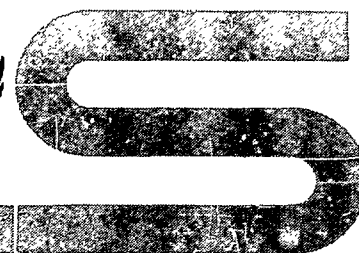


**CONFERENCE INTERNATIONALE
SUR L'ENERGIE D'ORIGINE NUCLEAIRE
ET SON CYCLE DU COMBUSTIBLE**
SALZBOURG (AUTRICHE) • 2-13 MAI 1977



AGENCE INTERNATIONALE DE L'ENERGIE ATOMIQUE

IAEA-CN-36/266

Un cycle de combustible fermé : celui de Rapsodie

- * M. LEVALLET
- * M. COSTA
- **** M. BOUDRY
- * M. MOUGNIOT
- ** M. MIQUEL
- *** M. ROBIN

- * : Département des réacteurs à neutrons rapides
Commissariat à l'Energie Atomique
CEN-Cadarache FRANCE
- ** : Département de Génie Radiochimique - Commissariat à
l'Energie Atomique - CEN-Fontenay aux Roses FRANCE
- *** : Département des Réacteurs à Eau - Commissariat à
l'Energie Atomique - CEN-Cadarache FRANCE
- **** : Compagnie Générale des Matières Nucléaires
CEN-Fontenay aux Roses FRANCE

Résumé :

La version FORTISSIMO du coeur de réacteur à neutrons rapides RAPSODIE délivre une puissance de 40 MW thermique et, depuis sa mise en service en Mai 1970, sur le centre d'études nucléaires de Cadarache, son facteur de disponibilité s'est fixé au voisinage de 85 %.

Le combustible, constitué d'aiguilles d'oxyde mixte UO_2 - PuO_2 enrichi à 30 % en plutonium, a déjà dépassé le taux de combustion de 150.000 MWj/t sur certains éléments.

Son retraitement est réalisé à l'atelier pilote du centre de production de LA HAGUE et le plutonium récupéré est déjà recyclé dans le réacteur.

Le cycle de RAPSODIE FORTISSIMO est donc aujourd'hui un cycle fermé.

Ce cycle est bien représentatif de la filière rapide et constitue ainsi un remarquable outil de recherche et développement dans les domaines de la fabrication de la tenue et des performances du combustible, du transport, du stockage et du retraitement. En particulier les études concernent l'évolution de la composition du combustible en produits de fission et en isotopes lourds qui conditionnent tant les processus de retraitement que l'activité des rayonnements émis. Un programme d'analyse de combustible irradié a été développé, portant soit sur des échantillons prélevés le long du cycle, soit sur le retraitement des assemblages eux mêmes.

Avec le double objectif, d'une part de mieux interpréter ce programme expérimental et d'autre part d'en extrapoler les résultats au cycle du combustible de la filière rapide en général, un ensemble de modèles de calculs et de données de base a été élaboré.

Le résultat des premières comparaisons, est très encourageant.

I - INTRODUCTION

La version Fortissimo du coeur de réacteur à neutrons rapides Rapsodie délivre une puissance de 40 MW thermiques et depuis sa mise en service en Mai 1970, sur le Centre d'études nucléaires de Cadarache, son facteur de disponibilité s'est fixé au voisinage de 85 %.

Le taux de combustion nominal a été porté progressivement de 50000 MWJ/T à 70000 MWJ/T et nous espérons pouvoir le fixer prochainement à 100000 MWJ/T. En effet certains assemblages précurseurs ont déjà atteint sans dommage un taux de combustion de 125000 MWJ/T. Des irradiations portant sur un nombre plus restreint d'aiguilles ont été poussées à 160000 MWJ/T.

Le suivi de ce combustible à travers les différentes étapes de son cycle (fabrication, irradiation, retraitement) a permis la mise en oeuvre d'un important programme de recherche, tant au niveau expérimental qu'à celui du développement des méthodes de calcul adaptées.

Bien que les flux de matières mises en jeu soit faible, chacune des opérations de ce cycle est néanmoins représentative de celui des réacteurs rapides de plus grande taille.

Les résultats que nous avons obtenus sont du plus grand intérêt pour le développement de la filière.

II - LE CYCLE DU COMBUSTIBLE DE RAPSODIE

II.1. - Le réacteur

Le coeur de Rapsodie-Fortissimo est actuellement constitué d'environ 70 assemblages combustibles fissiles disposés en réseau hexagonal. Chaque assemblage est constitué d'un faisceau de 61 aiguilles contenant des pastilles d'oxyde mixte UO₂ PuO₂ fritté, avec une teneur de 30 % en plutonium, l'uranium contenu étant enrichi à 85 % en U5.

Le coeur de Rapsodie-Fortissimo contient environ 50 kgs de Plutonium pour 117 kgs d'Uranium.

Les principales caractéristiques de l'assemblage et de l'aiguille sont rappelées sur la figure 1.

II.2. - Le cycle hors pile

II.2.1. - Fabrication

La fabrication des assemblages est faite à l'atelier de Cadarache par une chaîne dont la capacité pourrait atteindre 100 assemblages par an, soit 1 kg par jour d'UO₂-PuO₂. La demande de Rapsodie n'atteint pas actuellement la moitié de cette capacité.

Cet atelier assure :

- le mélange des poudres UO₂ - PuO₂
- la réalisation de pastilles d'oxyde mixte frittées
- la mise en place de ces pastilles en une colonne de 32 cm dans une gaine acier inox formant l'aiguille
- le montage des faisceaux de 61 aiguilles dans les assemblages hexagonaux.

II.2.2. - Le retraitement

Dans le cas de Rapsodie les opérations de démantèlement des assemblages combustibles sont réalisées dans une cellule proche du réacteur, à Cadarache, où sont effectués une série d'exams non destructifs (pesée, mesure des diamètres et longueurs, profilométrie, neutrographie, défauts de gaines éventuels...). Certaines aiguilles peuvent être ensuite acheminées en vue d'analyses destructives (contrôle du taux de combustion, tenue de l'oxyde, réaction oxyde gaine, rayonnement émis, production et migration des produits de fission) ; le flux principal des aiguilles est dirigé vers l'Atelier Pilote du Centre de Production de La Hague en vue de la récupération des matières fissiles.

La capacité de cet atelier de retraitement est cohérente avec celle de la chaîne de fabrication de Cadarache déjà mentionnée, soit 1 kg par jour d'UO₂ - PuO₂.

Les différentes phases du processus sont classiques :

- dissolution nitrique de l'UO₂ - PuO₂
- élimination des tronçons de gaine
- extraction des produits de fission
- séparation U et Pu
- récupération du Pu sous forme de PuO₂ fritté.

Dans le cas particulier de Rapsodie, l'Uranium étant très enrichi, sa récupération présente le même intérêt que celle du Pu ; il est récupéré sous forme de nitrate d'Uranyle et son enrichissement en U5 ajusté ultérieurement à 85 %.

II.2.3. - Transports des combustibles irradiés

A la sortie de la cellule de démantèlement les aiguilles sont placées dans des barillets eux-mêmes introduits dans des containers étanches regroupés dans des châteaux de transports assurant à la fois la protection mécanique et contre les rayonnements. Un château peut contenir jusqu'à 600 aiguilles.

III - LES PROBLEMES POSES PAR LES DIFFERENTES ETAPES DU CYCLE DU COMBUSTIBLE

Les problèmes posés à chaque étape du cycle du combustible sont de nature très diverse. On peut en effet distinguer les aspects technologiques au niveau des procédés de fabrication et de retraitement et d'autres problèmes plus classiques : irradiation, transport, stockage, etc... mais qui nécessitent aussi une bonne connaissance de la composition du combustible et des radiations émises. Cette connaissance passe par une étude détaillée du comportement du combustible en "Pile" et "hors Pile", en fait une connaissance de son évolution.

En fonction des différentes étapes du cycle, le tableau I ci-dessous résume les différents problèmes qui apparaissent et les grandeurs physiques à calculer.

Différents points du cycle	Problèmes à résoudre	Grandeurs à calculer
Irradiation en Pile	- Temps d'irradiation	Evolution du combustible en tous isotopes lourds et produits de fission
	- Masse excédentaire de Plutonium	
	- Conduite du réacteur	Source inhérente de neutrons
Déchargement Manutention Transport	- Refroidissement spécial hors Pile	Puissance résiduelle absorbée émise (α, β, γ). Activité des rayonnements pénétrants : γ , neutrons.
	- Temps d'attente	
	- Protections biologiques	
Retraitement	- Optimisation de la méthode d'extraction U-Pu	Composition chimique et isotopique du combustible :
	- Contrôle du bilan Pu	Eléments lourds (Uranium et transuraniens - Plutonium et transplutoniens)
	- Sécurité (criticité)	Produits de fission.
	- Protections biologiques	Rayonnements émis.
Déchets radioactifs	- Politique des déchets : recyclage en Pile ou non	Composition et radioactivité des déchets : produits de fission, transuraniens et transplutoniens
	- Temps de stockage	
	- Protections	
Fabrication Remise en Pile	- Enrichissement du combustible en fonction de la teneur isotopique du Plutonium	Composition isotopique de l'uranium et du plutonium
	- Protections	Rayonnements émis
	- Etat initial du combustible à son entrée en Pile	Source inhérente de neutrons
	- Politique de chargement et temps d'irradiation	

Il est à noter que la liste des problèmes énoncée dans le tableau I pourrait être reconduite sans modifications importantes pour le cycle d'un réacteur rapide de puissance.

III - LE PROGRAMME D'ETUDE MIS EN OEUVRE

Le problème fondamental du cycle de combustible et qui conditionne le développement ultérieur des surrégénérateurs est lié à la maîtrise de leurs bilans de matière fissile. En effet, dans le cas d'un réacteur tel que Super Phénix un bilan à 99 % en plutonium dans le cycle correspond à une augmentation de son temps de doublement de plus de 10 %. D'autre part les contraintes propres à l'environnement nécessitent aussi une connaissance précise des rejets actifs et en particulier du plutonium.

Le cycle de Rhapsodie a donc été utilisé pour tenter d'éclaircir ce délicat problème. L'objectif que nous nous sommes fixés peut être résumé de la façon suivante :

1) Mise au point des moyens de calculs prévisionnels suffisamment sûrs et précis (ou d'incertitude connue) pour les différentes grandeurs caractérisant l'évolution du combustible et les conséquences qui en découlent.

2) Mise au point des procédés de fabrication et de retraitement permettant d'assurer la circulation des matières fissiles avec le meilleur rendement possible (délais et bilans).

3) Les deux étapes précédentes étant franchies, en déduire les éléments permettant l'extrapolation au cycle de la filière.

Le processus mis en oeuvre peut être caractérisé en se référant au suivi d'un assemblage particulier :

1) Analyse de fabrication (masse, enrichissement, teneur isotopique, stoechiométrie, etc...) et réservation d'échantillons pour intercalibration ultérieure.

2) Calculs d'évolution et suivi des assemblages correspondants en cours d'irradiation dans Rhapsodie :

Isotopes lourds : U 232 à Cm 244

P.F. sous forme chimique : Ge à Er (37 éléments)

P.F. actifs : Kr 85 f à Tb 162 m (60 isotopes)

3) Prélèvement de 2 aiguilles (sur 61) après irradiation pour analyses fines portant sur :

- . Mesure précise du taux de combustion
- . Mesure de la composition en U et Pu (chimique et isotopique)
- . Mesure de la concentration des transuraniens et des produits de fission
- . Intercalibration avec les analyses de fabrication pour les échantillons réservés

4) Prélèvement d'1 aiguille supplémentaire pour étude paramétrique du procédé de dissolution à échelle réduite au CEN/FAR (cellule CYRANO)

- . Influence du taux de combustion
- . Analyse des insolubles
- . Activité des solutions en produits de fission et transuraniens

5) Etude complète du retraitement à l'échelle de l'assemblage à l'atelier pilote de La Hague (AT1)

- . Analyses après dissolution
- . Analyses en fin de procédé
- . Analyses des traces de matière fissile sur les tronçons de gaine (technique de neutrons différés ou P.F. traceurs)
- . Analyse des rejets et déchets divers

6) Synthèse de l'ensemble

- . Validation des calculs à partir des résultats d'analyses fines sur les 3 aiguilles (point 3 et 4)
- . Comparaison avec les analyses après dissolution (point 5)
- . Etablissement du bilan matière et évaluation des incertitudes

IV - RESULTATS

Pour caractériser le processus d'étude et les résultats obtenus on a pris comme exemple le cycle suivi par 5 assemblages ayant atteint en moyenne un taux de combustion maximum de 12000 MWJ/T. L'étude du cycle de ces 5 assemblages est représentatif de l'état de la technologie et des modèles de calcul dont nous disposons actuellement et bénéficie donc de l'expérience acquise depuis le démarrage de Rapsodie.

Nous avons résumé dans les tableaux ci-dessous les résultats obtenus et les différentes comparaisons effectuées.

IV.1. - Composition initiale du combustible

a) Masse Totale U	:	8759. g
Masse Totale Pu	:	3643.2 g
Masse Totale Am 41	:	<u>11. g</u>
		12413.2 g

b) Teneur isotopique

Uranium initial	
Isotopes	Teneur en %
U 233	0.
U 234	0.63
* U 235	82.64
U 236	3.5
U 238	13.23

Plutonium initial	
Isotopes	Teneur en %
Pu 238	0.
Pu 239	79.6
Pu 240	17.16
Pu 241	2.84
Pu 242	0.4

* : Pour la colonne fissile le rapport $\frac{U_{5}}{U_{total}}$ est de 85 %, ici on tient compte de la pastille en U naturel disposée en bout de la colonne fissile.

$$c) \frac{Pu}{U + Pu} \text{ initial} = 29.4 \%$$

IV.2 - Combustible après irradiation

a) taux de combustion en % d'atomes lourds brûlés.

()	()	
(Taux de combustion)	(Taux de combustion)	
(Maximum)	(Moyen)	
()	()	
(calcul	:	Mesure	:	Ecart)
(:		:)
(14.35 %	:	14.75 %	:	3. %)
(:		:)

b) Produits de fission regroupés par éléments chimiques
(37 éléments : du Germanium à Erbium)

Ecart moyen calcul-expérience : 3 %

Ecart maximum calcul-expérience : 15 %

c) Produits de fission par nuclides actifs

Ecart moyen calcul-expérience : 10 %

Ecart maximum calcul-expérience : 30 %

d) Transuraniens et Transplutoniens

Np 237 : écart calcul expérience : 8 %

Am 41 : 10 %

Cm 242 : 10 %

Cm 243, Cm 244 : 20 %

e) Bilan matière après irradiation

	Calcul	Mesures à Atelier Pilote après dissolution	obtenu en bout de chaîne	Ecart Calcul expérience bout de chaîne
Pu Total	3127. g	3080. g	3062. g	2 %
U Total	7733.	7660.	7600.	1.7 %
Pu + U	10860.	10740.	10662	1.8 %
Np 237	10.		9.2	8 %
Am 241	8.		8.8	10 %
Produits de fission	1535.		1590.	3 %

	Calculé	Mesuré
$\frac{\text{Pu}}{\text{U + Pu}}$	0.288	0.287

Le tableau précédent fait apparaître une masse totale finale de 10860 g. U + Pu calculée pour une masse totale obtenue réellement en bout de chaîne de 10662. g ; on a donc un écart apparent de 198 g de U + Pu (133. g U et 65. g Pu).

Une investigation plus poussée des incertitudes de calcul et du processus expérimental a permis de retrouver ces 198 g. et de les décomposer ainsi :

- 1) D'après les calculs précédents on voit que l'on a sous estimé par calcul le taux de combustion moyen (12.43 % calculé pour 12.8 % mesuré) ; on a donc surestimé par calcul la masse restante de U + Pu de 0.42 % soient 47 g U + Pu (14 g Pu et 33 g U).

- 2) Une analyse fine des déchets radioactifs (1500. g de produits de fission) a permis d'estimer leur teneur en U + Pu entre 14. g et 16. g.

- 3) Un examen détaillé des déchets solides, (accessoires de boîtes à gants, récipients...) contaminés au cours de la phase de conversion nitrate - oxyde, a permis de fixer entre 140 g et 150 g la masse de U et Pu contenue dans ces déchets. Le recyclage de ces déchets placés dans des fûts spéciaux fait l'objet de campagnes de retraitement séparées.

En définitive, compte tenu des incertitudes résiduelles liées tant aux calculs qu'aux mesures effectuées, le bilan de masse des matières fissiles peut être considéré comme équilibré avec une incertitude inférieure à 1 %.

f) Composition isotopique de l'Uranium et du Plutonium après irradiation.

TENEURS EN %									
	URANIUM				PLUTONIUM				
	U4	U5	U6	U8	Pu8	Pu9	Pu40	Pu41	Pu42
Calcul	0.68	78.4	5.3	15.6	0.04	76.9	20.	2.6	0.47
Mesures fines	0.65	77.8	4.4	17.15	0.05	76.3	20.7	2.45	0.5
Mesures usines de retraitement	0.63	77.6	4.6	17.2		76.3	20.8	2.4	0.5

CONCLUSION

Le suivi du cycle de RAPSODIE a donc permis d'importants progrès dans notre connaissance de la composition du combustible, tant en réacteur que hors réacteur. Ces progrès sont d'une part directement liés au perfectionnement de nos moyens de calcul et de nos techniques de mesures. D'autre part l'étude du bilan des matières fissiles au cours du retraitement nous a permis d'approfondir notre connaissance des phénomènes chimiques mis en jeu.

Nous ne nous sommes pas étendus dans cette communication sur l'apport considérable du cycle de Rapsodie Fortissimo, en ce qui concerne le procédé de retraitement lui même, mais il suffit de rappeler qu'il a été possible de retraiter à ce jour plus de 800 kg de combustible de réacteur rapide à haute teneur en plutonium sans difficulté importante. Certains assemblages avaient atteint 125000 MWJ/T et l'exemple que nous avons présenté montre que même dans ce

cas extrême les rendements sont excellents tant au stade de la dissolution que de l'ensemble du processus de retraitement.

Bien entendu ces résultats ont été obtenus au niveau d'un atelier pilote et nous ne mésestimons pas les difficultés inhérentes au passage à l'échelle industrielle. La réussite de cette étape constitue toutefois un encouragement important pour ceux qui ont la charge de mettre en oeuvre les cycles des futurs réacteurs rapides de grande taille.

Figure 1

RAPSODIE — ASSEMBLAGE COMBUSTIBLE

FORTISSIMO

