URANIUM 1992

MATIÈRES PREMIÈRES: teneur de l'écorce terrestre : 3 à 4 ppm.

Eau de mer : 3 mg d'U/l soit au total 4,5 milliards de t d'uranium.

L'exploitation des gisements est économiquement rentable lorsque les teneurs dépassent 0,05 % à 0,1 %. En général, la teneur des gisements exploités est de 0,1 à 0,3 %. Des gisements exceptionnels peuvent atteindre des teneurs plus élevées : 10 à 12 % à Cigar Lake au Canada.

Minerais : de différents types : à pechblende, à uraninite (contiennent de l'oxyde U3O8), à brannerite (contiennent du titanate duranium)...

Les phosphates sédimentaires naturels, matière première des engrais phosphatés renferment des teneurs de 50 à 300 ppm d'U, en substitution dans le réseau apatitique (exceptionnellement de 0,2 à 0,5 % dans le gisement de Bakouma en République Centre Africaine). Lors de l'attaque sulfurique du phosphate, U est libéré et passe en solution dans l'acide phosphorique duquel il peut être extrait à l'aide de solvants organiques. En 1984, 6 unités, dont 4 aux États-Unis étaient en service dans le monde occidental, production : 1400 t d'U/an. En Irak, une unité serait en service (en 1991). Gisement d'Oklo (Gabon) : dans ce gisement, durant 600 000 ans, a fonctionné, il y a 1,8 milliard d'années, un réacteur nucléaire naturel. A cette époque, l'U naturel avait une teneur de 3,07 % en 235 U. L'U du coeur de la zone de réaction a actuellement une teneur de 0,004 % en 235 5U (0,72 % normalement) : 2 t de 235 U ont été consommées par fission.

Exploitations minières: elles sont soit souterraines soit à ciel ouvert. Par rapport à des exploitations minières classiques la radioactivité du minerai nécessite la réduction des concentrations en poussières et en radon en utilisant une fixation des poussières par arrosage et en ventilant de façon importante les exploitations minières. En 1993, aux États-Unis, on assiste à l'arrêt des exploitations conventionnelles et au développement de projets de lixiviation in situ, par exemple par PMC (Cogema) dans le Wyoming.

Production minière, en 1992, en t d'U contenu dans les concentrés. Monde : 34 840, Union européenne : 2 598.

Canada	9 217	Australie	2 333	Afrique du Sud	1 884
Ex URSS	8 300	France	2 119	Namibie	1 692
Niger	2 965	États-Unis	1 890	Tchécoslovaquie	1 570

La production était, dans le monde occidental, de 44 200 t en 1980.

En 1992, la demande, de 52 700 t, hors recyclage, est en partie assurée à partir des stocks accumulées dans les années 80 estimé, dans le monde, à plus de 500 000 t.

La plus grande part de l'uranium canadien provient de la province du Saskatchewan (Key-Lake, Cluff Lake..) où le gisement exceptionnel de Cigar Lake (découvert par Cogema : 150 000 t à 10-12 %, sera exploité par Cameco (n°2 mondial) et Cogema (n°1 mondial) qui détient 36,4 % de participation) pourrait produire 4 600 t d'U/an à partir de 1996. Le Canada, exporte plus des 3/4 de sa production.

En Afrique du Sud, l'uranium est exploité conjointement avec l'or.

Les exportations de l'ex URSS sont, en 1992, de l'ordre de 3 000 t d'U. En Russie, les mines d'uranium exploitées sont celles du combinat de Priargunskiy, en Transbaïkalie.

Réserves : en 1992, en milliers de t, raisonnablement assurées à un prix inférieur à 80 \$/kg d'U.

Monde: 1 900, Union européenne: 55.

Australie	462	Brésil (1991)	163
Ex URSS	361	Canada	134
Afrique du Sud	253	États-Unis	89
Niger	164	Namibie	75

Situation française : en 1993.

- Production: 1710 t.

- Réserves : 24 000 t à 44 000 t.

- Mines françaises : exploitées par Cogema à La Crouzille (87), Lodève (34), La Besse (19). La fermeture, en 1995, de la division minière de la Crouzille a été annoncée. En 1993, Total a cédé à Cogema ses activités minières dans l'uranium.
- Exploitations de Cogema à l'étranger : extraction de 4 870 t.
- Au Gabon (68,4 % de la Comuf qui exploite le gisement de Mounana), au Niger (63,4 % de la Somaïr et 34 % de Cominak), au Canada (100 % du gisement de Cluff Lake, 700 t/an), au États-Unis (Pathfinder qui exploite des mines au Wyoming), en Namibie (10 % de Rössing), en Australie (7,75 % de ERA, n°1 australien).
- Les réserves de Cogema au Canada sont de 150 000 t.
- Cogema exploite également, aux États-Unis, en particulier, en association avec EDF, des minerais d'uranium par lixiviation in situ dans des mines situées au Wyoming et au Texas, réserves : 10 000 t d'U, production : 500 t/an.
- Projet d'exploitation, par Cogema, de la mine de Cigar Lake (Canada, 36,4 % de participation de Cogema).

Concentration des minerais:

Les minerais sont concentrés, par hydrométallurgie, à des teneurs de l'ordre de 70 % dans des installations situées près des exploitations minières. Les procédés physiques habituels (gravimétrie, flottation...) étant inefficaces, la concentration est effectuée par voie chimique.

Exemple des traitements effectués à Bessines (87): capacité: 1,1 million de t de minerai/an, soit 1 300 t d'U/an. Le minerai est à pechblende et uraninite dans des granits dégradés. Le minerai de teneur supérieure à 0,07 % d'U est traité en usine, celui inférieur à 0,02 % rejeté comme stérile (soit environ 15 % du minerai entrant). Le minerai dont la teneur est comprise entre 0,02 et 0,07 % est traité par lixiviation en tas.

<u>Traitement en usine</u>: par lixiviation acide dans 4 lignes de 8 cuves revêtues de caoutchouc, à l'aide d'une solution de H2SO4 (55 à 65 kg/t de minerai) et NaClO3 (1 à 2 kg/t de minerai) à 60°C pendant 3 heures. L'oxydation de U(IV) en U(VI), plus facilement solubilisable, est effectuée par NaClO3 (également employés: MnO2, H2O2...) par l'intermédiaire des ions Fe³⁺ présents dans le minerai soit schématiquement:

$$UO2 + 2Fe^{3+}$$
 $\rightarrow UO2^{2+} + 2Fe^{2+}$ $6Fe^{2+} + ClO3^{-} + 6H^{+}$ $\rightarrow 6Fe^{3+} + Cl^{-} + 3H2O$

La solution obtenue contient de 0.5 à 5 g d'U/l sous forme d'ions complexes : $(UO2(SO4)2)^{2-}$ et $(UO2(SO4)3)^{4-}$. Le rendement d'extraction est d'environ 95 %. Les stériles contiennent après

attaque de l'ordre de 70 ppm d'U.

Dans le cas de minerais dont le traitement entraînerait une forte consommation d'acide, par exemple les minerais carbonatés, on utilise une lixiviation alcaline par Na2CO3 sous pression (5 à 7 bar) à 100-150°C pendant 12 à 36 h. L'uranium passe en solution sous forme d'ion (UO2(CO3)3)⁴⁻.

<u>Lixiviation en tas</u>: concerne les minerais pauvres, grossièrement concassés, de teneur comprise (à Bessines) entre 0,02 et 0,07 %, placés en tas de 5 000 à 15 000 t sur 3 à 3,5 m de haut sur un sol étanche en légère pente. Le minerai est arrosé par pulvérisation d'une solution très diluée (pH de 1 à 3) d'acide sulfurique. La solution est recyclée et se concentre en U au cours des cycles successifs. Le traitement dure 3 mois. Les rendements sont compris entre 50 et 85 %. A Bessines, le traitement de 150 000 t de minerai donne 2,5 % de l'uranium total produit.

Concentration, purification et précipitation des concentrés : Les complexes d'uranium sont extraits de la solution d'attaque par fixation sur des résines échangeuses d'ions ou à l'aide de solvants (amine ternaire 0,1 M à Bessines, 0,02 à 0,05 kg/t de minerai). Après élution des résines ou déextraction du solvant, on obtient des solution d'ions uranyles à 20 g d'U/l. La précipitation sous forme d'uranate est effectuée en milieu basique (par MgO, NaOH, NH3...) :

$$UO2^{2+} + 2MgO \longrightarrow MgUO4 + Mg^{2+}$$

La précipitation dure de 2 à 6 h. Les concentrés obtenus titrent de l'ordre de 70 % en U, de couleur jaune, ils sont appelés yellow cakes.

Le traitement d'une tonne de minerai (à 0,2 % d'U), donne environ la même quantité de stérile et 3 kg de concentré.

Capacités de production de Cogema : en t d'U/an.

En France : usines		A l'étranger : sociétés			
Bessines	1 300	Cominak (Niger)	2 300	Cluff Lake (Canada)	700
Lodève	1 000	Somaïr (Niger)	2 300	Pathfinder (États- Unis)	1 700
		Comuf (Gabon)	1 500		

FABRICATION INDUSTRIELLE DU COMBUSTIBLE destiné aux réacteurs nucléaires à eau ordinaire : avant d'être utilisé, dans les réacteurs nucléaires, sous forme de UO2 enrichi, le concentré d'uranium doit subir de nombreuses transformations chimiques qui peuvent être regroupées en opérations de conversion (fabrication d'oxydes et fluorures), d'enrichissement, puis de fabrication du combustible nucléaire.

Répartition des coûts lors du cycle du combustible nucléaire :

U naturel	135 8 %	Fabrication du combustible	10,8 %
Conversion	2,5 %	Aval du cycle	24,8 %
Enrichissement	26,1 %		

Purification et conversion : les concentrés, mis en solution dans l'acide nitrique (400 à 450 g d'U/l) sont purifiés soit par extraction par solvant (TBP : phosphate de tributyle) avant fluoration, soit après fluoration par distillation de UF6 (aux États-Unis par Allied Chemical), afin d'obtenir de l'U

de pureté nucléaire (exempt d'absorbants neutroniques : B, Ca et de diverses autres impuretés gênantes pour les opérations suivantes).

<u>Transformation en UO3</u>: selon deux méthodes:

- Par décomposition vers 300°C du nitrate duranyle obtenu par concentration de la solution.
- Par précipitation puis décomposition thermique du diuranate dammonium :

Réduction en UO2 et fluoration en UF4 : procédé utilisé par Comurhex.

Dans le même four (en forme de "L"), UO3 est réduit par H2 (obtenu par décomposition thermique de NH3) en UO2, vers 650-800°C, puis fluoré par HF, vers 350-450°C :

Le four est alimenté par UO3 par le haut de la branche verticale. UO3 est réduit au cours de sa descente par H2 puis fluoré par HF. HF et NH3 sont introduits dans la partie basse du four, côté évacuation de UF4 formé. Le four est en acier inoxydable, inconel (alliage de Ni avec Cr (13 %), Fe (6 %)) et monel (alliage Ni : 66%, Cu : 34 %).

La consommation en HF est de 0,34 kg/kg d'U.

UF4 obtenu contient de 3 à 5 % d'impuretés : UO2F2, UO2, HF, H2O.

<u>Fabrication de l'hexafluorure</u>: par combustion du tétrafluorure dans du fluor.

Le fluor, difficile et dangereux à stocker, est produit sur place, par électrolyse de HF. La combustion, très exothermique (des températures de 1700-1800°C sont atteintes), est réalisée dans un tube vertical (réacteur à flamme), généralement en monel, de plusieurs mètres de haut et quelques dizaines de cm de diamètre :

Le four est alimenté par le haut en UF4 et en F2. UF6 gazeux est recueilli, filtré et condensé à - 15°C (température de sublimation de UF6 : 56°C).

Les effluents gazeux contiennent 41 % de HF, 27 % de O2, 27 % de N2, 3 % de F2 et quelques % de UF6. A l'usine Comurhex de Pierrelatte, jusqu'en 1991, les effluents étaient fixés sur KOH et CaO, les déchets solides formés étant stockés. Depuis, HF et UF6 sont piégés à -80°C par un échangeur refroidi à l'azote liquide. A cette température, HF liquide et UF6 solide sont séparés par filtration. UF6 est récupéré et HF recyclé pour produire F2.

Consommations lors de la transformation de concentrés en UF6, pour 1 kg d'U.

HNO3	2,1 à 2,3 kg	CaO	0,3 à 0,4 kg	IRV	0,002 kg
HF	0,5 à 0,8 kg	NaOH	0,02 kg		
NH3	0,3 à 0,4 kg	Dodécane	0,01 kg		

Comurhex exploite également un atelier pilote (350 t/an de capacité) de reconversion d'U provenant du traitement des combustibles irradiés.

Productions mondiales: en 1992, en t d'U de capacités annuelles. Monde occidental: 64 700.

Minatom (Russie)	20 000	Cameco (Canada	a) 10 300
Triffictofff (Trussic)	20 000	Carried (Carrade	1) 10000

		BNFL (Royaume-Uni)	6 700
Allied Chemical (États- Unis)	12 700		

En France, la production de UF6 est assurée par Comurhex (filiale à 100 % de Cogema) : société pour la conversion de l'uranium en métal et hexafluorure. Les usines sont situées à Malvési (11) pour la conversion en UF4 et à Pierrelatte (26) pour l'élaboration de l'hexafluorure. En 1992, le chiffre d'affaires de Comurhex a été de 559 millions de F, les effectifs de 680 personnes et la production de près de 10 000 t d'U contenu dans UF6.

Enrichissement:

L'uranium naturel contient 0,72 % atomique de ²³⁵U fissile. Les réacteurs utilisant comme modérateur le graphite (filière UNGG) ou l'eau lourde peuvent utiliser directement l'U naturel sous forme de métal (filière UNGG) ou d'oxyde. De même, les réacteurs à neutrons rapides (surgénérateurs) utilisent de l'U naturel enrichi, par mélange, avec du plutonium fissile.

Par contre, les réacteurs à eau ordinaire demandent de l'uranium enrichi en ²³⁵U à environ 3 %. Les explosifs nucléaires et l'alimentation des réacteurs des sous-marins nucléaires nécessitent un enrichissement qui doit dépasser 90 %.

La première technique d'enrichissement développée, à partir de l'automne 1942, à Oak Ridge (États-Unis) dans le cadre du "Manhattan project" de fabrication de la bombe atomique utilisait une séparation électromagnétique (Calutron) selon le principe du spectromètre de masse. Cette technique, utilisée avant la guerre du Golfe par l'Irak, est, à l'échelle industrielle, abandonnée.

<u>Diffusion gazeuse</u>: c'est la technique la plus utilisée actuellement (aux États-Unis et en France, soit les 2/3 de la production mondiale). UF6 diffuse à travers des parois poreuses. La diffusion, selon la loi de Graham est inversement proportionnelle à la racine carrée de la masse molaire. Entre ²³⁵UF6 et ²³⁸UF6, le rapport théorique est de 1,0043 (1,002 en pratique). Pour enrichir jusqu'à 3 %, il faut effectuer un grand nombre d'opérations de diffusion en série dans des cascades de séparateurs. La production de 1 kg d'U enrichi à 3,1 %, demande 6,2 kg d'U naturel et fournit 5,2 kg d'U appauvri à 0,25 %. Son enrichissement nécessite 4 UTS (unité de travail de séparation, qui rend compte de la puissance de séparation utilisée). Un réacteur de 1 300 MWe consomme 100 000 UTS/an.

Les parois poreuses sont en nickel ou alumine fritté et comportent de l'ordre de 100 milliards de pores de 0,01 µm de rayon par cm². L'usine Eurodif de Tricastin (26) comporte 1 400 étages en série avec 120 millions de membranes soit, 4 106 m² de surface diffusante. La consommation d'énergie est très importante (principalement dans la compression du gaz) : 2 450 kWh/UTS. L'enrichissement consomme 3 % de l'énergie produite par les centrales nucléaires françaises, soit la consommation de 4 tranches nucléaires de 900 MW, ce qui représente 10 % du coût du kWh produit. Eurodif est le premier consommateur français d'électricité.

UF6 appauvri est défluoré pour donner U3O8. La capacité de défluoration de l'usine de Tricastin est de 22 000 t/an de UF6 qui donne 7 000 t/an de HF à 70 %. Cette production de HF fait de Cogema l'un des principaux producteurs européens de HF en solution.

<u>Ultracentrifugation</u>: pour des unités d'enrichissement de plus faible capacité, cette technique est plus intéressante. Elle est utilisée en ex-URSS et par la société Urenco qui exploite des usines à Capenhurst (Royaume-Uni), Gronau (Allemagne) et Almelo (Pays-Bas). Les vitesses périphériques sont très élevées, de 400 à 700 m/s, et sont limitées par la tenue mécanique des matériaux utilisés

(aciers spéciaux, fibres de carbone...). D'autres procédés, chimiques, par laser... sont étudiés en laboratoire.

<u>Procédé à l'étude</u>: Le procédé SILVA (Séparation Isotopique par Laser de la Vapeur d'Uranium, AVLIS en américain) étudié en France par le CEA et aux États-Unis pourrait connaître une percée industrielle au début du siècle prochain. La consommation en énergie du procédé SILVA serait de 25 à 40 fois plus faible que la diffusion gazeuse. Un laser dont la largeur spectrale des photons est inférieure à l'écart des raies de ²³⁵U et ²³⁸U, ionise sélectivement ²³⁵U. Il faut fournir 6 eV soit 3 photons de 2 eV chacun. L'ionisation est réalisée sur de la vapeur d'U produite par bombardement électronique de U métal. Les ions sont extraits par un champ électrique.

Capacités civiles d'enrichissement : en 1993 en millions d'UTS/an. Monde : 47.

États-Unis (USEC)	19,6	France (Eurodif)	10,8	Japon	0,6
Minatom (Russie)	10	Urenco	2,5		

Le stock militaire russe d'U très enrichi serait de 500 t soit l'équivalent de 80 millions d'UTS. La France, achète, par contrat, chaque année, 500 000 UTS, en Russie.

La production américaine est effectuée par US Enrichment Corp. à Paducah et Portsmouth. La France exploite les installations de Pierrelatte (26) à des fins militaires et Tricastin (26) à des fins civiles. L'usine de Tricastin est exploitée par Eurodif (chiffre d'affaires : 5,5 milliards de F en 1992) : France : 51,53 %, Italie : 16,25 %, Belgique : 11,11 %, Espagne : 11,11 %, Iran : 10 %, à travers une société de droit français : Sofidif.

Les besoins français, pour une puissance installée de 56 GWe sont, en 1993, de plus de 1 000 t/an d'U enrichi.

Fabrication du combustible nucléaire :

Après enrichissement, UF6 est transformé en oxyde UO2. Deux procédés sont utilisés : par voie humide (États-Unis...), par voie sèche (France, Royaume-Uni).

<u>Procédé par voie sèche</u> : en une ou deux étapes mettant en jeu les réactions suivantes réalisées dans des fours en inconel 600 :

- Pyrohydrolyse entre 250-300°C:

- Réduction vers 700-800°C par l'hydrogène :

$$UO2F2 + H2 \longrightarrow UO2 + 2HF DrH^{\circ}298 = + 14,2 \text{ kJ/mole}$$

- Le rendement est supérieur à 99,5 %.

Consommations en t par t d'U dans UO2 :

UF6	1,5	H2O	0,640
CaO	1,0	H2	0,017

HF est récupéré : les gaz sortant du réacteur passent à travers un lit de matériaux calcaires qui fixent HF sous forme de CaF2.

La poudre de UO2 est frittée (vers 1700°C sous atmosphère d'hydrogène) en pastilles de 8,2 mm de diamètre et 15 mm de hauteur, par exemple. Les pastilles sont ensuite empilées dans des gaines (en zircaloy 4 : alliage de zirconium avec : Sn : 1,5 %, Fe : 0,12 %, Cr : 0,10 %) de 9,5 mm de diamètre

et 3,66 m de hauteur pour les réacteurs de 900 MWe (4,27 m pour les réacteurs de 1300 MWe). On obtient ainsi des crayons (ou aiguilles) eux même assemblés en faisceau (ou grappe) dans un réseau carré 17x17 (dans le cas des réacteurs 900 MW, type Fessenheim) qui contient 264 crayons (520 kg de UO2). Le coeur, contient 157 assemblages (soit 11 273 856 pastilles, 72,5 t de combustible) regroupés en 3 zones d'enrichissement différent (2,1 %, 2,6 % et 3,1 %), correspondant aux rechargements par 1/3 du coeur. Pour les réacteurs de 1300 MWe : 193 assemblages (50 952 crayons).

<u>Producteurs de combustible nucléair</u>e pour réacteurs à eau sous pression hors VVER : capacités annuelles de production en t de U contenu, en 1992 : monde occidental : 6 520.

FBFC (France, Belgique)	1 600	Westinghouse (États- Unis)	1 100
Siemens (Allemagne, États-Unis)	1 600	Babcock et Wilcox (États-Unis)	400

- La société Franco Belge de Fabrication de Combustible (FBFC), détenu par Framatome (51 %) et Cogema (49 %), chiffre d'affaires, en 1993, 1,6 milliard de F, 1 550 salariés, produit des combustibles à Dessel (Belgique), 450 t de capacité annuelle de production, et en France, à Romans (26) et Pierrelatte (26), 1 150 t. La production de 1993 est de près de 1 400 t, avec 2 300 assemblages fournis à EDF et 500 à l'étranger. en 1993, 2,5 % de la production utilise de l'U issu du retraitement.
- Cogema et Framatome détiennent 75 % de Babcock and Wilcox Fuel Company, 3ème producteur américain de combustibles nucléaires.

Combustible MOX (Mixed Oxide): oxyde mixte d'uranium et de plutonium.

Ce combustible permet d'utiliser, en partie, le plutonium (Pu) produit par réaction nucléaire dans les réacteurs (après irradiation, U contient environ 1 % de Pu) et récupéré lors du traitement des combustibles irradiés :

En France, pour une puissance installée de 56 GW, la production de Pu est de l'ordre de 15 t/an. Le plutonium provenant du retraitement de combustible UO2 (enrichi à 3,25 %) contient après 3 ans de refroidissement avant retraitement et 2 ans de stockage, 70 % de Pu fissile (²³⁹Pu : 58 %, ²⁴¹Pu : 11 %).

Le combustible est réalisé par frittage de poudres de UO2 et de PuO2. La teneur moyenne est de 5 % en Pu fissile. L'uranium utilisé est soit de l'U appauvri à 0,22 % en ²³⁵U sous-produit de l'enrichissement, soit de l'U issu du retraitement des combustibles irradiés de teneur 0,86 % en ²³⁵U.

L'utilisation de ce combustible permet d'économiser 30 % de la consommation en U naturel, 30 % des coûts d'enrichissement et d'éviter les coûts de stockage du Pu ainsi consommé. 1 g de Pu ainsi recyclé produit autant d'électricité qu'une t de pétrole. En France, dans un réacteur REP de 900 MW,

la teneur en MOX peut légalement atteindre 1/3 de la quantité totale de combustible.

- Productions : dans le monde : 85 t/an.
- En Belgique, par Belgonucléaire (35 t/an) à Dessel.
- En Allemagne, par Siemens (25 t/an) à Hanau, à l'arrêt depuis juin 1991, 120 t/an à partir de 1995.
- En France, par Cogema (15 t/an) à Cadarache (13), et à partir de 1995, par l'usine Melox de Cogema (120 t/an) à Marcoule (30).
- Depuis 1963, ce combustible est utilisé en Belgique (réacteurs de Mol), en Allemagne et depuis octobre 1987, en France, pour 52 assemblages de la recharge (1/3 du coeur) du réacteur B1 de Saint Laurent des Eaux. En 1993, en France, utilisation d'assemblages MOX, pour 1/3 du coeur, dans 6 réacteurs de 900 MW.

Fabrication du combustible pour la filière UNGG:

Le combustible est de l'uranium, métal, non enrichi.

<u>Élaboration de l'uranium métal</u> : par réduction du tétrafluorure par magnésiothermie, vers 600°C, dans un creuset revêtu intérieurement de fluorure de magnésium.

$$UF4 + 2Mg \longrightarrow 2MgF2 + U DrH^{\circ}298 = -394 \text{ kJ/mole}$$

Pour obtenir un lingot d'uranium de 220 kg, la durée du chauffage est de 8 à 12 h.

En France, en 1987, la production a été de 300 t de U métal, à Malvési (11), par Comurhex. La Société Industrielle de Combustible Nucléaire (SICN, 100 % Cogema), produisait des assemblages pour la filière UNGG à Annecy (74). En 1992, arrêt de la production française de ce type de combustible après livraison à l'EDF des derniers éléments de combustible. La production d'U métal pourrait être relancée avec le développement du procédé SILVA.

Retraitement des combustibles irradiés dans les réacteurs de la filière à eau ordinaire :

Après déchargement du combustible, celui-ci est laissé sous l'eau d'une piscine de désactivation, située près du réacteur, pendant environ 1 an. Les assemblages sont ensuite transportés jusqu'à l'usine de retraitement dans des "châteaux de transport" dont le poids à vide varie de 35 à 120 t pour des charges utiles de 1 à 6 t. Dans l'usine de retraitement, les combustibles sont entreposés dans des piscines où ils séjournent au minimum 2 ans.

<u>Procédé Purex</u> (Plutonium Uranium Refining by Extraction) utilisé par Cogema à l'usine de La Hague (50) : il consiste à dissoudre chimiquement (par HNO3) le combustible et à extraire (par le tributylphosphate, TBP) l'uranium et le plutonium.

Les éléments combustibles sont cisaillés en tronçons de 25 à 35 mm de long, puis placés dans un dissolveur contenant de l'acide nitrique concentré, bouillant. Le combustible passe en solution, la gaine (en zircaloy) est insoluble. L'uranium et le plutonium sont extraits sélectivement par le TBP, à 30 %, dans le dodécane. La présence d'une solution aqueuse réductrice (qui donne Pu³⁺) permet d'extraire dans un premier temps seulement U.

- L'uranium extrait est obtenu sous forme de nitrate duranyle.
- Le plutonium est précipité en oxalate de plutonium puis transformé en oxyde PuO2.
- Les solutions de produits de fission sont concentrées et dirigées vers l'atelier de vitrification.
- Les matériaux de structure (coques, embouts) coulés dans du ciment et les boues produites lors du traitement des effluents, enrobées dans du bitume, sont placés dans des fûts en acier inoxydable. Vitrification : les solutions de produits de fission (radioémetteurs béta, neptunium, américium, curium...) après 1 an de désactivation sont traitées selon le procédé de vitrification AVM (Atelier de Vitrification de Marcoule). Les solutions alimentent un four rotatif où elles sont transformées en

oxydes qui sont, dans un four de fusion, mélangés avec une fritte de verre borosilicaté. Le verre obtenu est coulé dans des conteneurs en acier inoxydable, destinés à être stockés. Au 31-10-1990, a été produit depuis mai 1989 : 459 m³ de solutions de produits de fission, 186 t de verre, 477 conteneurs.

Mondialement, fin 1990, un total cumulé de 4 800 t d'U a été retraité dont 4 080 t par Cogema, 492 t par PNC (Japon), 194 t par West Walley (États-Unis), 85 t par DWK (Allemagne), 77 t par Eurochemic (Belgique), 73 t par BNFL (Royaume-Uni).

<u>Situation française</u>:

L'usine UP1 de Marcoule (30) ne retraite, actuellement, que les combustibles des réacteurs de la filière UNGG d'EDF, de Vandellos (Espagne) et de la Défense Nationale : en 1993, 399 t de combustibles ont été acheminées vers l'usine.

L'usine UP2 de La Hague, entrée en service en 1966, a traité les combustibles provenant des 3 filières soit au total : 5 000 t de combustible UNGG, 3 550 t de combustible à eau ordinaire et 10 t de combustible provenant du réacteur Phénix. Actuellement cette usine ne retraite plus que les combustibles des réacteurs de la filière à eau ordinaire provenant de l'EDF. Sa capacité a été doublée en 1994 : 800 t/an. La production a été de 354 t en 1993.

L'usine UP3 de 800 t/an de capacité a démarré en août 1990 et retraite les combustibles étrangers de 30 centrales nucléaires (allemandes, japonaises, belges, suisses, suédoises, néerlandaises...). A traité 601 t en 1993.

Dans les usines de La Hague, les effectifs sont de 4 à 5 000 personnes dont 3 000 personnes de Cogema et, en 1990, les consommations ont été de : 3 650 m³ de solutions de HNO3 à 13,6 moles/l et de 5 770 m³ de solutions de soude à 10 moles/l.

A l'étranger:

Au Royaume-Uni, l'usine Thorp de Sellafield exploitée par British Nuclear Fuels Lt (BNFL), de 900 t/an de capacité, a démarré en 1994.

Au Japon, une unité pilote de 90 t/an fonctionne et, en 1999, doit démarrer une unité de 800 t/an, exploitée par Japan Nuclear Fuel Service (JNFL) à Rokkashomura dans la péninsule de Shimokita. Avant l'éclatement du bloc communiste, les combustibles de la filière VVER-440 étaient traités (200 t/an) à l'usine de Chelyabinsk-65. Les combustibles de la filière VVER-1000 devaient être traités dans l'usine de Krasnoïarsk, encore inachevée.

PRODUCTEURS: **Cogema** (Compagnie Générale des Matières Nucléaires): en 1993. Intervient à tous les stades du cycle du combustible nucléaire: de la mine d'uranium au retraitement des combustibles irradiés. Exploite également des mines d'or (Le Bourneix (87) en France: 2 t d'or en 1993), produit des matériaux ultradurs (diamants synthétiques...) par sa filiale Supradiamant à Annecy (74).

- Chiffre d'affaires : 24,2 milliards de F (dont 37 % à l'exportation), réalisé dans : le retraitement : 40,8 %, l'enrichissement : 30,7 %, les activités minières : 17,2 %, la fabrication de combustible : 7,2 %.
- Effectif: 16 892 personnes.
- Productions : en parts de marché mondial
- Production minière d'U, 20 à 25 % : 4 870 t à l'étranger, 1 710 t en France.
- Conversion de l'U, 25 à 30 % : environ 10 000 t d'U dans UF6 par Comurhex.
- Enrichissement de l'U, 30 à 35 % : par Eurodif (51,5 % Cogema) à Tricastin et production de U hautement enrichi pour la Défense Nationale à Pierrelatte.

- Enrichissement, à Miramas (13), du bore et du lithium en ⁶Li pour les besoins de la Défense et en ⁷Li utilisé comme inhibiteur de corrosion dans les circuits de refroidissement des réacteurs à eau sous pression (1er rang mondial, 1,5 t/an).
- Combustible nucléaire, 12 à 15 % : par FBFC (49 % Cogema), 1 400 t, combustible Mox.
- Retraitement du combustible, 80 à 90 % : à Marcoule, provenant des réacteurs UNGG, et à La Hague pour celui provenant des réacteurs à eau ordinaire.

UTILISATIONS: principalement comme combustible dans les réacteurs nucléaires.

Diverses autres utilisations : elles emploient, principalement, de l'uranium appauvri, sous-produit des opérations d'enrichissement.

Militaires : la masse volumique élevée de l'U (19,05 g.cm⁻³) presque aussi élevée que celle du tungstène (19,35 g.cm⁻³) permet lorsqu'il est utilisé comme charge creuse d'obus d'obtenir des énergies cinétiques élevées et une onde de choc importante. La formation d'alliages relativement fusibles avec les aciers permettent à ces obus de perforer divers blindages, en particulier ceux des chars. U a été également utilisé lors de la guerre du Golfe dans l'élaboration de fléchettes et microdards tirés depuis des navires pour perforer des missiles.

<u>Civiles</u>: a été utilisé (aujourd'hui abandonné) comme contre-poids (2 tonnes) de gouvernes de Boeing, dans des quilles de bateaux (bateaux de Colas, Tabarly). L'utilisation comme pigment orange, sous forme de UO3, n'est pas autorisée en France.

Consommations : en 1992, en t d'U naturel contenu dans les concentrés, hors recyclage. Monde : 52 746, Union européenne : 15 443.

États-Unis	16 554	Ex URSS	3 809	Canada	1 777
France	7 442	Allemagne	3 553	Suède	1 505
Japon	7 144	Royaume Uni	2 164	Corée du Sud	1 294

RÉACTEURS NUCLÉAIRES

L'énergie nucléaire : les noyaux fissiles (²³⁵U, ²³⁹Pu...) peuvent lors d'un choc avec un neutron thermique (1/40 d'eV à 300 K) se briser en libérant des neutrons rapides (2 MeV, en moyenne 2,5 neutrons par fission), des rayonnements (alpha, béta, gamma) et une quantité importante d'énergie (l'énergie nucléaire) qui peut être récupérée, dans une centrale nucléaire par un fluide caloporteur. Parmi les nombreuses réactions possibles :

1
n + 235 U ----> 94 Sr + 140 Xe + 2 1 n

Afin que la réaction de fission puisse s'entretenir d'elle même, les neutrons rapides (vitesse de l'ordre de 20 000 km/s) peuvent être ralentis (à 2 km/s) par un modérateur qui réduit leur vitesse sans les absorber et/ou la proportion de noyaux fissiles dans le combustible nucléaire peut être augmentée, par exemple en enrichissant l'U naturel en isotope 235 fissile.

La fission de 1 g de 235 U produit la même énergie que la combustion de 2,8 t de charbon.

Les filières : une filière est définie par combinaison entre la nature du combustible, celle du modérateur et enfin celle du fluide caloporteur. Le premier réacteur produisant de l'électricité a été mis en service, aux États-Unis, en 1951, en France, en 1956.

Filière	Combustible	Modérateur	Fluide caloporteur
Graphite-Gaz	U naturel	Graphite	Gaz carbonique ou hélium
Eau lourde	U naturel ou enrichi	Eau lourde	Eau ordinaire, lourde, liquide organique
Eau ordinaire bouillante ou sous pression	U enrichi	Eau ordinaire	Eau ordinaire
Surgénérateur	U naturel, plutonium	Néant	Sodium

<u>Filière Uranium Naturel - Graphite - Gaz</u> (UNGG) : 9 tranches construites en France de 1954 à 1971. Le combustible est de l'U naturel métallique, le modérateur du graphite et le fluide caloporteur du gaz carbonique sous pression. Le dernier réacteurs français en activité, celui de Bugey 1, a été arrêté le 27 mai 1994. La filière AGR (Advanced Gaz-cooled Reactor) est proche de la filière UNGG : U est sous forme d'oxyde enrichi à 2,2 %, filière développée surtout en Grande Bretagne (14 réacteurs de ce type). Dans le monde, début 1994, 36 réacteurs de ce type développent une puissance de 13 466 MWe nets.

<u>Réacteurs à eau lourde</u> (PHWR : Pressurised Heavy Water Reactor) : l'eau lourde est utilisée comme modérateur. Ces réacteurs peuvent utiliser de l'U naturel. Le réacteur de Brennilis (29) déclassé en 1985 fonctionnait selon cette technique. Surtout utilisés au Canada (réacteurs CANDU : Canadian Deuterium Uranium). Dans le monde, début 1994, 33 réacteurs de ce type développent une puissance de 18 935 MWe nets.

<u>Réacteurs à eau ordinaire sous pression</u> (REP ou PWR : Pressurised Water Reactor) : utilisés à l'origine par les Américains comme moteur de sous-marins, ce sont les plus utilisés dans le monde (début 1994, 243 réacteurs de ce type développent une puissance de 215 072 MWe nets). En France, développés à partir de 1969 sous licence Westinghouse (États-Unis).

Le combustible est de l'oxyde d'U enrichi à 3 %, l'eau sous pression (155 bar, dans le cas des REP de 900 MW d'EDF) est située dans un premier circuit qui transmet la chaleur du combustible (porté à 2 300°C) à un deuxième circuit d'eau fournissant la vapeur alimentant les turbines. L'eau de circuit primaire (dont la température varie entre 280 et 323°C transmet sa chaleur dans des échangeurs qui génèrent la vapeur du circuit secondaire. Chaque échangeur-générateur contient 3 300 tubes en U d'une longueur totale de 70 km. Le débit de l'eau primaire est de 13 245 kg/s. En France, début 1994, sur 57 tranches en service, 54 sont des REP (34 de 900 MW, 20 de 1 300 MW).

Dans l'ex URSS et les pays de l'Europe de l'Est, les réacteurs de ce type (45) sont dénommés VVER

: Voda Vodianoï Energeticheski Reactor. Ils présentent l'inconvénient de ne pas disposer, en cas d'accident, d'une enceinte de confinement de volume suffisant.

Réacteurs à eau ordinaire bouillante (BWR : Boiling Water Reactor) : contrairement aux réacteurs à eau sous pression où la pression permet d'éviter l'ébullition de l'eau, dans ces réacteurs, l'eau bout au contact du combustible (identique à celui des REP) et la vapeur entraîne directement les turbines. Pas de réacteurs de ce type en France, utilisés aux États-Unis, Suède, Allemagne, Japon. Dans le monde, début 1994, 92 réacteurs de ce type développent une puissance de 76 384 MWe nets.

<u>Réacteurs RBMK</u> (Reactor Bolchoï Mochnastie Kipiachie) : 19 réacteurs de ce type dans l'ex URSS (puissance : 14 829 MWe), dont le réacteur de Tchernobyl qui a explosé le 25 avril 1986. Le combustible est UO2 faiblement enrichi (1,8 %), le modérateur du graphite, le fluide caloporteur de l'eau ordinaire bouillante qui alimente directement les turbines.

Centrales nucléaires de l'ex URSS et des pays de l'Europe de l'Est : début 1994.

	Nombre d'unités	VVER	RBMK	Neutrons rapides	Puissance (MWe)	Production (TWh)	Part nucléaire o production d'élec
	29	13	15	1	19 843	120	13 %
	14	12	2		12 095	75	33 %
ie	2		2		2 760	11	88 %
stan	1			1	135		
<u>)</u>	6	6			3 538	13,9	37 %
ie	4	4			1 632	11	47 %
nèque	4	4			1 632	13	21 %
	4	4			1 740	13,8	43 %

Énergie électrique d'origine nucléaire : début 1994. (TWh = 10¹² Wh).

	Nombre d'ur	nités	Puissance (GW	e nets)	Production	Part nucléaire dans product. électrique
	service	construct.	installée	construct.	TWh nets en 2012	
Monde	431	50	341	48	2 189	17 %
U. européenne	131	5	108	7	714	~ 35 %
États-Unis	110	5	101	6	642	20 %
France	57	4	59	6	368	78 %

Japon	48	6	38	6	249	30 %
Allemagne	21	0	23	0	253	34 %
Russie	29	12	20	11	120	13 %
Canada	22	0	16	0	98	17 %
Royaume Uni	35	1	13	1	91	27 %
Ukraine	14	3	12	3	75	33 %
Suède	12	0	10	0	61	42 %
Espagne	9	0	7	0	56	35 %
Corée du Sud	9	5	7	4	58	40 %

DÉCHETS RADIOACTIFS

Produits de fission : obtenus par l'irradiation à 33 000 MW.jour/t d'oxyde d'uranium enrichi à 3,5 % en ²³⁵U dans un réacteur à eau sous pression, après refroidissement de 3 ans, en kg par t d'U avant irradiation et période en années :

Éléments	quantité (kg/t U)	période (années)	Éléments	quantité (kg/t U)
Uranium	955		Y et lanthanides	10
Plutonium 238	0,17	86	Gaz rares (Kr,Xe)	5
Plutonium 239	5,72	24 400	Alcalins (Cs,Rb)	4
Plutonium 240	2,21	6 600	Zirconium	4
Neptunium 237	0,42	2 140 000	Ru, Rh, Pd	4
Américium 241	0,22	432	Molybdène	3
Américium 243	0,10	7 380	Alcalino-terreux	2
Curium 245	0,001	8 532	Technétium 99	0,8

Le neptunium 237 joue en rôle important. Il continue à se former à partir de l'américium 241 et du curium 245. Chaque année, un réacteur de 1 300 MWe génère 14 kg de neptunium.

Définitions:

Les produits et donc les déchets radioactifs sont caractérisés par 2 paramètres :

- la période : temps au bout duquel la radioactivité est divisée par 2,
- l'activité qui traduit l'intensité de la radioactivité.

En France, on distingue 3 catégories :

- <u>Les déchets A</u> : de faible activité et à vie courte (période < 30 ans). Après 300 ans, leur radioactivité devient proche de la radioactivité naturelle. Ils proviennent des centrales nucléaires, des usines du cycle de l'uranium, des hôpitaux, des laboratoires... Leur volume, après conditionnement, est de l'ordre, en France, de 30 000 m³/an dont 15 % de déchets et 85 % d'enrobage et conditionnement. Ces déchets sont stockés en surface, voir ci-dessous.
- <u>Les déchets B</u>: de moyenne activité, à faible dégagement de chaleur. Ils renferment, en faible quantité, des éléments à vie longue et pour cette raison ne peuvent pas être stockés en surface. Ils proviennent surtout des usines de retraitement des combustibles. Leur production est, en France, de l'ordre de 4 000 m³/an. Ils sont conditionnés dans des blocs de béton d'environ 1 m³ pour les déchets solides (0,8 m³/t d'U) ou des blocs de bitume de 0,2 m³ pour les boues (0,45 m³/t d'U). En France, dans l'attente de la création d'un stockage définitif, ils sont entreposés à La Hague.
- <u>Les déchets C</u>: de haute activité, à fort dégagement de chaleur, et chargés en éléments à vie longue. Ils contiennent plus de 95 % des radioéléments produits par l'industrie nucléaire. Ils sont constitués soit par les combustibles irradiés (1,6 m³/t d'U) dans le cas d'un stockage direct (cas de la Suède), soit par les déchets (0,13 m³/t d'U) obtenus après retraitement du combustible (cas, en particulier, de la France). En France, l'uranium et le plutonium sont extraits de ces déchets qui sont ensuite vitrifiés. La production française de ces déchets, sous forme de cylindres de 200 l est de 200 m³/an. Ils sont entreposés, pour quelques dizaines d'années, dans structures bétonnées assurant leur refroidissement.

Les recherches sur la gestion des déchets B et C sont définies, en France, par la loi de programmation du 30 décembre 1991, qui définit 3 axes :

- La recherche de solutions permettant la séparation et la transmutation des éléments radioactifs à vie longue, présents dans les déchets.
- L'étude des possibilités de stockage réversible ou irréversible dans des formations géologiques profondes, notamment grâce à la réalisation de laboratoires souterrains.
- L'étude de procédés de conditionnement et d'entreposage de longue durée, en surface, de ces déchets.

Dans une quinzaine d'années, un rapport global d'évaluation de ces recherches sera adressé au Parlement qui, le cas échéant, pourra alors être amené à autoriser la création d'un stockage souterrain en couche géologique profonde.

Stockage des combustibles irradiés sans ou après retraitement :

Jusqu'en 1982 (convention internationale de Londres), de nombreux pays (États-Unis, France, Allemagne, Royaume-Uni...) ont immergé en mer leurs déchets nucléaires civils et militaires. Depuis, La Suède a décidé de stocker ses déchets de haute activité, sans les retraiter, d'abord pendant 40 ans dans des piscines situées à 30 m de profondeur sur le site d'Oskarshamn puis, ensuite, à 500 m de profondeur dans des formations rocheuses. Aux États-Unis, pour l'instant, les déchets à longue vie sont entreposés, dans des piscines, sur les sites des centrales, en attendant la

construction d'un centre de stockage, qui pourrait être situé dans le désert du Nevada, à "Yucca Mountain". En 1993, 26 000 t de déchets sont ainsi stockés, avec une augmentation annuelle de 2 000 t.

Les pays de la CEE, le Japon et la Suisse ont opté pour le retraitement des combustibles irradiés. Celui ci permet de récupérer et de recycler la matière fissile, les déchets proprement dits ne représentant que 3 % du poids du combustible. Le retraitement permet une économie de 20 % sur la consommation en U naturel et de 10 % sur l'enrichissement. Voir plus haut pour le retraitement.

Stockage des déchets de faible activité, en France.

En France, les déchets radioactifs sont gérés par l'Agence nationale pour la gestion des déchets radioactifs (ANDRA). Son budget, en 1992, est de 800 millions de F et ses effectifs de 270 personnes. L'ANDRA exploite 2 centres de stockage en surface.

- Le centre de la Manche, ouvert en 1969, sera fermé en 1994 après avoir reçu 500 000 m³ de déchets. Sa superficie est de 12 ha et il est mitoyen de l'usine de retraitement de La Hague.
- Le centre de l'Aube situé à Soulaines, a été mis en service en janvier 1992. Sa capacité est de 1 million de m³ (30 à 40 ans de production française de déchets). Sa superficie est de 95 ha dont 30 ha pour le stockage.

Dans ces centres de stockage, les fûts de déchets (solides) sont placés dans des cases de béton. Les interstices entre les fûts sont comblés par du béton ou du gravier. Lorsqu'une case est pleine, elle est recouverte par une dalle de béton et enrobée de polyuréthane. Les espaces entre les cases sont ensuite rebouchés par de la terre. A la fin de l'exploitation du site, l'ensemble sera recouvert d'une couverture multicouche étanche (phase actuelle pour le centre de la Manche). Le système est complété par un réseau de galeries de surveillance sous les ouvrages de stockage.