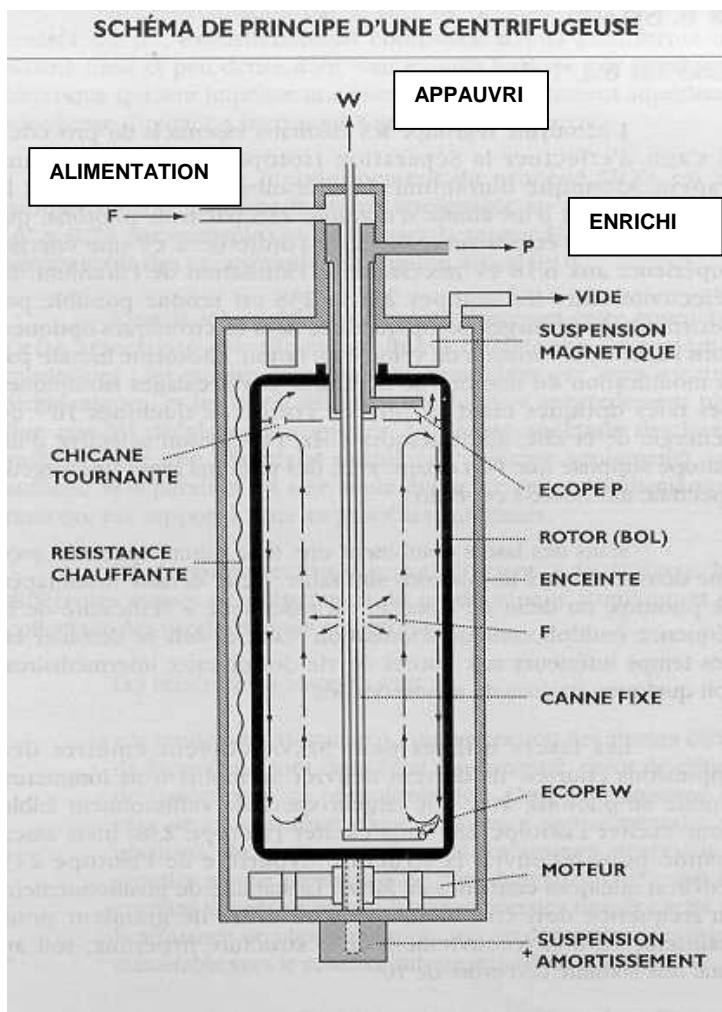


Ordres de grandeur pour l'enrichissement de l'uranium civil.

L'UTS est l'unité de compte commerciale de l'enrichissement. Le réacteur « typique » de 900 MWe consomme annuellement environ 100 000 UTS/an, à raison de 5 UTS/kg de U, enrichi à 3,7 % à partir d'uranium naturel.

## L'ultracentrifugation

Si les premières grandes usines commerciales étaient fondées sur le procédé de diffusion gazeuse, depuis une décennie le procédé qui s'impose est l'ultracentrifugation. Dans ce procédé, l'on fait tourner à très haute vitesse un bol cylindrique contenant du gaz  $UF_6$  (figure). Les molécules les plus lourdes se concentrent à la périphérie, tandis que les plus légères migrent préférentiellement vers le centre. Le facteur d'enrichissement typique vaut 1.3, une valeur nettement plus élevée que pour la diffusion gazeuse.



Le prélèvement des fractions appauvries et enrichies se fait au moyen d'écoques, petits tubes placés aux deux extrémités du bol à des distances de la paroi soigneusement optimisées. L'alimentation et le prélèvement du gaz par ces écoques provoquent le long de l'axe de rotation de la centrifugeuse, qui est vertical, un contre-courant qui transforme le gradient isotopique radial en un gradient axial. Avec ce courant axial optimisé, une centrifugeuse fonctionne un peu comme une colonne de distillation : le courant montant est progressivement enrichi en  $U^{235}$  tandis que le courant descendant est appauvri.

L'avènement des composites carbone-carbone a permis d'augmenter très significativement la vitesse de rotation des bols et a rendu la centrifugation très compétitive économiquement. La structure de coûts d'une usine d'ultracentrifugation est dominée par un fort coût d'investissement et un coût de fonctionnement des plus faibles. La fiabilité des centrifugeuses est excellente pour les modèles ayant atteint la maturité technologique. La consommation en énergie d'une usine d'enrichissement par

centrifugation est très réduite, de l'ordre de 50 kWh par UTS, soit 50 fois moins qu'une usine de diffusion gazeuse de même capacité.

### Fabrication des combustibles (REP)

Les objectifs de conception du combustible nucléaire peuvent se traduire par les critères suivants :

- fournir la puissance attendue du réacteur tout au long de la durée des cycles des assemblages en réacteur prévus, en s'adaptant aux variations de puissance imposées par le réseau ;
- confiner les « produits de la fission » dans les conditions de fonctionnement normal et les conditions incidentelles et accidentelles dans les limites du dimensionnement ;
- obtenir le coût de cycle le plus économique possible, en utilisant au mieux la matière fissile mise à disposition.

Cela se traduit par des exigences techniques et technologiques dont nous retiendrons principalement :

- une haute «densité d'énergie» ;
- une grande fiabilité, associée à une durée de vie élevée : l'assemblage combustible, sa structure et les crayons qui le constituent, doivent résister sans défaillance pendant toute la durée du séjour en réacteur, actuellement 4 à 5 ans;
- l'étanchéité du combustible. En situation incidentelle ou accidentelle, la sûreté exige que la matière radioactive reste confinée ; la gaine du crayon de combustible constitue la première barrière de confinement (les deux autres sont le circuit primaire, et l'enceinte de confinement) ;
- même si dans des situations accidentelles extrêmes des ruptures de gaine sont inévitables, et si l'assemblage subit des déformations, on doit pouvoir continuer à le refroidir ;
- malgré ces exigences de performance, l'assemblage combustible doit rester simple : simple à fabriquer, à manutentionner, à transporter, à réparer, puis, après usage, simple à entreposer ; on exige aussi le plus souvent, notamment en France, qu'il soit "traitable" pour en récupérer l'uranium et le plutonium.

Notons enfin que le choix des matériaux constitutifs de la structure de l'assemblage et des gaines tient compte de leur résistance à l'irradiation et à la corrosion.

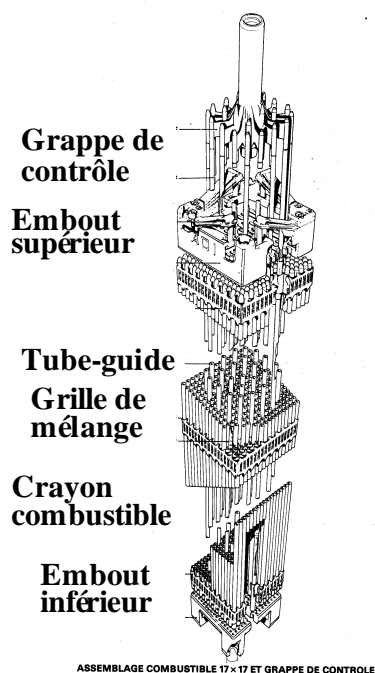
### Assemblages combustibles (REP et REB)

L'assemblage combustible d'un réacteur à eau ordinaire est toujours constitué de «**crayons**» contenant le combustible, arrangés en réseau à maille carrée<sup>2</sup> dans une «structure» assurant notamment le maintien mécanique des crayons.

Dans un réacteur à eau sous pression, la structure est ouverte, l'eau peut circuler transversalement aux assemblages. Dans un réacteur à eau bouillante au contraire, la structure est fermée, chaque ensemble de crayons est enfermé dans un boîtier interdisant les échanges transversaux.

### Assemblages de combustible pour REP

Chaque concepteur de réacteurs nucléaires a développé un modèle d'assemblage adapté à chaque modèle de réacteurs.



<sup>2</sup> Dans les réacteurs à eau VVR d'origine russe, le pas des assemblages est triangulaire



Tous ces assemblages pour REP sont constitués d'une structure comprenant un piéd, une tête et des tubes guides sur lesquels sont fixées les grilles de maintien des crayons combustibles. Les crayons absorbants des grappes de contrôle coulissent dans les tubes guides. Un des tubes guides est réservé à l'instrumentation du cœur.

### Assemblages combustibles pour REB

Comme pour le REP, chaque concepteur a développé des modèles d'assemblage adaptés à chaque modèle de réacteurs.

Tous les assemblages de combustible pour REB comportent un boîtier assurant les fonctions de :

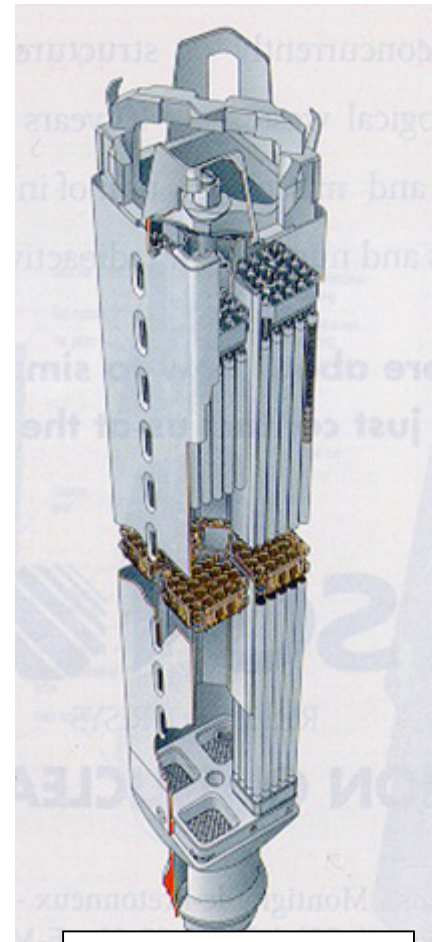
- canal hydraulique,
- maintien mécanique du cœur,
- unité de manutention du combustible,
- guidage des croix de commande (qui s'insèrent entre quatre boîtiers).

À l'intérieur de chaque boîtier (assemblage) on introduit, selon les cas, 1 ou 4 faisceaux de crayons constitués d'une tête, d'un piéd, d'un tube guide délimitant un canal hydraulique interne au faisceau, et de grilles d'espacement des crayons combustibles.

La quasi-totalité des combustibles pour réacteurs à eau -REP et REB- est à base d'uranium enrichi -de 3 à 5% d'U235- ; en France, et au Royaume-Uni, et bientôt au Japon, on fabrique aussi des combustibles à oxyde mixte  $UO_2$ - $PuO_2$  (MOX) permettant de recycler le plutonium.

La fabrication des combustibles MOX ne diffère de celle des combustible  $UO_2$  standard que dans la préparation des poudres avant pastillage et dans les dispositions spécifiques prises pour la mise en œuvre du plutonium : radioprotection, confinement, conduite à distance, contrôles.

Une étape préalable consiste à défluorer l'uranium ( $UF_6$ ) pour le convertir en oxyde ( $UO_2$ ) ; le procédé retenu en France «Voie sèche» consiste à traiter en continu l'hexafluorure ( $UF_6$ ) par un mélange gazeux de vapeur d'eau et d'hydrogène dans un réacteur unique.



Assemblage REB

La fabrication des combustibles à strictement parler comporte les étapes suivantes :

- élaboration des matériaux : alliages de zirconium, notamment, et des composants : tubes de gaines et pièces de structure ;
- préparation des poudres ( $\text{UO}_2$ ) ou ( $\text{UO}_2$  et  $\text{PuO}_2$ ), y compris les poudres issues des rebuts de fabrications précédentes ;
- pastillage : mise en forme de pastilles cylindriques et «frittage», c'est-à-dire cuisson pour obtenir une céramique ;
- crayonnage : introduction des pastilles et fermeture du crayon.
- assemblage et entreposage.

Chacune de ces étapes comporte des contrôles portant sur la conformité physique (géométrie, densité, aspect), chimique (degré précis d'oxydation, impuretés,...) et isotopique (teneur en  $^{235}\text{U}$ , teneur en plutonium, isotope par isotope) ; l'assurance de la qualité impose aussi la plus grande « traçabilité » des matières, des matériels et des opérations, c'est-à-dire l'aptitude à reconstituer l'historique et à garantir l'origine de chaque crayon

Qu'est-ce qu'un combustible « usé »?

Quand l'assemblage combustible produit de l'énergie dans le cœur du réacteur, une série de phénomènes se produisent :

- la matière fissile initiale (noyaux d'uranium) disparaît progressivement en produisant de l'énergie par fission et en donnant des isotopes de plutonium dont certains sont fissiles ;
- toute fission d'un noyau fissile donne naissance à deux fragments en général, dont l'un au moins est radioactif, qui donnent finalement de nombreux « produits de fission » présentant une extraordinaire diversité physico-chimique. Du point de vue chimique on finit par trouver dans les pastilles au moins un tiers des éléments du tableau périodique ;
- certains de ces *produits de fission* sont des "poisons" neutroniques, ils absorbent des neutrons qui seraient utiles pour la fission ;

Petit à petit, le combustible, qui perd des noyaux fissiles et se charge de poisons, devient de moins en moins réactif et finit par ne plus produire d'énergie : c'est alors un combustible "usé", qu'il faut remplacer dans le cœur par un combustible neuf. Encore faut-il qu'il ait bien résisté jusque-là à d'autres phénomènes complémentaires :

- certains produits de fission sont gazeux : leur production augmente progressivement la pression à l'intérieur des gaines ;
- la composition chimique des pastilles est modifiée par l'apparition des produits de fission et d'éléments au-delà de l'uranium (des actinides) ;
- pendant que ces événements se produisent dans les pastilles, la gaine est progressivement affaiblie par la corrosion, le bombardement neutronique, et un certain nombre d'interactions entre pastilles et gaine. L'intégrité de la gaine est très importante car c'est elle qui constitue la première *barrière* entre les produits radioactifs et l'environnement.

On s'assure, évidemment que la gaine sera encore assez solide pour résister à d'éventuels transitoires de puissance quand le combustible sera épuisé !

Quand on décharge un combustible usé, il contient encore environ 95 % d'uranium, beaucoup moins enrichi qu'à l'origine et un peu "empoisonné" par d'autres isotopes non fissiles, environ 1 % de plutonium, tous les produits de fission divers et quelques actinides mineurs. Il a rempli son rôle, il s'agit maintenant d'en disposer dans des conditions qui protègent le public des produits radioactifs qu'il renferme et de ceux qu'ils donneront par désintégration radioactive. Tout ceci, à un coût minimum.

L'uranium résiduel et le plutonium peuvent produire de l'énergie si on les extrait pour les *recycler*. L'économie de cette opération de recyclage dépend, bien sûr, du prix de marché de l'uranium qu'elle permet d'économiser.

Parmi les produits de fission radioactifs certains sont « très radioactifs » : cela signifie qu'ils sont très dangereux au plan de l'irradiation, mais aussi qu'ils se désintègrent rapidement. Si leur période radioactive est, par exemple, de 30 ans, ce qui est le cas pour deux isotopes parmi les plus abondants

après quelques années de refroidissement, cela veut dire qu'il en a disparu la moitié au bout de 30 ans, qu'il n'en reste que 1 pour mille au bout de 300 ans, et qu'au bout de mille ans il n'y en n'a plus, quelle que soit la quantité de départ. Mille ans est une durée importante, mais on peut encore l'appréhender. À la radioactivité prise comme critère pour évaluer le danger il faut ajouter celui de sensibilité des organes en cas d'incorporation de la radioactivité. À radioactivité égale deux produits de fission n'ont pas les mêmes effets et c'est vrai pour tous les isotopes radioactifs. Ces deux critères sont à la base de la définition de la radiotoxicité (voir plus loin)

À l'autre extrémité du spectre des périodes radioactives, certains produits de fission (ou certains actinides) ont des durées de vie si longues qu'ils sont très peu radioactifs, et ne présentent donc pas de danger d'irradiation sérieux sans pour autant ne présenter aucun effets s'ils sont ingérées – « longue durée de vie » est souvent comprise comme synonyme de danger "éternel" ce qui peut ne pas être vrai.

Entre les deux se situent les éléments qui posent problème car leur radioactivité n'est pas négligeable et qu'elle dure très longtemps et qu'il ne faut pas les ingérer. La plupart des actinides, et en premier lieu le plutonium, sont dans cette catégorie.

Un assemblage combustible neuf est un objet robuste, de constitution relativement simple, et parfaitement optimisé pour ce qu'on attend de lui, c'est à dire produire de l'énergie durant 4 ou 5 ans dans la cuve d'un réacteur nucléaire. Un combustible usé n'a pas seulement perdu sa capacité à produire de l'énergie : ses structures affaiblies renferment désormais un mélange complexe de produits radioactifs sous des formes physico-chimiques très variées et aux périodes très diverses. Il n'est pas du tout optimisé pour confiner ces produits dangereux et – redisons-le – aux propriétés très diverses, pendant des durées qui s'expriment en millénaires. Que faire de cet objet embarrassant ?

La première solution consiste à s'en débarrasser tel que, en l'enfouissant dans une couche géologique profonde stable. Ceci suppose que l'on démontre la durabilité des barrières supplémentaires dont il faut l'entourer puisqu'il ne constitue pas, en lui-même, un conditionnement optimisé. Ceci suppose également qu'on abandonne pratiquement toute idée d'utiliser, même dans très longtemps, les matières énergétiques qu'il contient. C'est l'option choisie par la Suède, la Finlande et étudiée préférentiellement par les États-Unis notamment.

La seconde solution consiste à traiter le combustible usé, c'est à dire d'en séparer chimiquement les divers constituants, afin d'en gérer chaque grande catégorie de manière spécifique. C'est une opération lourde et coûteuse car elle est effectuée sur des assemblages très radioactifs. On sépare ainsi uranium, plutonium (peut-être demain aussi les quelques actinides mineurs) et l'ensemble des produits de fission très radioactifs. Le fait d'avoir isolé ces derniers permet de leur donner un conditionnement approprié en sachant que l'essentiel de leur radioactivité aura disparu dans quelques centaines d'années. On les conditionne en les incorporant au sein d'une matrice de verre dont la composition est spécialement ajustée pour accepter ce mélange complexe. Le verre se corrode très lentement, et ne relâchera pas facilement les produits radioactifs qu'il a incorporés. *La technique du traitement est expliquée ci-après.*

L'uranium ne pose pas de problème particulier : on l'entrepose sous une forme chimiquement stable en attendant qu'il soit économiquement intéressant de le recycler. En France, une partie de l'uranium de traitement, ré-enrichi, est recyclé dans 4 réacteurs autorisés à pratiquer ce recyclage.

En séparant le plutonium, on a retiré du combustible usé ce qui constituerait l'essentiel de sa radioactivité mille ans plus tard. En fait, c'est même la concentration résiduelle de plutonium dans les verres qui en constituera la source principale de radioactivité à cette échéance.

Ce plutonium peut – et c'est aujourd'hui le choix français – être recyclé dans du combustible re-fabriqué, le « MOX ». Ce recyclage permet une économie d'uranium enrichi : le bilan financier de l'opération dépend du marché de ce dernier, car la fabrication des assemblages MOX est plus chère que celle du combustible à l'uranium enrichi, à cause des précautions particulières qu'entraîne la manipulation du plutonium. Il permet, en revanche, d'éviter l'accumulation sans limite du plutonium dans les déchets, dont nous avons vu qu'il complique la gestion. Il laisse aussi totalement ouverte

l'option d'une vraie utilisation, un jour, des ressources d'énergie qu'il représente<sup>3</sup>. Cette meilleure gestion de l'avenir peut mériter un surcoût raisonnable – d'autant plus qu'elle ne met pas en cause la compétitivité de l'énergie nucléaire par rapport à d'autres sources.

### **Le traitement des combustibles usés**

Les opérations de traitement des combustibles usés visent à récupérer les matières recyclables, uranium et plutonium, et à conditionner au mieux les déchets ultimes

À sa réception à l'usine de traitement de la Hague, le combustible usé a déjà passé de 6 mois à un an dans la piscine d'entreposage du réacteur pour laisser décroître une partie de son activité (on dit « refroidir »). Il passera encore quelques temps dans l'une des piscines de La Hague pour la même raison et ne sera pas traité avant 3 ou 4 ans au minimum (en fait plutôt 8 ans en moyenne). Cette réduction d'activité, très sensible les premières années, facilite significativement les opérations.

### **Le cisailage**

Une cisaille sépare les embouts des assemblages de combustible usé qui sont envoyés vers le rinceur à embouts et tronçonne les crayons combustibles en éléments de 35 mm environ qui tombent dans le dissolvant par une goulotte d'alimentation.

### **La dissolution**

Les opérations de l'atelier de dissolution comprennent :

- séparation des coques et des embouts ;
- dissolution des pastilles et rinçage des coques ;
- rinçage des embouts ;
- traitement des gaz et récupération de l'acide nitrique ;
- clarification des solutions ;
- évacuation des fines ;
- mesure des matières.

Le dissolvant est une roue munie de godets qui tourne par 1/12° de tour pour réaliser une rotation en huit heures permettant ainsi une opération continue. En fin de parcours, c'est à dire environ toutes les 2 heures, chaque godet se déverse dans un entonnoir vers une rampe hélicoïdale où les coques seront rincées. Les embouts sont rincés à l'acide, puis à l'eau et rejoignent les coques dans un fût d'entreposage en attente de compactage.

La solution typique de dissolution comporte 200 g/l d'uranium, 2,5 g/l de plutonium et 3,5 moles/l d'acide nitrique ; elle comporte aussi 6 à 7 g/l de produits de fission.

### **Les extractions**

Les extractions par solvant des éléments constituent le cœur du procédé puisqu'elles réalisent la séparation des matières recyclables, U et Pu, et leur purification. Il est remarquable de voir que tout ceci est possible avec un seul solvant, le « TBP » dilué dans un hydrocarbure voisin du kérosène.

Un étage de séparation comprend deux étapes : mélange et décantation. Dans la phase de mélange, la solution aqueuse de produits de fission riche en U et Pu est agitée en présence de la phase organique et forme une émulsion (du genre vinaigre et huile). Lors de cette étape l'uranium et le plutonium affichent leur préférence pour la phase organique à l'inverse des produits de fission et actinides mineurs. La deuxième étape est une décantation consistant à séparer le vinaigre et l'huile, chacun repartant de son côté. On répète l'opération plusieurs fois à contre courant (c'est classique en génie chimique) et on a extrait U et Pu dans le TBP.

Il faut maintenant réextraire le Pu et l'U. Le choix a été fait de séparer le plutonium et l'uranium dès le premier cycle par réextraction sélective du plutonium. Cela se fait par réduction chimique du plutonium : il n'est alors que peu extractible et se retrouve en phase aqueuse.

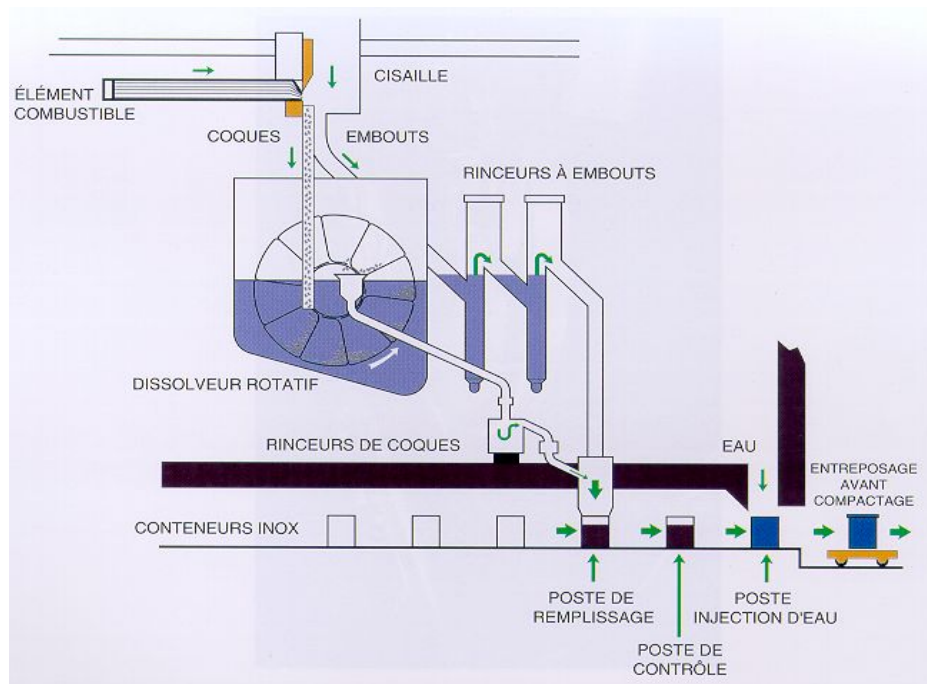
---

<sup>3</sup> Nous faisons ici référence aux réacteurs à neutrons rapides, qui utilisent bien mieux le plutonium.

La dernière opération reste la réextraction de l'uranium : elle se fait à l'eau faiblement chargée en acide nitrique.

Après ce premier cycle où le plutonium et l'uranium ont été séparés non seulement des produits de fission mais également l'un de l'autre, un deuxième cycle est nécessaire pour atteindre le niveau requis de pureté pour le recyclage sous forme de combustible. Sur le plan chimique il s'agit d'extractions par le TBP exactement semblables aux opérations précédentes. Les opérations sont facilitées par le fait que l'U et le Pu sont déjà séparés.

Une fois l'uranium séparé, il est récupéré sous forme de nitrate d'uranyle. Une partie est recyclée après un nouvel enrichissement (car il est à peu près équivalent à l'uranium naturel), tandis que le reste est entreposé. Le plutonium est transformé en oxyde et envoyé à la fabrication de combustible MOX.



Cisailage et dissolution

## La vitrification

La vitrification est le moyen de conditionner l'ensemble des produits de fission et les actinides. Le verre rassemble donc la quasi-totalité de l'activité (environ 99.5%) contenue dans le combustible ; il s'agit bien d'un déchet ultime, c'est à dire un déchet que l'on a stabilisé et ne comprenant pas la part valorisable.

Trois flux différents arrivent à la vitrification :

- les solutions de produits de fission issues de la séparation par solvant et après une étape de concentration ;
- les fines de dissolution que l'on a séparées à la centrifugeuse ;
- les concentrats d'effluents basiques issus des étapes de traitement du solvant.

Chacun des trois flux est envoyé dans la cuve de préparation de l'alimentation en proportions calculées pour respecter, avec des additifs nécessaires, une composition définie correspondant au domaine de vitrification,

Une fois la charge prête, on alimente le calcinateur qui est un tube tournant dont la coque extérieure est chauffée à 600 °C environ. L'eau est évaporée, les nitrates sont en partie décomposés en oxydes et la charge devient un "calcinât" solide. Elle tombe alors dans le four de fusion qui reçoit au même moment la « fritte de verre » qui est le composé de base permettant l'incorporation des produits de

fission. Elle se compose principalement d'oxydes de silice, bore, aluminium et sodium. Une fois le four plein, la fusion se poursuit quelques heures pour affiner le verre.

L'affinage terminé, on vide le four de fusion. Chaque coulée représente 200 kg de verre et il faut deux coulées pour remplir un conteneur de verres de 150 litres. Ce conteneur de verres contient en moyenne 84 kg de produits de fission et actinides et représente une consommation d'électricité de 360 millions de kWh. (Une famille de 4 personnes consomme par an 1 000 kWh si elle se chauffe à l'électricité).

Une fois produit le colis de déchets est laissé refroidir avant de subir un contrôle de non-contamination de la surface du conteneur préalable à l'envoi en entreposage. Il n'en sortira que pour aller vers sa destination finale, soit vers l'étranger s'il doit être retourné à un client étranger, soit vers le stockage de déchets français quand celui-ci sera opérationnel.

### **Le recyclage du plutonium dans les réacteurs à eau ordinaire : Le combustible MOX**

Quand un combustible à l'uranium (naturel ou faiblement enrichi en  $^{235}\text{U}$ ) produit de l'énergie dans un réacteur nucléaire, une partie des neutrons issus de la fission est capturée par les noyaux de  $^{238}\text{U}$  qui, par deux désintégrations bêta successives, se transforment en plutonium  $^{239}\text{Pu}$ . Ce plutonium étant lui-même fissile, comme  $^{235}\text{U}$ , une partie de celui qui se forme fissionne à son tour, produisant de l'énergie dans le réacteur. Une autre partie capture un neutron pour former du  $^{240}\text{Pu}$ , qui, à son tour, peut capturer un neutron pour former  $^{241}\text{Pu}$ , lui aussi fissile. Des captures ultérieures provoqueront la formation de  $^{242}\text{Pu}$  puis de noyaux d'américium et de curium, etc. Le plutonium est donc un sous-produit obligatoire de la fission de l'uranium.

Le plutonium produit dans les combustibles est un mélange d'isotopes, de masses comprises entre 238 et 242, dont les proportions dépendent de la composition initiale du combustible, et de la durée d'irradiation à laquelle il a été soumis dans le réacteur. La qualité fissile de ce plutonium dépend bien sûr de ces proportions, puisque les isotopes pairs ( $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  et  $^{242}\text{Pu}$ ) ne sont pas fissiles dans les réacteurs à eau.

Par exemple, un combustible REP formé au départ d'uranium enrichi à 4% en  $^{235}\text{U}$  contiendra en fin de vie environ 1% de plutonium, celui-ci composé d'environ 65% d'isotopes fissiles  $^{239}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Pu}$ . En fin de vie, la puissance dégagée par un combustible presque usé vient plus des fissions du plutonium que de celles de  $^{235}\text{U}$  : c'est déjà presque un combustible « MOX », comme nous le verrons plus loin. **Si on dépose ce combustible usé sans traitement en stockage, la totalité de ce plutonium sera dans les déchets ultimes de haute activité, et il y constituera, après quelques siècles, l'essentiel de leur radiotoxicité.**

Et pourtant, ce plutonium (ainsi, d'ailleurs, que l'uranium de traitement enrichi qui constitue encore 95 % du combustible usé) contient beaucoup d'énergie potentielle : la fission complète d'un gramme de plutonium fournit plus de chaleur que la combustion complète d'une tonne de pétrole...

C'est dans des réacteurs « à neutrons rapides » que ce plutonium pourrait être recyclé dans des conditions optimales, en permettant d'y brûler en totalité l'uranium appauvri, résidu des opérations d'enrichissement, mais ces réacteurs n'existent encore qu'à l'état de quelques prototypes, et leur déploiement en masse n'est pas pour demain.

En attendant, on recycle le plutonium dans les réacteurs à eau, REP et REB. Ceci permet à la fois d'économiser de l'uranium enrichi, auquel le plutonium se substitue, et d'éviter que le plutonium ne finisse dans les déchets ultimes ou ne s'accumule « sur étagère » après avoir été séparé lors du traitement des combustibles usés. Ce recyclage se fait dans les combustibles MOX. La combinaison traitement/recyclage permet également de réduire significativement les quantités de combustibles usés entreposés en piscine en l'attente de leur dépôt en stockage.

### **Qu'est-ce que le MOX ?**

Un combustible MOX, acronyme de **M**ixed **O**Xide fuel, est constitué d'un mélange d'oxydes de plutonium et d'uranium, ce dernier en général appauvri car le rôle du plutonium est de se substituer à l' $^{235}\text{U}$ . Un assemblage de combustible MOX, pour REP ou REB, est extérieurement en tous points

identique à un assemblage de combustible à l'uranium enrichi qu'il remplace : même squelette, mêmes espacements, mêmes crayons, gaines, grilles, ressorts, etc. Les pastilles qui remplissent les gaines ont des dimensions identiques : seuls changent leur composition et, donc, leur procédé de fabrication.

Dans le cœur d'un réacteur à eau, du fait notamment de la présence d'isotopes non fissiles du plutonium, il faut mettre environ deux fois plus de plutonium pour obtenir l'équivalence énergétique d'un assemblage enrichi en  $^{235}\text{U}$  : pour remplacer de l'uranium enrichi à 4 %, il faudra un mélange contenant environ 8 % de plutonium et 92 % d'uranium appauvri. En fin de vie, le combustible MOX ne contiendra plus qu'environ 4 % de plutonium<sup>4</sup>. Il y a donc consommation nette de plutonium.

Le recyclage MOX a débuté expérimentalement en Belgique au début des années 60. Il a été industrialisé ensuite en Belgique, Allemagne et Suisse, puis en France à partir de 1985. Aujourd'hui le Japon a commencé, à son tour, à « MOXer » des REB et des REP

En France, EDF a décidé de recycler progressivement son plutonium dans certains REP 900, en les MOXant à 30 % (c'est-à-dire qu'à chaque rechargement un tiers environ des assemblages neufs sont des MOX). 20 réacteurs sur 28 potentiellement "moxables" sont aujourd'hui chargés en combustibles MOX, et d'autres réacteurs attendent leur autorisation réglementaire. Ces 20 réacteurs MOXés par tiers permettent de recycler la totalité du plutonium extrait par traitement des combustibles EDF à l'usine de La Hague. Le « bilan plutonium » d'un REP MOXé est équilibré : il consomme dans ses assemblages MOX autant de plutonium qu'il en produit dans ses assemblages à l'uranium enrichi.

Le traitement des combustibles MOX usés n'est pas aujourd'hui demandé par EDF, mais deux campagnes de retraitement de combustibles MOX, portant sur plus de 10 tonnes, ont été réalisées à La Hague, pour démontrer la faisabilité de ce traitement sans modification sensible du procédé industriel.

La fabrication d'un assemblage MOX ne diffère de celle d'un assemblage classique que par l'étape de fabrication des pastilles, qui sont constituées d'oxyde mixte uranium/plutonium. Cette étape nécessite des protections spéciales : boîtes à gants et automatisation. Elle est réalisée en France dans l'usine MELOX située à Marcoule.

Techniquement, le comportement des assemblages MOX en réacteur est très voisin de celui des combustibles à l'uranium : les pastilles MOX sont un peu plus ductiles (elles agressent moins la gaine mécaniquement), mais, plus puissantes et plus chaudes, elles relâchent plus les gaz de fission en fin de vie, ce qui augmente la pression interne.

Réglementairement, le combustible MOX, beaucoup plus jeune, ne bénéficie pas encore en France d'autorisations équivalentes à celles du combustible standard : il est plus limité dans la durée d'irradiation en réacteur.

*Économiquement*, le MOX compense un coût de fabrication beaucoup plus élevé (dû à la combinaison des surcoûts de radioprotection imposés par la manipulation du plutonium et des capacités plus faibles des usines) par les économies d'uranium et de services d'enrichissement qu'il permet. Le bilan final dépend beaucoup du taux de combustion autorisé, c'est-à-dire de la quantité totale d'énergie que peut fournir un combustible donné.

Le combustible MOX usé dégage plus de chaleur, de « puissance résiduelle » que le combustible classique usé, et les déchets issus de son traitement restent chauds plus longtemps, à cause de la présence d'américium et de curium en plus grande quantité. Ceci aura un impact négatif sur le coût de stockage définitif des déchets ultimes – **mais il ne faut pas oublier qu'à un combustible MOX usé correspondraient 8 combustibles classiques**<sup>5</sup> qu'on n'aurait pas traités !

---

<sup>4</sup> Pendant que le plutonium chargé au départ fissionne, il s'en reforme par capture dans l'uranium appauvri, et une partie de ce plutonium secondaire est également brûlé sur place : la concentration finale de 4 % est la résultante de ces trois phénomènes. Le plutonium contenu dans les MOX usés a une qualité fissile inférieure à celle du plutonium initial.

<sup>5</sup> Il faut en effet récupérer tout le plutonium issu du traitement de 7 combustibles classiques usés pour fabriquer un assemblage MOX, lequel se substitue à un huitième assemblage dans le cœur du réacteur.