

La fabrication du combustible nucléaire

1 Introduction

Nous avons déjà décrit l'amont du cycle du combustible (voir Les Plumes n°62, décembre 2016), et le retraitement (voir Plumes n°59, juin 2015). Cet article complète et termine la description du cycle du combustible. Après un bref rappel historique pour donner un aperçu des différents types de combustibles, nous décrivons les procédés de fabrication des deux principaux combustibles utilisés dans les centrales actuelles : UOX (Uranium OXide) et MOX (Mixed OXide); les principales installations seront présentées, ainsi que l'implication de SGN dans ce domaine.

2 Un peu d'histoire, et quelques principes

La première « pile » atomique comme on la nommait à l'époque est le réacteur démarré en 1942 sous les gradins du stade de l'université de Chicago. Pour fonctionner un réacteur a besoin d'un combustible fissile et d'un modérateur ralentissant les neutrons ; le réacteur de Chicago, conçu par Enrico Fermi et son équipe fonctionnait avec de l'uranium naturel sous deux formes : 6 tonnes d'uranium métallique, et 34 tonnes d'oxyde d'uranium, ainsi qu'avec 400 tonnes de graphite constituant le modérateur. Sa puissance n'était que de 0,5 W ! [1]

Par la suite de nombreuses filières de réacteurs ont été envisagées, développées pour certaines, et mises en service pour un nombre plus restreint.

Nous ne retiendrons ici que les plus importantes, ayant conduit à des réalisations industrielles :

- Réacteurs « graphite-gaz », modérés au graphite, refroidis au gaz carbonique : leur combustible était constitué d'uranium naturel à l'état métallique, gainé de magnésium (filière française UNGG, et britannique Magnox). La filière AGR développée et encore exploitée au Royaume Uni, utilise de l'uranium enrichi à environ 3 % sous forme d'oxyde.
- Réacteurs CANDU (filière canadienne) modérés et refroidis à l'eau lourde : le combustible est constitué d'oxyde d'uranium gainé dans du Zircaloy. Les réacteurs CANDU acceptent aussi de l'uranium légèrement enrichi (jusque 1,2 %, de l'uranium de retraitement ou un mélange uranium/plutonium)
- RBMK (Russie, type Chernobyl) modérés au graphite, refroidis à l'eau : leur combustible est constitué d'oxyde d'uranium enrichi gainé Zircaloy
- Réacteur rapides (donc sans modérateur) refroidis au sodium (type Phénix, Superphénix, BN 350, 600 et 800 en Russie, Monju au Japon, PFBR en Inde, par exemple) : oxyde d'uranium et de plutonium, gainé acier inoxydable
- Enfin réacteur à eau légère pressurisée ou bouillante : la filière de loin la plus répandue : l'eau constitue à la fois le modérateur et le caloporteur, et les combustibles sont constitués d'oxyde d'uranium (combustible « UOX ») ou d'un mélange d'oxydes d'uranium et de

plutonium (combustible « MOX »), gainé de Zircaloy et leur mode de fabrication est expliqué par la suite

3 Le combustible des réacteurs à eau légère, type UOX (Uranium Oxide)

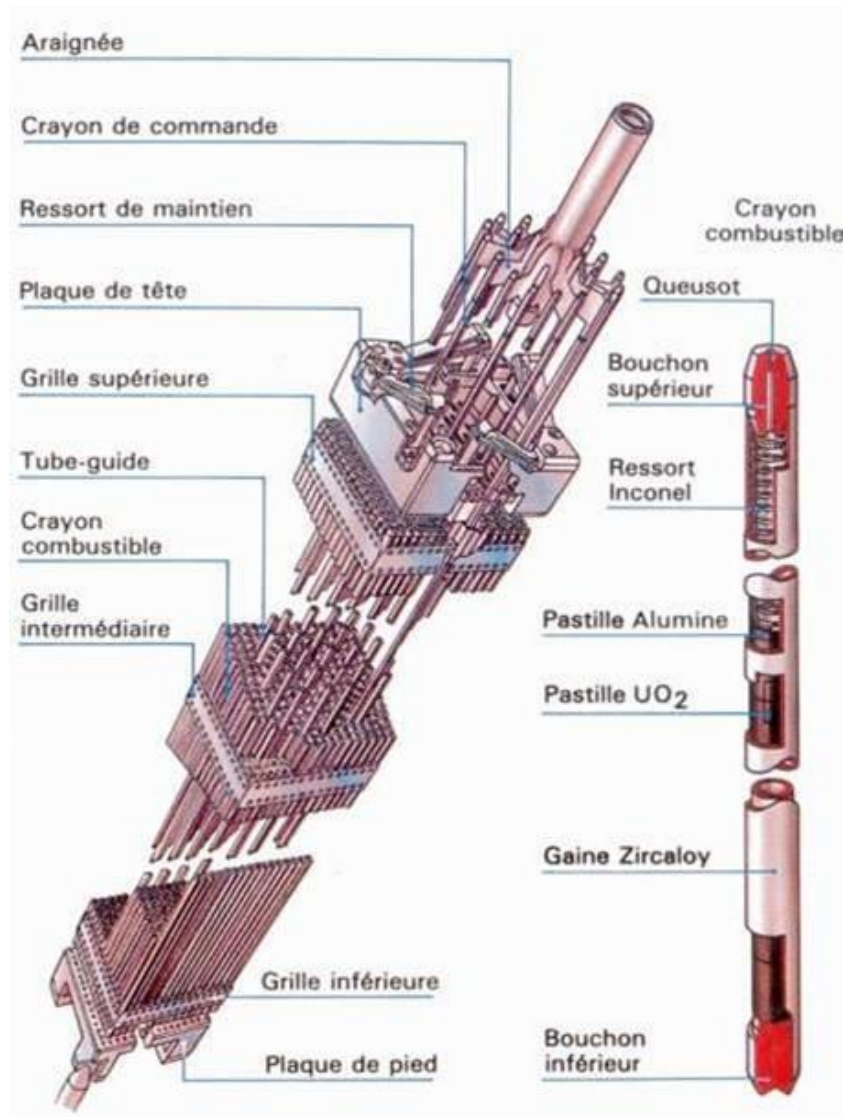


Figure 1 : schéma d'un combustible [2]

Le combustible est composé de crayons : tubes en Zircaloy renfermant des pastilles d'UO₂, d'un diamètre de l'ordre du cm, et d'une longueur d'environ 4 m en général. Le Zircaloy est un alliage de zirconium ; il a été choisi pour ses qualités mécaniques, chimiques (très résistant à la corrosion) et sa transparence aux neutrons. Dans la nature le zirconium se trouve toujours accompagné de Hafnium (à raison d'environ 2%), [3] qui est un poison neutronique. L'élaboration du zirconium « nucléaire » nécessite une délicate opération de séparation hafnium-zirconium, réalisée en France dans l'usine AREVA de Jarrie, près de Grenoble.

D'autres impuretés jouent aussi un rôle important que ce soit au niveau des crayons ou des « plaques » (appelées dans la suite du texte « embouts ») : par exemple la présence de cobalt conduit par capture neutronique à la production de ^{60}Co , qui est le principal émetteur gamma dans les colis de déchets de coques et embouts à La Hague.

Les combustibles utilisés dans les centrales françaises comportent 17 nappes de 17 crayons chacune, pèsent environ 7 à 800 kg, dont 4 à 500 kg d'uranium (on parle de 17x17, mais on peut aller de 8x8 à 17x17 selon les modèles). Les crayons sont maintenus entre eux par des embouts en parties haute et basse, et par des grilles (de l'ordre de 6 en général).

L'araignée en partie haute permet de manipuler les crayons de commande, qui coulissent verticalement.

3.1 Fabrication du combustible

Le procédé décrit ici est celui utilisé dans l'usine AREVA de Romans. Cependant le schéma global est commun à toutes les usines. [4]

La fabrication relève de procédés chimiques et mécaniques, selon le schéma ci-dessous :

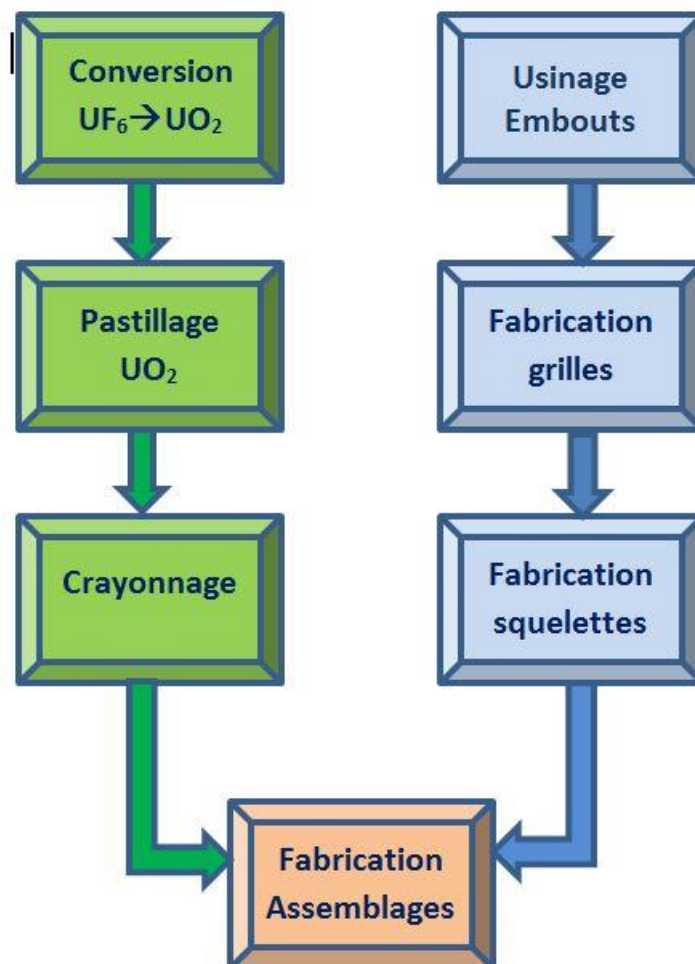
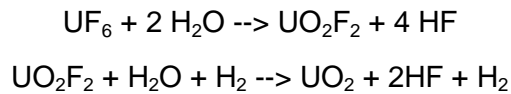


Figure 2 : les étapes de la fabrication

3.1.1 Conversion UF₆ -> UO₂

L'hexafluorure d'uranium est reçu des installations d'enrichissement, dans des conteneurs cylindriques, sous forme cristallisée, et transformé en oxyde par ajout d'eau et d'hydrogène selon les deux réactions suivantes :



Romans utilise le procédé dit « voie sèche » avec une technologie de four tournant ; on peut aussi utiliser une technologie de lit fluide, comme à l'usine AREVA de Lingen en Allemagne. Un procédé voie humide, par précipitation ammoniacale était utilisé à l'atelier TU2 à Pierrelatte, fermé depuis le milieu des années 2000.

3.1.2 Pastillage

L'oxyde d'uranium ainsi obtenu va subir des traitements mécaniques pour assurer une homogénéité des particules, et on lui ajoute quelques additifs tels que des lubrifiants avant de l'envoyer dans les presses où vont être formées les pastilles. Ces pastilles vont ensuite passer dans un four de frittage à environ 1700°C sous atmosphère réductrice. Pendant le frittage les particules d'UO₂ se soudent entre elles, assurant la solidité de la pastille. Les pastilles sont ensuite rectifiées par passage entre deux meules pour obtenir exactement le diamètre voulu.

Une pastille d'oxyde, environ 7g, de l'ordre du cm³, va fournir la même énergie qu'une tonne de charbon !

3.1.3 Crayonnage

Les pastilles sont ensuite empilées dans des tubes en zircaloy, scellées aux deux extrémités. Un ressort à l'une des extrémités sert à maintenir les pastilles. Avant fermeture, le crayon est rempli d'hélium, gaz non activable qui prévient la formation d'éléments radioactifs gazeux dans l'interstice pastilles/gaines.

3.1.4 Usinage des embouts

Les embouts (plaque de tête et plaque de pied de la figure 1) sont des pièces en acier inoxydable (inox et Inconel). Leur fabrication, par exemple à l'usine AREVA de Karlstein, en Allemagne, relève de la mécanique de précision, non spécifique de l'industrie nucléaire.

3.1.5 Fabrication des grilles

La grille assure le positionnement et le maintien des crayons. Elle doit aussi faciliter le transfert de chaleur entre l'assemblage de combustible et l'eau du réacteur. Son design est étudié pour assurer une circulation de l'eau homogène sur l'ensemble du combustible.



Figure 3 : vue d'une grille, déjà montée sur le squelette

Elles sont aussi en alliage de zirconium. Les tôles sont découpées, formées puis assemblées par emboîtement avant d'être soudées.

3.1.6 Fabrication des squelettes

On procède au montage embouts/grilles/tubes guides/tube d'instrumentation (un seul par combustible, non représenté sur la figure 1), puis au soudage et dudgeonnage (fixation des tubes dans les embouts ; le dudgeonnage est une opération qui consiste à refouler le métal d'une pièce tubulaire – dans le cas présent tubes guide et d'instrumentation - afin d'augmenter le diamètre extérieur, et consécutivement de l'immobiliser sur son support – dans le cas présent les embouts).

3.1.7 Fabrication des assemblages

Le squelette est mis en position horizontale et les crayons sont introduits dedans, en général par tirage d'une nappe complète. Lorsque l'opération est terminée, l'assemblage est redressé afin de procéder aux contrôles de qualité : dimensions, test des grappes de contrôle.

3.2 Les principaux producteurs

Voici les principales unités de production dans le monde ; les capacités sont exprimées en tonnes d'uranium par an, en 2015 [4].

Pays	Société	Lieu	Conversion	Pastillage	Assemblage
Chine	CNNC	Yibin	400	400	450
		Baotou	200	200	200
France	AREVA	Romans	1800	1400	1400
Allemagne	AREVA	Lingen	800	650	650
Japon	Mitsubishi Nuclear Fuel	Tokai-Mura	450	440	440
	Global Nuclear Fuel	Kurihama	0	750	750
Kazakhstan	Ulba	Ust Kamenogorsk	2000	2000	0
Corée	KNFC	Daejeon	700	700	700
Russie	TVEL	Elektrostal	1500	1500	1560
	TVEL	Novosibirsk	450	1200	1200
Suède	Westinghouse	Västeras	600	600	600
Royaume-Uni	Westinghouse	Springfields	950	600	860
Etats-Unis	AREVA	Richland	1200	1200	1200
	Global Nuclear Fuel	Wilmington	1200	1000	1000
	Westinghouse	Columbia	1500	1500	1500

Table 1 Principales unités de production de combustibles

On constate que leur nombre est relativement restreint et que certaines usines ne font pas l'ensemble des opérations. Les fabrications des grilles et des embouts ne sont pas toujours effectuées non plus sur les mêmes sites.

La capacité de production à l'échelle mondiale est d'environ 14 000 tonnes.

4 Le combustible MOX

[6]MOX ou « Mixed OXide » : c'est un combustible composé d'un mélange UO_2/PuO_2 . La teneur en plutonium est variable, elle est couramment de l'ordre de 8 à 9 % [7].

Il a été utilisé pour la première fois dans un réacteur (BR3 en Belgique) en 1963, mais son usage s'est répandu dans les années 80. Le plutonium était jusque-là surtout destiné à l'alimentation des surgénérateurs (Phénix et Superphénix), mais cette filière a été abandonnée en Europe et aux Etats-Unis, pour des raisons essentiellement politiques. Elle reste en cours de développement en Russie, en Inde et en Chine.

A ce jour une quarantaine de réacteurs en Europe ont l'autorisation d'utiliser du MOX et une trentaine le font effectivement. Il était utilisé aussi au Japon.

4.1 Fabrication du combustible

La fabrication du combustible MOX est très similaire à celle du combustible UOX, dans son principe, mais la présence de plutonium entraîne deux conséquences majeures :

- Ajout d'une étape d'élaboration d'un oxyde mixte uranium/plutonium,
- Présence de plutonium rendant nécessaire l'utilisation de protection contre la contamination (boîtes à gants) dans l'étape crayonnage, et mise en place de protection contre l'irradiation

Nous décrivons ici le procédé utilisé dans l'usine MELOX d'AREVA.

L'oxyde mixte est préparé selon le schéma suivant :

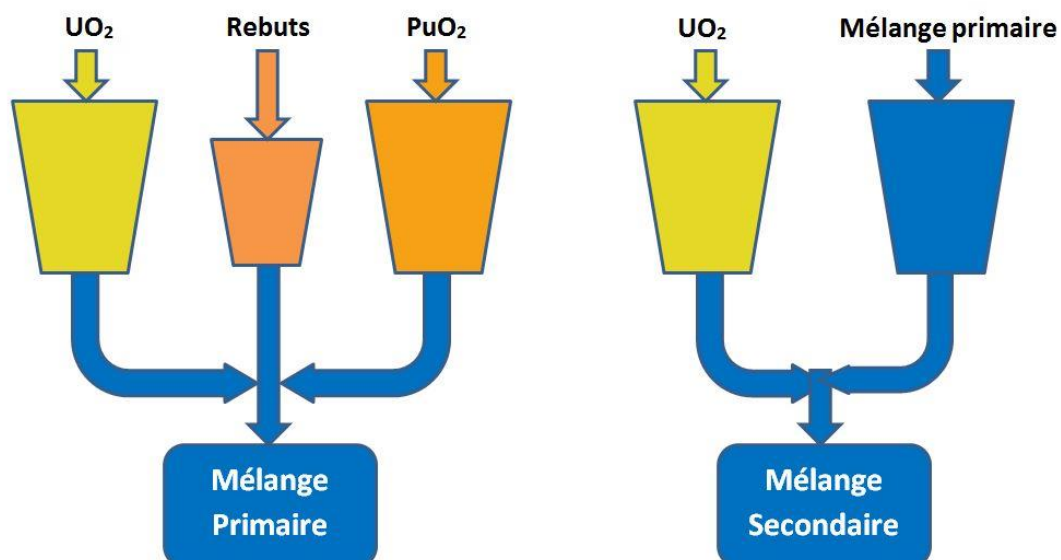


Figure 4 : principe du procédé MELOX

Dans une première étape on prépare un mélange de UO_2 , PuO_2 (environ 30 %), dans lequel on incorpore aussi un lubrifiant et les rebutis de fabrication pour améliorer la qualité du frittage ; cela

permet aussi leur recyclage et évite des pertes de production. Ce mélange est broyé, tamisé avant fabrication du mélange secondaire par ajout d'UO₂ pour arriver à la teneur finale en Pu, moins de 10 %. Ce mélange est ensuite homogénéisé avant envoi au pressage pour fabriquer les pastilles. Les presses sont similaires à celles utilisées pour les UOX.

Le passage par l'étape intermédiaire du mélange primaire permet d'assurer une excellente homogénéité isotopique et facilite la formation de solution solide (U,Pu)O₂ lors du frittage ultérieur.

Comme pour l'UOX on va ensuite fritter les pastilles, et les rectifier. On prête une grande attention lors de la rectification à la récupération des poussières afin de minimiser l'encrassement des boîtes à gants.

La suite du procédé, crayonnage, puis fabrication des assemblages est similaire au cas des UOX.

4.2 Le(s) producteur(s)

Sur l'année 2015, en Europe, les MOX ont représenté 6% de la consommation uranium, soit l'équivalent de plus de 1000 tonnes d'uranium naturel. De 1996 à 2015 c'est 22 000 tonnes d'uranium naturel qui ont été économisées et 195 tonnes de plutonium ont été recyclées (source rapport Euratom [8]).

En pratique à ce jour, le combustible MOX n'est fabriqué qu'en France (usine MELOX d'AREVA, à Marcoule) et en Russie avec un procédé différent, mais à une échelle beaucoup plus petite.

La capacité de MELOX est de 195 tonnes de MOX/an.

Les autres usines ou projets :

- ATPu à Cadarache a produit de 1962 à 2003 des combustibles pour filière des réacteurs rapide et environ 350 tonnes de combustibles MOX pour réacteurs à eau légère
- Sellafield, dont la capacité initiale de 120 tonnes/an, a été réduite à 40 tonnes/an, et dont l'avenir est très incertain
- Idem pour Rokkasho, avec un projet de 130 tonnes/an, en sommeil comme tout le nucléaire japonais, en attente des vérifications par l'autorité de sûreté de la conformité aux normes post-Fukushima
- L'atelier de Tokai-Mura avait une capacité de l'ordre de 5 à 10 tonnes par an, mais est à l'arrêt
- En Belgique l'usine de Dessel avait une capacité de 35 tonnes/an et a fermé en 2006
- Enfin aux Etats-Unis l'usine MFFF (Mox Fuel Fabrication Facility) destinée à recycler 34 tonnes de plutonium militaire est en construction, mais la date de mise en service est régulièrement retardée. Le procédé est le même qu'à MELOX ; la capacité est de l'ordre de 40 tonnes/an.

5 Et tout le reste....

Nous n'avons traité dans cet article que l'aspect fabrication des combustibles des réacteurs à eau légère, de type UOX ou MOX.

Un autre aspect très important est le comportement du combustible en réacteur [5], en particulier pour assurer l'étanchéité des gaines de combustibles pendant les quelques années qu'ils vont passer dans le réacteur, avec des conditions de températures et de pression extrêmes. En 2006, le

pourcentage de crayons fuyards était estimé par l'agence de l'énergie atomique à Vienne, à 14 par millions de crayons, en réduction constante depuis plus de 20 ans. Ces fuites provoquent une contamination du circuit primaire du réacteur.

On trouvera dans la référence [4], en anglais, de nombreux renseignements sur d'autres types de combustibles, tels que les Candu, RBMK, VVER, combustibles pour réacteurs à haute température.

6 L'implication de SGN

La fabrication des combustibles UOX fait partie de l'amont du cycle, tandis que celle des MOX fait partie de l'aval du cycle, domaine de prédilection de SGN.

Cependant, SGN, ou ensuite AREVA E&P, et maintenant AREVA projets, a été récemment impliquée dans le « revamping » de l'usine de Romans, en particulier sur l'aspect sûreté, et sur des actions d'expertise ponctuelle sur les procédés de conversion UF_6/UF_6 , par exemple comparaison entre procédés voie sèche et voie humide.

SGN a en revanche été très impliquée dans le design et la construction de MELOX, et continue à être très présent, tant pour la maintenance, l'amélioration du fonctionnement et les augmentations de capacité.

SGN est aussi très fortement impliquée dans le projet MFFF aux Etats-Unis, et dans les autres projets à l'international (Rokkasho, Sellafield), mais dont l'avancement est pratiquement stoppé à l'heure actuelle.

7 Références

[1]Le fonctionnement d'un réacteur nucléaire

<http://www.clg-lurcat-sarcelles.ac-versailles.fr/IMG/pdf/livret-reacteur.pdf>

[2] Encyclopédie de l'énergie, Le cycle du combustible nucléaire

<http://encyclopedie-energie.org/articles/le-cycle-du-combustible-nucl%C3%A9aire>

[3]Société chimique de France, Zircon

<http://www.societechimiquedefrance.fr/extras/Donnees/metaux/Zr-Hf/texZr-Hf.htm>

[4]Nuclear Fuel Fabrication

<http://www.world-nuclear.org/information-library/nuclear-fuel-cycle/conversion-enrichment-and-fabrication/fuel-fabrication.aspx>

[5] Comportement du combustible dans les réacteurs à eau sous pression

<https://www.asn.fr/Informer/Actualites/Centrales-nucleaires-EDF-Combustible>

[6] Mixed Oxide (MOX) Fuel

<http://www.world-nuclear.org/information-library/nuclear-fuel-cycle/fuel-recycling/mixed-oxide-fuel-mox.aspx>

[7] Le combustible MOX en France

http://www.irsn.fr/FR/connaissances/Installations_nucleaires/cycle_combustible/fabrication_combustible_MOX/Pages/MOX.aspx#.WLVuwn91w88

[8] Rapport annuel Euratom (en anglais, à télécharger) <http://ec.europa.eu/euratom/ar.html>