

COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE
DIVISION D'ETUDES DE RETRAITEMENT
ET DES DECHETS ET DE CHIMIE APPLIQUEE
Département de Génie Radioactif

DGR/A/81/41/MB/MM

FR8101792

Session d'études sur : "Le cycle du combustible
nucléaire".
Saclay, France - 5 - 13 Mai, 1981.
CEA - CONF 5740

RETRAIEMENT DU COMBUSTIBLE DE LA FILIERE A NEUTRONS RAPIDES

M. BOURGEOIS

4.

I - PROCEDE DE RETRAITEMENT UTILISE POUR LE RETRAITEMENT DES
COMBUSTIBLES DES REACTEURS A NEUTRONS RAPIDES

I - DESCRIPTION DU PROCEDE

Le procédé utilisé est le procédé PUREX (Fig. 1) adapté au cas particulier des combustibles des réacteurs à neutrons rapides.

On bénéficie donc de toute l'expérience que nous avons acquise sur ce procédé dans le retraitement des combustibles d'autres filières (uranium naturel graphite gaz, MTR, eau légère,) dans les usines de MARCOULE et de LA HAGUE, ainsi que de l'effort particulièrement important que le CEA fournit pour les projets industriels de retraitement des combustibles des réacteurs à eau.

2 - PROBLEMES SPECIFIQUES POSES PAR LE RETRAITEMENT DES
COMBUSTIBLES DES REACTEURS A NEUTRONS RAPIDES

Le tableau 1 donne les principales caractéristiques des combustibles oxydes "rapides" comparées à celles des oxydes "eau légère".

Les problèmes spécifiques sont localisés principalement en tête et en queue du procédé. Ils proviennent :

- de la présence de sodium :

Le sodium restant dans les assemblages après égouttage devra être éliminé avant d'effectuer la première étape du retraitement

- la présence d'un tube hexagonal très épais rendant difficile le cisailage de l'assemblage entier, opération qui conduirait également à des tronçons de dimensions peu compatibles avec celles des dissolvants. Ce boîtier d'acier inoxydable devra donc être très probablement éliminé avant le cisailage des aiguilles.

- l'utilisation d'acier inoxydable comme matériau de gainage. L'acier inoxydable présente l'avantage de ne pas être pyrophorique comme le zircaloy. Cependant les traitements successifs subis (irradiation, température, changement de milieu, élimination du sodium,..) risquent de la fragiliser et de favoriser sa destruction et sa corrosion pendant les étapes de cisailage-dissolution.

- le petit diamètre des aiguilles et la présence de fils espacés risquent de compliquer les opérations de cisailage-dissolution

- les taux de combustion élevés et les temps de refroidissements courts recherchés conduisant à des activités et à des puissances thermiques spécifiques très élevées en ce qui concerne la partie coeur des combustibles.

La dilution apportée par les couvertures axiales intégrées atténuera considérablement ces effets, partout où l'on peut considérer le mélange coeur-couvertures axiales relativement homogène.

- La concentration élevée dans l'oxyde mixte en produits de fission et surtout en platinoïdes (Ru, Rh, Pd auxquels s'associent Mo et Tc) augmente la teneur du combustible en produits insolubles dans les conditions d'attaque habituelles. Ces produits sont très fins, plus gros cependant que ceux formés dans les combustibles LWR et risquent d'emprisonner une fraction du plutonium.

Le plus abondant de ces platinoïdes, le ruthénium, a des propriétés très complexes qui lui confèrent une fâcheuse tendance à se disperser dans le procédé. Or, son rendement de fission est plus élevé dans un réacteur à neutrons rapides que dans un réacteur à eau légère.

- la forte concentration du combustible en plutonium, ce qui complique les problèmes de criticité et dans une certaine mesure la chimie du procédé, et conduit à des flux de Pu très importants avec les contraintes qui y sont associées.

Il faut cependant remarquer que pour les calculs de de criticité on peut dans le cas des combustibles rapides, tenir compte d'une valeur minimale en ^{240}Pu relativement élevée, à savoir celle du plutonium de départ.

3 - EXPERIENCE ACQUISE

Conscient des problèmes que l'adaptation du procédé PUREX au traitement des combustibles rapides allait poser, le CEA a entrepris très tôt les efforts de recherche et de développement nécessaires :

1 - Laboratoire actif

Dès que Rapsodie a pu fournir des aiguilles irradiées à des taux de combustion significatifs, c'est-à-dire en 1968, on

a procédé à des essais de laboratoire dans les équipements blindés de Fontenay-aux-Roses. C'est ainsi que des essais ont été réalisés sur des aiguilles Fortissimo irradiées jusqu'à 100.000 MW j/t et même, sur de petites quantités, jusqu'à 150 000 MW j/t ; et sur des combustibles PHENIX coeur 1 et coeur 2 irradiées à 64 000 MW j/t. Ces essais se poursuivent encore, au fur et à mesure que RAPSODIE-FORTISSIMO et PHENIX fournissent des combustibles de plus en plus irradiés.

2 - Atelier AT1

L'Atelier AT1 de LA HAGUE, conçu spécialement pour traiter le combustible de RAPSODIE avec une capacité d'1 kg par jour, entré en service en 1969, et arrêté en 1979, a traité plus d'une tonne d'oxydes mixtes irradiés à un taux de combustion allant jusqu'à 120 000 MWjt⁻¹ et parfois assez peu "refroidis" (5 mois, et pour un nombre réduit d'assemblages 1,5 mois, assurant ainsi la fermeture du cycle de RAPSODIE.

Une partie de ce combustible (environ 150 kg) est venue du coeur de PHENIX

3 - Atelier Pilote de MARCOULE

L'Atelier Pilote de Marcoule a été adapté au traitement des oxydes et notamment à ceux des réacteurs à neutrons rapides. Il a traité un lot de 50 kg de combustible très irradié de RAPSODIE-FORTISSIMO en 1975, un lot peu irradié mais beaucoup plus important (1650 kg) provenant du réacteur allemand KNK en 1976, un lot de 2,3 t beaucoup plus irradié (supérieur à 45 000 MWj/t) de combustibles PHENIX à uranium enrichi, en 1977 et 1978. Il traite actuellement des combustibles PHENIX au plutonium irradiés à environ 65 000 MWj/t et refroidis plus de 1 an.

Le traitement de ces combustibles se fait à une cadence de l'ordre de 10 à 20 kg par jour.

Ce changement d'échelle par rapport à AT1 est obtenu notamment par l'utilisation de colonnes pulsées, extracteurs envisagés pour les prochaines usines, au lieu de mélangeurs-décanteurs. En outre, le travail à cette échelle a permis de faire

de nombreuses observations intéressantes (prélèvements d'insolubles, efficacité du système de clarification, comportement d'extracteurs centrifuges au 3ème cycle uranium) et certaines expérimentations (partition U/Pu par réduction électrolytique).

4 - UP 2

A cet acquis provenant de ces installations à vocation de R et D, il faut ajouter celui du retraitement de plusieurs tonnes d'(U + Pu) de combustibles Phénix dans l'usine UP2, traité par dilution avec des solutions de dissolution de combustibles gaz-graphite après cisailage et dissolution dans HAO.

II - ADAPTATION AU STADE INDUSTRIEL - PROGRAMME DE R ET D

La faisabilité du retraitement des combustibles des réacteurs à neutrons rapides a donc été largement démontrée, à une échelle significative, sur des combustibles dans la majorité des cas beaucoup plus difficiles à traiter que ceux envisagés pour les réacteurs commerciaux : plus forte concentration en Pu dans le coeur, taux de combustion au moins égaux aux maxima prévus, temps de refroidissement très courts, mauvaises conditions de stockage, ...)

Les programmes de R et D du CEA ont donc été axés sur l'adaptation au stade industriel du retraitement des combustibles des futures grandes centrales en réalisation ou en projet, en examinant tout particulièrement les problèmes liés au changement d'échelle (capacités et cadences élevées, flux important de Pu et de produits de fission, ...) avec le souci d'optimiser l'ensemble. En particulier, le CEA étudie le projet d'une usine capable de retraiter l'ensemble des combustibles de SUPER-PHENIX 1 et des réacteurs suivants (Projet PURR - Prototype d'Usine de Retraitement des Rapides). Le planning des études est basé sur le démarrage de cette installation au début des années 1990.

Les programmes de R et D se déroulent sur quatre plans :

1 - Etudes de laboratoire qui se poursuivent à Fontenay-aux-Roses sur les combustibles de plus en plus irradiés : examen du comportement des gaines, mesure des vitesses de dissolution, étude des résidus (quantités, composition) et de leur mode d'attaque, essais de schémas de purification etc... En outre, des essais de laboratoires sont nécessaires pour expérimenter des innovations éventuelles, vérifier les conséquences de certaines modifications du procédé (changements de réactifs, recyclages etc.).

2 - Essais et calculs de génie chimique pour sélectionner les types d'appareils et fournir les données nécessaires à leur extrapolation industrielle (Fontenay-aux-Roses).

3 - Expérimentation de prototypes industriels, c'est-à-dire mise au point, en inactif, de tous les appareillages en vraie grandeur, avec tous leurs systèmes périphériques (traitement des gaz, évacuation des déchets), et avec toute la technologie de la future exploitation (télécommande, contrôle et régulation, mode de dépannage et d'intervention, etc... (MARCOULE)

4 - Campagnes en Atelier Pilote à MARCOULE sur combustibles de la filière (PHENIX), afin de mettre à l'épreuve en actif et pendant des durées significatives les procédés et les types d'appareils destinés à être utilisés en usine.

Considérant l'importance de ce programme, et compte tenu de l'âge de l'installation actuelle le CEA a lancé le projet TOR (Traitement d'Oxydes Rapides) qui a pour but :

- de porter la capacité actuelle de l'Atelier Pilote de MARCOULE à environ 5 t (U + Pu) par an permettant d'assurer le retraitement des combustibles PHENIX et par suite la fermeture de son cycle, tout en conservant une disponibilité pour le retraitement de combustibles venant d'autres réacteurs rapides,
- d'accroître la fiabilité de l'installation,
- d'augmenter les moyens de R et D, permettant ainsi d'expérimenter les types d'appareillages envisagés pour les usines.

CONCLUSION

Un gros effort a été fourni par le CEA sur le retraitement des combustibles des réacteurs à neutrons rapides. Les résultats ont permis de démontrer que le procédé de voie aqueuse peut être appliqué à de tels combustibles : près de 10 années de fonctionnement de l'Atelier AT1 qui traite le combustible de RAPSODIE et les bons résultats obtenus à l'Atelier Pilote de MARCOULE sur des lots importants de combustibles en témoignent.

Le CEA poursuit son effort principalement sur le passage à l'échelle industrielle grâce notamment à l'expérimentation de prototypes industriels et au lancement du projet TOR qui permettra dès 1984 de retraiter des combustibles rapides à une échelle significative et d'apporter des moyens supplémentaires importants pour la R et D.

TABLEAU I - COMPARAISON DES COMBUSTIBLES IRRADIES DES REACTEURS A NEUTRONS RAPIDES ET A EAU LEGERE

| CARACTERISTIQUES DES COMBUSTIBLES | NEUTRONS RAPIDES | | EAU | |
|--|------------------------------------|-------------|--------------------------|------------|
| | COEUR | COEUR + CAI | LEGERE | |
| IRRADIATION | Taux de combustion moyen (Gw/t) | 50-100 | 30-60 | 30-40 |
| | Température à coeur (°C) | 2000 / 2300 | | 1800/1900 |
| PUISSANCE SPECIFIQUE APPROXIMATIVE (watts/kg U+Pu) | Après un temps de désactivation de | | | |
| | - 6 mois | 70 | 40 | 18 |
| | - 1 an | 40 | 20 | 10 |
| | - 3 ans | 10 | 6 | 2,5 |
| COMPOSITION | Plutonium (%) | 15 - 25 | 10 - 15 | 1 |
| | Produits de fission (%) | 5 - 10 | 3 - 6 | 3 - 4 |
| AIGUILLES | Diamètre (mm) | 5 - 9 | | 9,5 - 14,5 |
| | Gaine | | inox | zircaloy |
| | Fils espaceurs | | oui | non |
| | Sodium | | oui | non |
| TEMPS DE DESACTIVATION SOUHAITE | le plus court possible | | pas nécessairement court | |

Fig. 1 :

LE TRAITEMENT DES COMBUSTIBLES IRRADIÉS

PROCÉDÉ PUREX (Voie aqueuse)
— Schéma simplifié —

