

FR8502246

COMMISSARIAT
A
L'ÉNERGIE ATOMIQUE

FRENCH EXPERIENCE AND PROSPECTS IN THE
REPROCESSING OF FAST BREEDER REACTOR FUELS

J. MEGY

Directeur de la

Division d'Etudes de Retraitement et des Déchets et de Chimie Appliquée

AIF-FORATOM. International conference on fuel cycle
Geneva (Switzerland) 31 May - 3 Jun 1983
CEA-CONF--7831

INSTITUT DE RECHERCHE TECHNOLOGIQUE ET DE DEVELOPPEMENT INDUSTRIEL
Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses - B.P. n° 6 - 92260 Fontenay-aux-Roses

COMMISSARIAT
A
L'ÉNERGIE ATOMIQUE

EXPERIENCE ET PERSPECTIVES FRANCAISES DANS LE DOMAINE DU RETRAITEMENT
DES COMBUSTIBLES DES REACTEURS A NEUTRONS RAPIDES

J. MEGY

Directeur de la
Division d'Etudes de Retraitement et des Déchets et de Chimie Appliquée

SOMMAIRE

	<u>n° de page</u>
RESUME	1
I - INTRODUCTION	2
II - RAPPEL DES PROBLEMES SPECIFIQUES POSES PAR LE RETRAITEMENT DES COMBUSTIBLES DES REACTEURS A NEUTRONS RAPIDES	3
III - L'EXPERIENCE ACQUISE	4
IV - RECHERCHES ET DEVELOPPEMENT POUR L'ADAPTATION DU PROCEDE A L'ECHELLE INDUSTRIELLE	5
IV.1 - Les Moyens d'études - l'Atelier TOR	5
IV.2 - Les Objectifs	7
V - ETUDES CONCEPTUELLES D'UNITES DE RETRAITEMENT INDUSTRIELLES	11
VI - CONCLUSION	13

R E S U M E

Dans cette communication l'auteur rappelle l'expérience acquise en France dans le domaine du retraitement des combustibles des réacteurs à neutrons rapides et notamment les caractéristiques et les quantités de combustibles traités dans les installations de la Hague et de Marcoule.

Il évoque ensuite les efforts de développement actuellement entrepris avec la réalisation du nouvel atelier expérimental TOR à Marcoule, la mise au point d'appareillages nouveaux et les études conceptuelles d'unités de retraitement industrielles.

I - INTRODUCTION

Le programme français dans le domaine du retraitement des combustibles des réacteurs à neutrons rapides s'inscrit dans le déroulement logique du développement de cette filière, qui a atteint, en ce qui concerne le réacteur, le stade industriel en passant par les trois étapes principales suivantes.

- étape expérimentale, avec le réacteur Rapsodie de Cadarache monté en puissance en 1967, porté de 24 à 40 MWth en 1970 et arrêté en 1982. Le cycle du combustible de Rapsodie a été bouclé plusieurs fois en réalisant le retraitement dans une installation de petite capacité à la Hague (1 kg.j^{-1}) (AT1).
- étape de démonstration, avec le réacteur Phénix de 250 MWe mis en exploitation commerciale en 1974 à Marcoule. Le cycle du combustible de Phénix est fermé actuellement en réalisant le retraitement à l'atelier pilote de Marcoule ($10 \text{ à } 30 \text{ kg.j}^{-1}$) et en dilution dans du combustible graphite-gaz à la Hague. Il se réalisera à partir de 1985 dans un nouvel ensemble de démonstration en matière de retraitement, constitué par l'installation TOR en cours de construction.
- étape industrielle avec la centrale prototype de 1200 MWe en cours de construction à Creys Malville en coopération avec l'Allemagne Fédérale et l'Italie. Ce prototype devrait être suivi de centrales d'environ 1500 MWe dans le cadre d'un programme de réalisation qui doit être précisé en 1986 par le Gouvernement français, après la mise en service et l'expérience de bon fonctionnement de Creys Malville et de TOR. On réalise en attendant des essais d'appareillages et des études conceptuelles d'usines de retraitement correspondant à diverses hypothèses de développement de la filière à moyen terme.

Cette démarche pas à pas, vise la maîtrise de cette étape indispensable que constitue le retraitement dans le cycle du combustible des réacteurs à neutrons rapides. Nous évoquons dans ce qui suit les résultats obtenus et les principales études réalisées pour passer à l'échelle industrielle.

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

Le retraitement des combustibles des réacteurs à neutrons rapides ne représente pas une discontinuité technique par rapport au retraitement pratiqué pour les autres filières. Le procédé utilisé est le procédé PUREX basé sur la séparation et la purification de l'uranium et du plutonium en procédant successivement au cisailage des aiguilles combustibles, à la mise en solution nitrique de l'oxyde, à des cycles d'extraction par le TBP et à la conversion du nitrate de Pu en oxyde par la voie oxalique.

La mise en oeuvre de ce procédé bénéficie de l'expérience industrielle acquise en traitant de forts tonnages de combustibles UNGG et près de 600 tonnes (U + Pu) de combustibles de la filière des réacteurs à eau dans l'atelier HAO à la Hague (voir communication de la COGEMA concernant le retraitement des combustibles des réacteurs à eau).

On garde les mêmes spécifications pour les produits finis. L'épuration des flux liquides et gazeux, la gestion et le conditionnement des déchets solides sont ou seront en partie réalisés par les techniques retenues et développées pour UP3.

Le retraitement des combustibles des réacteurs à neutrons rapides pose cependant un certain nombre de problèmes spécifiques principalement en tête de procédé pour les raisons suivantes :

- les assemblages des réacteurs à neutrons rapides ont été au contact du sodium qu'il convient d'éliminer avant le retraitement ;
- les aiguilles sont enfermées dans un boîtier épais dit "tube hexagonal" qui doit être enlevé avant le cisailage des aiguilles ;
- les aiguilles ont un petit diamètre et la présence de fils espaceurs risque de compliquer les opérations de cisailage-dissolution ;
- le matériau de gainage constitué par de l'acier inoxydable est plus sensible à la corrosion que le zircaloy des combustibles des réacteurs à eau ;

- La forte concentration de plutonium dans le combustible complique les problèmes de criticité et de dissolution. Elle implique la mise en oeuvre, soit de poisons neutrophages, soit d'un appareillage de géométrie sûre, en particulier en tête de procédé (dissolveur). Le PuO_2 est très peu soluble en milieu nitrique et sa concentration élevée impose des conditions de fabrication particulière de l'oxyde mixte permettant d'éviter les hétérogénéités et les difficultés inhérentes de dissolution.
- Les forts taux de combustion d'ores et déjà atteints, se traduisent par des activités spécifiques élevées et par des quantités de produits de fission insolubles (platinoïdes) importantes. L'effet de la forte activité à considérer au niveau de la ligne de concentration, du stockage et de la vitrification des produits de fission devrait toutefois être atténué par le temps de refroidissement qui sera certainement supérieur à 1 an dans la première unité industrielle.

III - L'EXPERIENCE ACQUISE

Sans surestimer ces problèmes spécifiques, le CEA a tenu à assurer la faisabilité du retraitement et entrepris, depuis 1968, un programme d'étude et d'essais important sur le procédé (voir tableau n°1).

Dès que Rapsodie a pu fournir des aiguilles irradiées à des taux de combustion significatifs, des essais de laboratoire ont été effectués à Fontenay-aux-Roses. Ces essais se poursuivent encore au fur et à mesure que Phénix fournit des combustibles avec des taux d'irradiation de plus en plus élevés et des nuances de matériaux de gainage différents.

L'Atelier AT1 de la Hague, conçu spécialement pour traiter le combustible de Rapsodie avec une capacité de 1 kg par jour est entré en service en 1969, il a traité, jusqu'en juillet 1979, date de son arrêt définitif, plus d'une tonne de métaux lourds provenant d'oxydes mixtes irradiés jusqu'à $120\ 000\ \text{MWj.t}^{-1}$ (et parfois très peu refroidis) assurant ainsi plusieurs fois la fermeture du cycle de Rapsodie.

L'Atelier Pilote de Marcoule (SAP) adapté au traitement des combustibles de Phénix et Rapsodie depuis 1975 a traité près de 10 tonnes de combustibles provenant

TABLEAU I. - CARACTÉRISTIQUES ET QUANTITÉS DE COMBUSTIBLES TRAITÉS EN FRANCE .

RÉACTEURS	COMPOSITION INITIALE				QUANTITÉS (kg)
	Pu/U + Pu (%)	$\frac{U+Pu \text{ cœur}}{U+Pu \text{ total}}$	MW j.t ⁻¹ CŒUR MAXI	Temps de refroidissement (Mois)	
RAPSODIE FORTISSIMO	25 à 30	1	10 000 à 120 000	6 - 30	1 066
PHENIX (Pu)	13 à 19	0,75	30 000 à 100 000	10 - 30	11 851
PHENIX (U)	U enrichi	(²³⁵ U = 26 %)	-	-	2 300
KNK 1	U enrichi	-	-	-	1 650
TOTAL					16 867

de Rapsodie, de Phénix et du réacteur allemand KNK I ; le plutonium récupéré lors du retraitement du combustible de Phénix a permis de fermer le cycle de la centrale qui contient actuellement de l'ordre de 140 assemblages constitués avec du plutonium recyclé. Plus de 75 % des assemblages combustibles du coeur de Phénix sont ainsi aujourd'hui constitués avec du plutonium recyclé.

Si l'on ajoute que 5,7 tonnes⁽¹⁾ de combustibles de Phénix ont été jusqu'ici retraitées dans l'usine UP2 de la Hague, en dilution dans du combustible graphite-gaz, on constate que plus de 16 tonnes⁽¹⁾ de combustibles irradiés dans les réacteurs rapides, dont 12 tonnes⁽¹⁾ de combustibles de Phénix, ont été traitées en France.

Cette expérience unique a confirmé que le retraitement des combustibles à neutrons rapides par la voie classique était possible, même aux taux de combustion les plus élevés. Elle n'a pas conduit à modifier profondément le procédé PUREX utilisé pour les combustibles eau-légère, mais permis un ensemble d'améliorations de ce procédé et de caractérisations des déchets, qui constitue un savoir-faire indispensable pour le passage à l'étape industrielle.

IV - RECHERCHES ET DEVELOPPEMENT POUR L'ADAPTATION AU PROCEDE A L'ECHELLE INDUSTRIELLE

Après avoir démontré l'efficacité du procédé dans des conditions significatives, un programme expérimental est maintenant entrepris avec l'objectif de réaliser des installations industrielles au cours des prochaines décennies. Ce programme met en oeuvre des moyens d'études importants concernant principalement la technologie et les dispositifs de rétention et de conditionnement des déchets.

IV.1 - LES MOYENS D'ETUDES - L'ATELIER TOR

Les R & D sur le retraitement des combustibles rapides font intervenir au CEA des moyens importants regroupés à la DERDCA⁽²⁾ et tout particulièrement :

- un Service de Prototypes Industriels implanté à Marcoule et chargé de développer l'appareillage jusqu'à l'échelle 1 ;
- des Services des Déchets de Haute et Moyenne Activité de Marcoule et de Cadarache ;
- des Services de Chimie de Procédé, d'Etudes de la Corrosion et de Chimie Analytique implantés à Fontenay-aux-Roses, Cadarache et Grenoble.;

¹⁾ Tonnes de métaux lourds (U + Pu)

- Le Service Atelier Pilote de Marcoule qui a la charge d'expérimenter le retraitement dans un atelier en cours de transformation dans le cadre d'une nouvelle réalisation importante appelée TOR.

L'ATELIER TOR

Cette réalisation TOR (Traitement d'Oxydes Rapides), commencée en 1980, doit être mise en service au début de 1985. Il s'agit d'un agrandissement et d'une rénovation de l'atelier actuel réalisés avec deux objectifs principaux :

1. Porter la capacité de l'atelier à 5 tonnes (U + Pu) par an, permettant d'assurer la fermeture du cycle de Phénix tout en conservant une disponibilité pour le retraitement expérimental de combustibles venant d'autres réacteurs rapides (KNK II ; Super-Phénix ...).
2. Servir de banc d'essai pour les nouveaux appareillages prévus dans les usines.

L'installation comprend trois ensembles TOR 1, TOR 2, TOR 3.

Implanté dans un nouveau bâtiment (cf. fig. 1) TOR 1 est constitué d'une vingtaine de cellules abritant les équipements de la tête du procédé où se situe la majorité des problèmes spécifiques posés par le retraitement des "combustibles rapides". Ce nouvel atelier équipé de moyens de téléintervention importants comportera :

- un ensemble d'utilités communes : réception des combustibles irradiés, stockage des combustibles, stockages des effluents liquides et des déchets solides ...
- un ensemble de traitement mécanique destiné à recevoir des engins de cisailage et ultérieurement des techniques avancées de séparation gaine oxyde.
- un ensemble de dissolution avec des possibilités pour implanter deux nouveaux modèles de dissolvants reliés à une chaîne de traitement des gaz ;
- un ensemble de clarification comportant également plusieurs variantes ;
- une cellule de conditionnement des résidus : coques, insolubles de dissolution, iode, etc ...

On disposera ainsi en fait, de deux chaînes pour les premières opérations du retraitement, l'une classique assurera la production, l'autre vouée à la R & D comprendra des "unités de pointe" qui pourront fonctionner de façon intermittente en dérivation sur la ligne principale..

TOR 2 et TOR 3 utilisent une partie des locaux et équipements de l'ancien atelier pilote.

TOR 2 correspond à l'installation d'un nouvel évaporateur de solution de PF qui permettra de réduire le volume des effluents aqueux.

TOR 3 comportera :

- l'installation d'un nouveau premier cycle d'extraction avec possibilité de partition au premier cycle en colonnes pulsées (cf.fig.1).

IV.2 - LES OBJECTIFS

Les R & D poursuivis sont rappelés ci-dessous pour chacune des principales opérations du retraitement hormis l'élimination du sodium résiduel des assemblages qui est maintenant bien maîtrisée dans Phénix (élimination par le mélange CO₂ et vapeur d'eau).

• Traitements mécaniques •

Les essais qui sont actuellement réalisés sur prototypes inactifs à l'échelle industrielle portent sur :

- a/ l'ouverture du tube hexagonal par des techniques de fragilisation. Cette technique de fragilisation consistant à réaliser sur la ligne de découpe une structure fragile par le cuivre à haute température, paraît plus performante que les techniques de découpe au laser qui ont été étudiées par ailleurs. Elle ne risque pas d'endommager les aiguilles à l'aplomb de la découpe et est moins polluante que les techniques bien connues de sciage thermique et de fraisage mécanique sur angle utilisé dans Phénix.
- b/ le dégagement des aiguilles des rails sur lesquels elles sont accrochées par des systèmes automatisés assez simples.
- c/ l'enlèvement des fils espaceurs pour le cas où il s'imposerait.
- d/ le cisailage des aiguilles en étui fonctionne à UP2/HAO à l'échelle industrielle. L'effort de R & D concernant cette opération est par conséquent concentré sur le cisailage aiguille par aiguille impliquant des systèmes d'alimentation (tri d'aiguilles à partir d'un fagot en vrac ou sortie ordonnée des aiguilles nappe par nappe ...) et des machines de coupe à forte cadence ne nécessitant pas d'enlèvement préalable du fil espaceur.

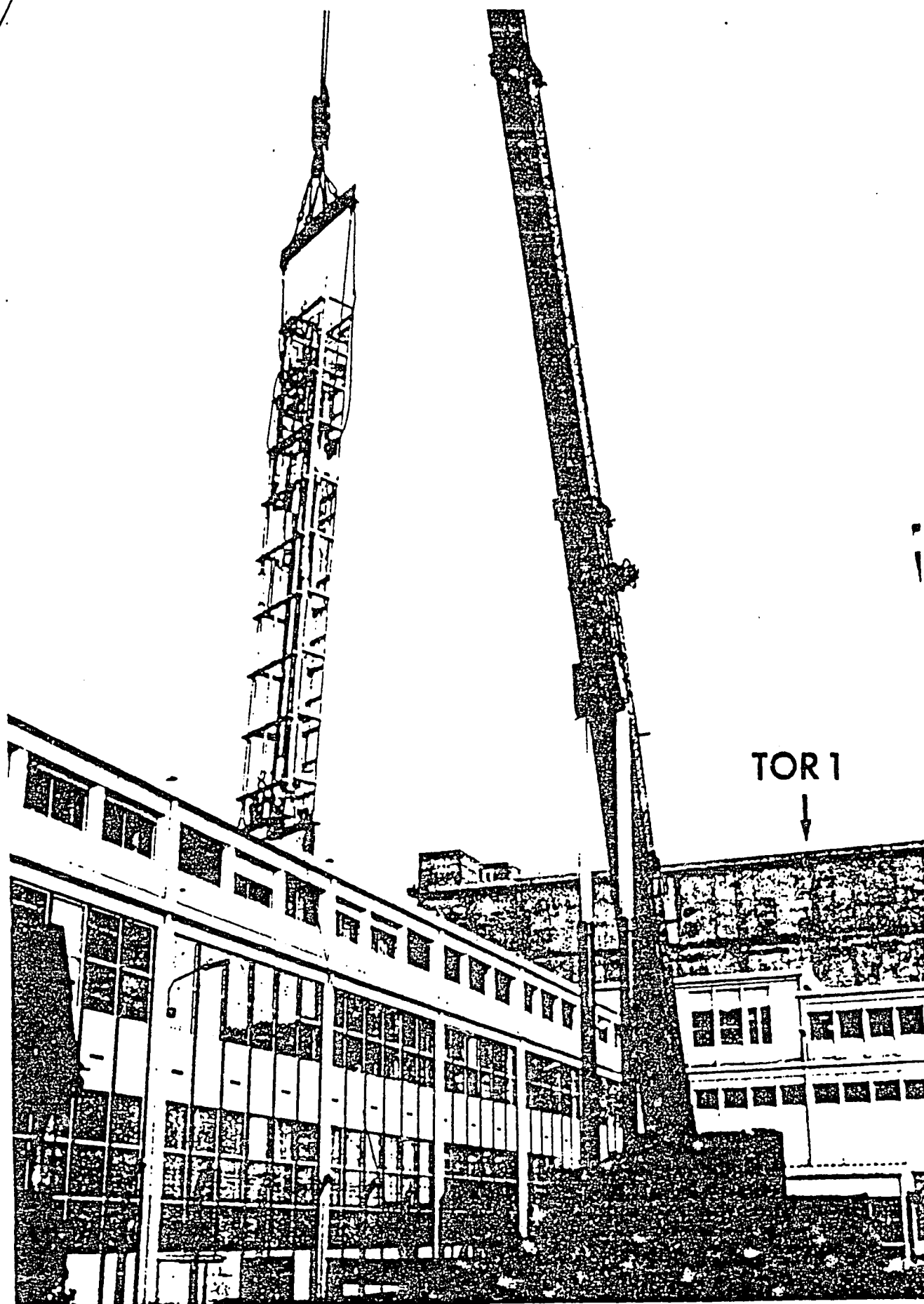


FIG. 1. - VUE DES COLONNES PULSÉES EN COURS DE MONTAGE
DANS TOR 3 .

On a commencé par ailleurs l'expérimentation à petite échelle de la séparation gaine-combustible en vue de traiter certains assemblages expérimentaux comportant des gaines en matériau très sensible à la corrosion nitrique.

. Dissolution .

Les expériences réalisées dans les laboratoires, dans l'atelier pilote de Marcoule et à la Hague montrent que les combustibles de Phénix se dissolvent avec de très bons rendements en milieu nitrique et que les quantités de Pu présentes dans les produits insolubles sont très faibles.

Les essais se poursuivent cependant dans les chaînes blindées pour vérifier que l'accroissement du taux de combustion n'est pas préjudiciable aux rendements de dissolution. On vérifie par ailleurs que les divers matériaux de gainage testés dans Phénix ne se corrodent pas au-delà des limites admissibles pour la tenue des gaines et la corrosion des appareillages.

Côté appareillage les efforts portent sur le développement technologique d'un dissolvant continu de forte capacité géométriquement sûr ; dissolvant cylindrique annulaire dans lequel les tronçons cisailés avancent par secousses en remontant le long d'une rampe hélicoïdale (dissolvant continu hélicoïdal à secousses).

Ce dissolvant sera expérimenté en actif dans TOR 1.

Des études se poursuivent également sur la dissolution en continu de l'oxyde seul, après séparation préliminaire des gaines.

. Clarification .

Cette étape difficile en raison de la finesse ($\leq 1\mu$) de la puissance thermique (Ru, Rh ...) et de la quantité de particules insolubles (10 à 15 kg.t⁻¹) fait l'objet de plusieurs études de laboratoire (addition d'adjuvants de filtration) et de technologie (centrifugeuses, filtres pulsés, filtration électromagnétique ...) qui se termineront par des essais comparatifs sur des solutions réelles dans TOR.

Extraction - Elaboration du PuO₂

La plupart des études sur cette partie du procédé sont communes avec celles qui intéressent la filière eau légère. On cherche principalement à développer des colonnes pulsées annulaires ou cylindriques équipées de garnissages permettant d'obtenir des débits spécifiques, des efficacités élevées et un ensemble de performances qui ne dérivent pas dans le temps.

Des ensembles de colonnes seront exploités en actif dans TOR III avec le but d'expérimenter toute l'instrumentation et installations annexes et d'obtenir des cycles de colonne à conduite automatique.

Dans le domaine de l'élaboration du PuO₂ des travaux sont développés pour accroître la capacité de la chaîne de précipitation oxalique et de calcination et pour définir des dispositifs performants pour la manutention, le stockage et le transport de quantités importantes de PuO₂, notamment un conteneur de PuO₂ de forte capacité avec remplissage et vidange par moyens pneumatiques.

Des études très prometteuses sont également développées sur la dissolution oxydante du PuO₂ hors normes.

Téléintervention

Les équipements compacts prévus dans TOR et les projets d'usine se prêtent bien aux techniques d'intervention à distance et des études sont réalisées pour faire progresser simultanément la conception des installations et les dispositifs de téléopération.

Dans l'atelier TOR, les interventions seront réalisées par des télémanipulateurs maîtres-esclaves classiques et par l'intermédiaire de ponts roulants télécommandés sur lesquels s'adaptent des systèmes de treuils ou un manipulateur lourd permettant la manutention des pièces lourdes.

Pour les futures usines on met au point en particulier un appareil maître-esclave électrique de maintenance, équipé de caméras mobiles et de dispositifs de conduite permettant d'augmenter les performances et la précision des opérateurs.

- Traitement des déchets -

L'effort dans ce domaine rejoint celui qui est développé pour UP3. Il prend en compte la nécessité de *minimiser au maximum* les rejets et les volumes et de trouver des modes satisfaisants pour la gestion, le conditionnement et le stockage des déchets radioactifs.

Les principaux axes d'études sont les suivants :

- . vitrification des concentrats de PF en prolongement du développement pour la filière eau légère ;
- . fusion des coques en acier inoxydable par des techniques nouvelles utilisant des fours autocreuset ;
- . incorporation des insolubles dans le verre avec les PF ou dans des matrices métalliques ;
- . confinement des émetteurs alpha dans les effluents destinés à la vitrification ;
- . réduction de la charge en sels (NaNO_3 , réactifs analytiques ...) et gestion des flux aqueux de basse et moyenne activité de manière à traiter ces flux par évaporation et à limiter les épurations par coprécipitation génératrices de boues difficiles à conditionner ;
- . lavage des phases aqueuses d'extraction au diluant et double traitement du solvant (TBP 30 %) par régénération alcaline au carbonate d'hydrazine et distillation sous pression réduite ;
- . piègeage et conditionnement de l'iode 129 ;
- . gestion, décontamination et conditionnement des déchets technologiques de façon à réduire autant que possible le volume des déchets contenant des émetteurs à période longue.

V - ETUDES CONCEPTUELLES D'UNITES DE RETRAITEMENT INDUSTRIELLES

Le programme de R & D entrepris concerne des techniques adaptables à des usines de plus ou moins grande capacité. Il doit, avec les travaux réalisés par ailleurs sur les réacteurs et sur la fabrication des combustibles, assurer la faisabilité du cycle du combustible quel que soit le scénario qui sera choisi pour le développement de la filière à neutrons rapides, dans le cadre français et nous le souhaitons européen pendant les années 90.

Au cours de ces dernières années de 1979 à 1982, l'étude conceptuelle d'une usine capable de retraiter la production de 6 réacteurs de 1500 MWe (PURR, Première Usine de Retraitement des Combustibles Rapides) a été réalisée dans le cadre d'un projet de site intégré comportant plusieurs réacteurs à neutrons rapides, l'usine de retraitement, l'usine de fabrication des combustibles et des utilités communes. Cette étude a permis en particulier de s'assurer qu'il n'apparaissait pas de seuil dû à la taille dans la conception des composants et des circuits.

Actuellement en fonction de l'évolution des programmes envisageables, le C.E.A., la COGEMA et sa filiale SGN ont entrepris l'étude d'une usine appelée MAR 600 de taille réduite (50 t/an) correspondant aux besoins de retraitement de Super Phénix et de deux tranches de 1500 MWe chacune.

Cette étude est menée avec l'objectif :

- d'appréhender les problèmes d'implantation d'une telle usine ainsi que les problèmes d'interfaces avec les réacteurs et la gestion des combustibles ;
- d'évaluer et de minimiser les coûts en recherchant en particulier l'utilisation optimale des appareils sur toute la ligne du procédé ;
- d'être en mesure de passer à la phase de réalisation à partir des décisions gouvernementales sur le programme nucléaire français qui devraient intervenir en 1986.

L'avant-projet MAR 600 dont l'implantation a été prévue sur le Centre de Marcoule est conçu comme une unité intermédiaire dans le développement prévisible à moyen terme de la filière en recherchant les meilleures conditions économiques. Il bénéficie des infrastructures et des services généraux du Centre actuel de Marcoule (laboratoires, Station de Traitement des Effluents, etc ...) et comporte une seule ligne d'équipements pour traiter 50 tonnes par an de combustibles caractérisés par un taux de combustion maximal de $125.000 \text{ MWj.t}^{-1}$ et un temps de refroidissement de trois ans au moins (puissance des assemblages inférieure à 2 KW).

Pour cet avant-projet on met en oeuvre les appareillages spécifiques évoqués précédemment et en particulier le démantèlement des assemblages par fissuration, le cisailage aiguille par aiguille avec une cisaille rotative, le dissolvant continu hélicoïdal à secousses et de nombreuses techniques d'extraction, d'élaboration du PuO_2 , de traitement des déchets, mises au point pour les extensions de la Hague (UP3).

CONCLUSION

L'effort R & D consenti en France dans le domaine du retraitement des combustibles des réacteurs de la filière à neutrons rapides s'inscrit dans un programme cohérent de développement de cette filière et dans le prolongement des travaux importants qui sont réalisés par ailleurs pour assurer le retraitement industriel des combustibles des réacteurs à eau à la Hague.

Des expériences de longue durée réalisées pour fermer le cycle du combustible de Rapsodie puis de Phénix ont démontré la faisabilité du retraitement par la voie Purex et des essais se poursuivent maintenant pour développer la technologie spécifique qui sera utilisée dans les futures usines.

L'atelier pilote TOR en cours de réalisation à Marcoule permettra de tester cette technologie dans des conditions représentatives et d'étudier tout particulièrement les traitements des déchets à partir de 1985.

Des études conceptuelles d'unités industrielles correspondant à différentes hypothèses de développement de la filière à neutrons rapides sont par ailleurs réalisées par le CEA, la COGEMA et SGN pour définir les conditions technico-économiques dans lesquelles pourra se réaliser le retraitement des combustibles de la Centrale de Creys Malville et des réacteurs qui suivront.
