INSTITUT NATIONAL DES SCIENCES ET TECHNIQUES NUCLEAIRES

MINISTERE DE L'EDUCATION NATIONALE

CEA-R-3744

3.3

1970

La*

RECUPERATION DES ELEMENTS TRANSPLUTONIENS

par

Jean-Yves ESPIE, Benjamin PONCET Alain SIMON

Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay

Rapport CEA-R-3744

SERVICE CENTRAL DE DOCUMENTATION DU C.E.A

C.E.N - SACLAY B.P. n*2, 91 - GIF-sur-YVETTE - France

CEA-R-3744 - ESPIE Jean-Yves, PONCET Benjamin, SIMON Alain

RECUPERATION DES ELEMENTS TRANSPLUTONIENS

Sommaire. - Cette étude a pour objet, la récupération de l'américium et du curium de la solution de produits de fission provenant du traitement de combustibles irradiés à base d'uranium naturel métallique allié à l'aluminium, le fer, et le silicium, et ayant subi une irradiation moyenne de 4000 MWj/t dans une pile du type graphite-gaz, dont la puissance thermique est de 3,7 MW/t d'uranium.

Le procédé utilisé comprend 3 cycles d'extraction et une séparation américium-curium :

- 1° cycle d'extraction dans le TBP à 40 pour cent : extraction des actinides et des lanthanides élimination des produits de fission

CEA-R-3744 - ESPIE Jean-Yves, PONCET Benjamin, SIMON Alain

RECOVERY OF TRANSPLUTONIUM ELEMENTS

<u>Summary.</u> - The object of this work is to study the recovery of americium and curium from the fission-product solution obtained from the processing of irradiated fuel elements made of natural metallic uranium alloyed with aluminium, iron and silicon ; these elements have been subjected to an average irradiation of 4000 MWdays/tonne in a gas-graphite type reactor having a thermal power of 3.7 MW/tonne of uranium.

The process used consists of 3 extraction cycles and one americium-curium separation :

- 1) extraction cyle in 40 per cent TBP : extraction of actinides and lanthanides ; elimination of fission products

• [-

 - 2° cycle d'extraction dans le D2EHPA à 8 pour cent : décontamination en produits de fission décontamination des actinides en lanthanides

- 3° cycle d'extraction dans le TBP à 40 pour cent : séparation du complexant et concentration des actinides

- 4° séparation américium-curium par précipitation.

1970

147 p.

Commissariat à l'Energie Atomique - France

- 2) extraction cycle in 8 per cent D2EHPA : decontamination from the fission products decontamination of actinides from lanthanides

- 3) extraction cycle in 40 per cent TBP : separation of the complexing agent and concentration of the actinides

- 4) americium-curium separation by precipitation.

1970

147 p.

Commissariat à l'Energie Atomique - France

- Rapport CEA-R-3744 -

. .

Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay Institut National des Sciences et Techniques Nucléaires

2

RECUPERATION DES ELEMENTS TRANSPLUTONIENS

par

Jean-Yves ESPIE, Benjamin PONCET, Alain SIMON

- Mars 1970 -

. • Le projet d'installation faisant l'objet de ce rapport a été établi dans le cadre de l'enseignement donné à l'Institut des Sciences et Techniques Nucléaires, en vue de l'obtention du Diplôme d'Ingénieur du Génie Chimique des Industries Atomiques.

Nous tenons à exprimer nos remerciements à MM. BERGER et KOEHLY pour l'aide qu'ils nous ont apportée dans l'établissement de ce projet.

J.Y. ESPIE

A. SIMON

B. PONCET

Mai-Juin 1967

.

- 0 INTRODUCTION
- 1 GENERALITES
 - 1.1 But de l'installation
 - 1.2 Détermination des paramètres du réacteur
 - 1.3 Caractéristiques de la solution à traiter
 - 1.3.1 Teneurs des barreaux en U, Pu, et transuraniens après irradiation et refroidissement
 - 1.3.2 Teneurs de la solution résiduaire en U et Pu
 - 1.3.3 Evaluation des quantités et activités des P.F.
 - 1.3.4 Composition et activités de la solution résiduaire
 - 1.3.5 Capacité de production
 - 1.3.6 Différents procédés utilisés
- 2 PROCEDES CHIMIQUES
 - 2.1 Bibliographie des différentes séparations possibles
 - 2.1.1 Oxydoréduction et précipitation
 - 2.1.2 Extraction par solvants
 - 2.1.3 Extraction par échanges d'ions
 - 2.1.4 Autres méthodes
 - 2.2 Conclusions
 - 2.2.1 Procédés de précipitation
 - 2.2.2 Utilisation des résines
 - 2.2.3 Critique des procédés d'extraction liquide-liquide
 - 2.3 Principe des procédés de séparation retenus
- 3 MISE EN OEUVRE DU PROCEDE
 - 3.1 Rôle et énumération des fonctions

 3.2 - Séparation des produits de fission 3.2.1 - Ajustage aux conditions d'extraction 3.2.2 - Décontamination en produits de fission 3.3 - Séparation des lanthanides légers 3.3.1 - Réextraction des actinides 3.3.2 - Réextraction des lanthanides : (La, Ce, Pr, Nd, Pm) 3.4 - 2ème cycle d'extraction 	 4.3 - Appareillage 4.3.1 - Stockeurs 4.3.2 - Appareilla 5 - IMPLANTATION 5.1 - Protection contre le 5.1.1 - Evaluation 5.1.2 - Evaluation 5.1.3 - Ventilation
 3.2.1 - Ajustage aux conditions d'extraction 3.2.2 - Décontamination en produits de fission 3.3 - Séparation des lanthanides légers 3.3.1 - Réextraction des actinides 3.3.2 - Réextraction des lanthanides : (La, Ce, Pr, Nd, Pm) 3.4 - 2ème cycle d'extraction 	 4.3.1 - Stockeurs 4.3.2 - Appareilla 5 - IMPLANTATION 5.1 - Protection contre le 5.1.1 - Evaluation 5.1.2 - Evaluation 5.1.3 - Ventilation
 3.2.2 - Décontamination en produits de fission 3.3 - Séparation des lanthanides légers 3.3.1 - Réextraction des actinides 3.3.2 - Réextraction des lanthanides : (La, Ce, Pr, Nd, Pm) 3.4 - 2ème cycle d'extraction 	4.3.2 - Appareilla 5 - IMPLANTATION 5.1 - Protection contre la 5.1.1 - Evaluation 5.1.2 - Evaluation 5.1.3 - Ventilation
 3.3 - Séparation des lanthanides légers 3.3.1 - Réextraction des actinides 3.3.2 - Réextraction des lanthanides : (La, Ce, Pr, Nd, Pm) 3.4 - 2ème cycle d'extraction 	5 - IMPLANTATION 5.1 - Protection contre la 5.1.1 - Evaluation 5.1.2 - Evaluation 5.1.3 - Ventilation
 3.3.1 - Réextraction des actinides 3.3.2 - Réextraction des lanthanides : (La, Ce, Pr, Nd, Pm) 3.4 - 2ème cycle d'extraction 	5.1 - Protection contre le 5.1.1 - Evaluation 5.1.2 - Evaluation 5.1.3 - Ventilation
3.4 - 2ème cycle d'extraction	5.1.1 – Evaluation 5.1.2 – Evaluation 5.1.3 – Ventilation
	5.1.2 - Evaluation 5.1.3 - Ventilation
3.4.1 - Coextraction actinides lanthanides	5.1.3 - Ventilation
3.4.2 - Séparation terres rares, actinides	
3.4.3 - Réextraction des lanthanides : (Sm, Eu, Gd)	5.2 – Criticité
3.5 - 3ème cycle d'extraction et de concentration	5.3 – Principes d'implant
3.5.1 - Coefficients d'extraction	
3.5.2 - Conditions de fonctionnement	6 – ASPECTS ECONOMIQUES
3.5.3 – Nombre d'étages	6.1 – Généralités
3.6 — Séparation américium-curium	6.2 – Détermination du co
3.7 – Bilans d'ensemble	6.3 – Frais d'exploitation
3.8 – Traitements annexes	6.4 – Amortissements et
3.8.1 – Radiolyse et régénération des solvants	6.5 – Prix de revient de
3.8.2 – Effluents	
3.9 - Discussion	7 - CONCLUSIONS
3.9.1 — Milieux tampons	8 - ANNEXES
3.9.2 - pH	
$3.9.3 \sim \text{Diluant}$	Annexe 1 : Production d
	Annexe 2 : Calcul du no
- PARTIE TECHNOLOGIQUE	
4.1 - Description et fonctionnement de l'installation	9 – BIBLIOGRAPHIE
4.1.1 - 1er cycle d'extraction	
4.1.2 - 2ème cycle d'extraction	
4.1.3 - 3ème cycle d'extraction	
4.1.4 - Installation de régénération du TBP du 1er cycle d'extraction	
4.1.5 - " 3ème cycle d'extraction	
4.1.6 - " du D 2 EHPA (2eme cycle d'extraction)	
4.1.7 \sim Installations annexes 4.1.8 \sim Préparation des solutions de nitrate de lithium	
4.1.9 - Installation d'épuration de l'air d'agitation des stockeurs actifs	
4.2 - Calcul d'appareillage	
4.2.1 – Calcul des colonnes d'extraction	
4.2.2 – Calcul des mélangeurs décanteurs	

.

5

.

.

,

réfrigérés age divers

les rayonnements

de l'exposition des écrans

tation

oût total de l'atelier

charges sur le capital

.

l'américium

des transuraniens par irradiation neutronique ombre d'étages théoriques nomiques

RECUPERATION DES ELEMENTS TRANSPLUTONIENS

INTRODUCTION

La période actuelle voit se développer l'utilisation des Transuraniens comme sources énergétiques dans les générateurs autonomes de puissance,

Un moyen économique d'obtention de certains de ces Transuraniens, tel l'Americium, consiste à les extraire des solutions de produits de fission provenant du retraitement des combustibles irradiés.

Le présent document est un avant-projet d'Atelier permettant d'effectuer cette récupération.

L'ensemble décrit est destiné à fonctionner en annexe d'une Usine de Retraitement de combustibles irradiés provenant de la filière graphite-gaz, de capacité de traitement 500 tonnes/an.

Il en utilisera une partie du personnel et des services généraux.

La quantité d'Américium récupérée sera de l'ordre de 3 kg/an dans les conditions d'irradiations fixées.

Le procédé employé a pour point de départ les travaux effectués au Commissariat à l'Energie Atomique, Service de Chimie des Combustibles Irradiés, concernant la séparation des Terres Rares et Actinides.

1 - GENERALITES

1.1 - BUT DE L'INSTALLATION

Nous nous proposons de récupérer de façon économique l'américium et les lanthanides légers de la solution de produits de fission provenant du traitement de combustibles irradiés à base d'uranium naturel métallique allié à Al (900 ppm), Fe (600 ppm), Si (100 ppm), et ayant subi une irradiation moyenne de 4000 MW j/t dans une pile du style graphite-gaz dont la puissance thermique serait de 3,7 MW/t d'uranium.

1.2 - DETERMINATION DES PARAMETRES DU REACTEUR

		Taux de combustion	:	4000 MWj/t				
		Puissance thermique	:	3,7 MW/t				
		Durée d'irradiation des barre	au	к; -	4000 M 3,7 N	Wj/t IWj/t =	1081	jours
		Flux de neutrons : pour pr	od	uire 1 MW,	il faut	3,2,10 ¹⁶	fissio	ns
nc	= -	$\frac{3,7 \times 3,2.10^{16}}{\frac{7200}{235} \times 6,02.10^{23} \times 577.10^{-24}}$	<u>-</u>	= 1,12 n/c	m ² /s			

doi

1.3 - CARACTERISTIQUES DE LA SOLUTION A TRAITER

La composition de la solution résiduaire dépend principalement de trois facteurs :

- le taux de combustion (4000 MWj/t)

- le flux d'irradiation $(1, 12 \text{ n/cm}^2/\text{s})$

- la durée de refroidissement du combustible

La durée globale de refroidissement du combustible est de six mois soit 180 jours. Cette durée comprend le temps de refroidissement des barreaux avant lleur dissolution et la durée du traitement proprement dit.

Cette solution provient du traitement des combustibles irradiés après récupération de l'uranium appauvri et du plutonium et concentration des effluents à 25 l/t de combustible irradié.

1.3.1 - Teneurs des barreaux en Uranium, Plutonium et Transplutoniens après irradiation et après refroidissement

Ces teneurs ont été calculées en programmant les équations différentielles qui régissent la formation et la disparition des différents isotopes sur calculateur analogique type SEA NADAC 20. Les courbes obtenues montrent l'évolution de la composition du combustible en fonction du taux de combustion (voir Annexe I).

Les résultats obtenus sont donnés sur le tableau I où ils sont comparés à ceux donnés par l'expérience [A,1].

Isotopes produits en g/t							
	Calcu	lateur Analog	gique	·	Expé	rience	
Isotopes	Fin de l'ir	Fin de l'irradiation Après refroidissement			Fin de l'	irradiation	
Pu ^{total}	2984,2		2986,2		2700		
²¹⁹ Pu	2330	(78,2 %)	2335	(78,2%)	1992	(73,8%)	
²⁴⁰ Pu	550	(18,44%)	550	(18,4%)	589	(21,8%)	
²⁴¹ Pu	93	(3,09%)	90,6	(3,03%)	102,6	(3,8%)	
²⁴² Pu	11,2	(0,37%)	11,2	(0,37%)	16,4	(0,6%)	
Am ^{total}	3,646		6,113		6		
²⁴¹ Am	3,54	(97,1%)	6,01	(98,4 %)	5,28	(88 %)	
²⁴² Am	0,003	(0,08%)	0				
²⁴³ Am	0,103	(2,82%)	0,103	(1,6%)	0,72	(12 %)	
Cm ^{total}	0,362		0,172		0,1	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	
²⁴² Cm	0,357	(98,67%)	0,167	(97,2%)			
²⁴³ Cm	2,43.10 ⁻³	(0,67%)	2,42.10 ⁻³	(1,41%)			
²⁴⁴ Cm	2,4.10 ⁻³	(0,66 %)	2,36.10 ⁻³	(1,37%)			
235 _U restant	3350 g	soit 46,5 %	de ²³⁵ U initi	al			

TABLEAU Nº 1

Il existe un léger désaccord entre les résultats expérimentaux et calculés dont les principales causes sont :

- Sections efficaces différentes suivant les auteurs [AZ, A3, A4 et A5],
- Détermination, spectre et carte du o neutronique dans le réacteur mal précisés.

- Géométrie du réacteur dont il n'a pas été tenu compte dans les calculs.

1.3.2 - Teneur de la solution résiduaire en Uranium et Plutonium

Le rendement de récupération en uranium et plutonium au cours du procédé "Purex" utilisé pour le traitement des combustibles irradiés est considéré égal à 99,99 % et les concentrations respectives en uranium et plutonium de la solution obtenue après dissolution des barreaux de l'ordre de 200 g/l et 0,75 g/l.

la solution résiduaire.

A partir des paramètres de la pile (voir paragraphe A II), les quantités de produits de fission obtenus, ainsi que leurs activités ont été évaluées d'après les tables de BLOMEKE-TODD [A-6]. On a évalué les teneurs des produits de fission correspondant à une durée de décroissance de 6 mois. Les produits de fission de ²³⁹Pu formé pendant l'irradiation ont été négligés.

L'exactitude de ces résultats est liée aux conditions suivantes :

- la puissance du réacteur reste constante,

Tous les résultats obtenus sont consignés dans les tableaux II.

1.3.4 - Compositions et activités de la solution résiduaire

Les tableaux II donnent pour chaque élément :

- les concentrations en grammes par litre et en moles par litre, en prenant comme poids moléculaire moyen la moyenne des poids atomiques des différents isotopes d'un même élément produit au cours de l'irradiation compte tenu de leurs abondances relatives. - l'activité en curie par litre de solution,

- la puissance totale dissipée en watts par litre,
- les états de valence les plus probables,

Les chiffres indiqués dans ces tableaux sont théoriques. Les chiffres réels doivent en différer en raison notamment de l'entraînement au cours du traitement chimique des barreaux.

Uranium contenu dans la solution résiduaire

 $\frac{10^6 (1 - 0,9999)}{25} = 4 g/1$ Plutonium restant dans la solution résiduaire 3000(1-0,9999)= 0,012 g/1

1.3.3 - Evaluation des quantités et activités des produits de fission élaborés dans un réacteur de puissance et application à la teneur en produits de fission de

- les produits de fission ne sont pas évacués pendant l'irradiation.

- la puissance dissipée par les rayonnements γ en watts par litre.

Seront examinés à tour de rôle :

- les actinides,
- les lanthanides provenant de la fission de 235 U
- les autres éléments de fission de $1^{235}U$
- les éléments provenant du procédé, de la gaine et de la corrosion de l'appareillage.

TABLEAUX Nº II

Les Actinides

Eléments	U	Pu	Am	Cm
Concentration en g/1	4	0,012	0,24	0,007
Poids moléculaire moyen	238	239	243	242
Concentration en M/1	0,015	0,5.10 ⁻⁴	10 ⁻³	0,283.10 ⁻⁴
Activité en Cie/l	1,384.10 ⁻⁶	0,041	0,775	22,26
Ργ en W/1	0,109.10 ⁻⁹	٤	5,46.10 ⁻⁶	4,18.10 ⁻⁵
P totale en W/1	8,7.10 ⁻⁹	0,044	0,0246	0,802
Etats de valence	VI	IV	III	ш

Lanthanides provenant de la fission de 235 U $^{\circ}$

Eléments	La	Ce	Pr	Nd
Concentration en g/l	5,87	14,07	5,95	21,29
Poids moléculaire moyen	140	140	140	145
Concentration en M/1	0,42.10 ⁻¹	0,1	0,415.10 ⁻¹	0,147
Activité en Cie/1	15,86	5,58.10 ³	5,04.10 ³	2,84
Pγ en W/l	0,198	1,604	2,378	3,5.10 ⁻³
P totale en W/1	0,245	4,74	31,25	6, 8. 10 ⁻³
Etats de valence	III	III et IV	III et IV	Ш

Eléments	Pm	Sm	Eu	Gd
Concentration en g/1	1,639	3,358	0,177	0,059
Poids moléculaire moyen	147	148	151	155
Concentration en M/1	0,111.10 ⁻¹	0,226.10 ⁻¹	0,117.10 ⁻²	0,38.10 ⁻³
Acti v ité en Cie/1	1,557.10 ⁻³	1,156	5,855	11
$P \gamma en W/1$	1,537.10 ⁻⁷	1,3.10 ⁻⁴	3,10 ⁻²	11
P totale en W/1	0,683	3,02.10 ⁻⁴	3,55.10 ⁻²	п
Etats de valence	III	ШI et Ц	III et II	III

Eléments	ТЪ	Dy
Concentration en g/1	0,12.10 ⁻²	0,1.10 ⁻³
Poids moléculaire moyen	159	161
Concentration en M/1	٤	દ
Activité en Cie/1	1,62.10 ⁻²	11
Pγen W/1	1,44.10 ⁻⁴	11
P totale en W/1	1,65.10 ⁻⁴	11
Etats de Valence	III et IV	ш

J

Eléments	Ge	As	Se	Rb
Concentration en g/1	0,124.10 ⁻²	0,4.10 ⁻³	0,224	2,387
Poids moléculaire moyen	73	75	78	85
Concentration en M/1	0,17.10-4	0,1.10 ⁻⁴	0,35.10 ⁻²	0,356.10 ⁻¹
Activité en Cie/1	tt	11	1,56.10 ⁻³	2,1.10 ⁻³
Pγ en W/1		ti	11	1,6.10 ⁻⁵
P totale en W/1	11	11	4,9.10 ⁻⁷	8,37.10 ⁻⁵
Etats de valence	IV	III et V	IV	I

Eléments	Sr	Y	Zr	Nb
Concentration en g/1	5,873	3, 028	20,5	0,093
Poids moléculaire moyen	87	89	92	93
Concentration en M/1	0,675.10 ⁻¹	0,341.10 ⁻¹	0,223	10 ⁻³
Activité en Cie/1	1,617.10 ⁺³	2,224.10 ⁺³	2,08.10 ⁺³	3,76.10 ⁺³
Pγ en W/1	11	L)	9,033	16,53
P totale en W/1	4,227	7,475	10,59	17,7
Etats de valence	Ш	III	IV	111 et V

Autres produits de fission de l'²³⁵U

Eléments	Мо	Тс	Ru	Rh
Concentration en g/1	16,35	4,25	8,091	1,967
Poids moléculaire moyen	96	99	101	103
Concentration en $M/1$	9, 1755	0,429.10 ⁻¹	0,08	0,191.10 ⁻¹
Activité en Cie/1	2,2.10 ⁻¹⁰	2,4.10 ⁻¹⁰	0,786.10 ⁻³	0,763.10 ⁺³
Ργ en W/1	3,12.10 ⁻¹²	0,2.10 ⁻¹⁰	1,323	0,57
P totale en W/1	0,8.10 ⁻¹¹	2,03.10 ⁻¹³	1,573	2,52
Etats de valence	divers	VI	0 à VIII	divers

Eléments	Pd	Ag	Cd	In
Concentration en g/1	1,246	0,021	0,477.10 ⁻¹	0,73.10 ⁻²
Poids moléculaire moyen	105	108	112	115
Concentration en M/1	0,119.10 ⁻¹	0,2.10 ⁻³	0,4.10 ⁻³	0,6.10 ⁻⁴
Activité en Cie/1		1,33	2,1.10 ⁻¹⁵	2,25.10 ⁻¹³
P γ en W/1	11	0,0206	11	11
P totale en W/1	11	0,021	11	11
Etats de valence	IV	I	Ш	ш

Eléments	Sn	Sb	Те	Ce
Concentration en g/1	0,063	0,038	2,364	13,89
Poids moléculaire moyen	120	125	128	133
Concentration en M/1	0,52.10 ⁻³	0,3.10 ⁻³	0,655.10 ⁻¹	0,1044
Activité en Cie/1	0,756	1,378	1,278.10 ²	6,05.10 ⁻²
Pγ en W/1	3.10 ⁻⁶	3,76.10 ⁻²	0,265	0,615
P totale en W/1	2,12.10 ⁻³	4, 53. 10 ⁻²	0,427	1,287
Etats de valence	II et IV	III	IV	II

Eléments	Ba		Ba
Concentration en g/1	5,996	$P\gamma$ en $W/1$	1,954
Poids moléculaire moyen	137	P totale en W/1	1,975
Concentration en M/1	0,4375.10 ⁻¹	Etats de valence	Ш
Activité en Cie/1	5,07.10 ²		

Eléments provenant du procédé chimique, de la gaine et de la corrosion de l'appareillage

Eléments	Al	Fe	Si	Cr
Concentration en g/1	36	34,2	4	10
Poids moléculaire	27	56	28	52
Concentration en M/1	1,33	0,61	0,143	0,192.10 ⁻¹
Etats de valence	Ш	п.ш	IV	III

Eléments	Ni	Mg	Na	Zr
Concentration en $g/1$	10	10	10	0,007
Poids moléculaire	54	24	23	91
Concentration en M/1	0,185.10 ⁻¹	0,417	0,435	0,77.10 ⁻³
Etats de valence	II	Ш	I	IV

Composition globale Somme des Actinides Somme des Lanthanides Somme des autres P.F Total Somme des Actinides (Am-Cm) Somme des Lanthanides Somme des autres P.F. Total

Les solutions disponibles au bout de six mois de refroidissement ont donc une activité énorme de 24 000 curies par litre. La puissance totale dissipée est de 84,8 W/1; cependant, nous pouvons considérer que seulement 10% de la puissance γ dissipée est absorbée au sein de la solution.

Activité totale des P.F. (d'après les tables de BLOMEKE-TODD) correspondant à une tonne d'uranium irradié :

donc de $0,006 \ge 500 = 3 \text{ kg}$

avoir pour cela à opérer une séparation isotopique.

g/1	M/1
4,25 52,41 201,16 257,82	0,0165 0,3800 3,885 4,2815
•	-

Activité en Cie/1	$e_n^P \gamma$ $\psi/1$	P totale en W/1
23,03	4,7.10 ⁻⁵	0,828
12203	4,21	36,96
11886	30,34	47,84
24089	34,55	84,80

 $24\ 089\ x\ 25$ = $602\ 225\ curies$

Si l'on admet un temps de refroidissement de six mois, le tableau I montre que l'on peut récupérer environ 6 g d'américium par tonne ; une fois la séparation uraniumplutonium effectuée, cette quantité va très peu varier : les faibles teneurs résiduaires en plutonium de la solution amènent une formation négligeable de 241 Am (0,8 mg/t pour six mois) par décomposition radioactive β^- de l'isotope ²⁴¹Pu.

Quel que soit le temps de stockage, la production annuelle d'américium sera

Il n'en est pas de même pour le curium : le principal isotope formé, le 242, a une période courte T = 162,5 j. Emetteur a, il donne l'isotope 238 du plutonium, recherché lui aussi pour des applications médicales ou spatiales. C'est une des façons de l'obtenir pur et sans

Dans le cas d'une marche continue, assumant le traitement journalier de 62,51 de solution de P.F durant 200 jours par an, on pourrait :

- soit récupérer 83,5 g/an de curium 242 à raison de 0,418 g/jour en vue d'une utilisation immédiate,
- soit stocker la solution Américium-Curium après traitement pour laisser décroître l'activité du curium 242 et la traiter plus tard pour séparer le plutonium 238 de l'Américium.

Dans le cas d'une seule campagne annuelle de traitement des 12500 l de solution, il ne serait plus possible de récupérer l'isotope 238 du plutonium car il serait alors mélangé au plutonium résiduel de la solution.

D'autre part, la quantité de curium 242 disponible ne serait plus que de 41 g/an (en admettant un temps de stockage moyen de 6 mois pour le volume total).

La marche continue étant exclue en raison du faible débit journalier disponible, il faudrait envisager un fractionnement en plusieurs campagnes de courtes durées, avec pour inconvénient grave les difficultés et la durée importante de mise en équilibre d'un ensemble d'extraction (colonne ou mélangeur-décanteur) et l'obligation de vidanger l'installation après chaque arrêt à cause de la radiolyse et de la corrosion.

Le prix, la quantité disponible et la demande sur le marché actuel du curium 242 ne semblent pas, pour l'instant, justifier économiquement ce choix.

L'atelier est donc prévu pour travailler de façon continue avec un débit d'alimentation de 10 l/h ce qui donne une campagne de 1250 heures soit 52 jours environ.

Remarque

En prévision d'une éventuelle récupération du curium, l'atelier est calculé pour traiter des solutions de produits de fission d'activité 24 000 curies par litre. Après six mois de stockage, elle ne sera que de 15 200 curies par litre.

1.3.6 - Différents procédés utilisés

.

La récupération des éléments transplutoniens des effluents aqueux contenant les produits de fission est particulièrement difficile.

Bien que des divergences existent encore aujourd'hui il est admis que les éléments transplutoniens - à l'image des terres rares - appartiennent à une même famille, celle de l'actinium (homologue du lanthane). Ils ne diffèrent donc entre eux que par le degré de saturation d'une couche électronique profonde (5 f) et la constance des couches externes explique les propriétés chimiques identiques.

L'appartenance des actinides-lanthanides à deux groupes de transition voisins rend évidemment la séparation délicate.

Les procédés utilisés mettront en oeuvre les échangeurs de molécules neutres ou chargées dans des milieux relargants ou complexants.

Les plus utilisés sont :

- les résines échangeuses d'ions.

- les extractions par solvants.

2.1 - BIBLIOGRAPHIE DES DIFFERENTES SEPARATIONS POSSIBLES

kg en américium ou curium.

On ne peut guère parler d'échelle industrielle car la production de transplutoniens n'a été envisagée - c'est le cas notamment des Etats-Unis - qu'à partir de cibles irradiées de plutonium 239, 242 ou d'américium 243-241, ainsi que le décrit M. BERGER dans la réf. (B 1). Notre avant-projet, au contraire, a pour but de récupérer l'américium et le curium dans les solutions de produits de fissions venant de combustible uranium naturel irradié : nous aurons donc de très petites quantités d'éléments intéressants au sein de quelques dizaines de grammes par litre de terres rares. Bon nombre de procédés, qui précipitent les terres rares et risquent ainsi d'entraîner par adsorption sur le précipité les actinides ou encore qui fixent les terres rares sur des résines échangeuses d'ions et impliquent donc des volumes considérables de résine, ne seront pas applicables.

Les cycles d'oxydoréduction et de précipitation, l'extraction par solvants et l'échange d'ions sont à la base des procédés publiés. La revue de ces différentes techniques est faite dans (B 1) pour le traitement de cibles irradiées et dans (B 2) de façon plus générale pour la séparation actinides-lanthanides.

2.1.1 - Oxydoréduction et précipitation

Deux voies de recherches principales se dégagent des publications :

- Coprécipitation des fluorures

En présence du lanthane (entraîneur) l'oxydation du plutonium à la valence VI par le sulfate cerique (B 3) permet sa séparation des actinides. La réf. (B 4) indique un procédé utilisant quatre coprécipitations successives par le fluorure de lanthane sur une solution nitrique de plutonium, américium et terres rares.

La séparation américium-lanthanides peut se faire en milieu 5 M acide nitrique par l'hexafluorosilicate de lanthane (B 5), et la séparation américium-curium par oxydation du premier et précipitation du curium par les fluorures en présence de lanthane entraîneur (B 6).

20

2 - PROCEDES CHIMIQUES

De toutes les méthodes envisagées jusqu'à présent, seules celles qui utilisent l'extraction par solvants ont été retenues et appliquées à une production de l'ordre de guelques

 $\mathbf{21}$

- Coprécipitation des carbonates

Le plutonium (VI), l'uranium (VI) et l'américium (V) sont isolés des lanthanides par oxydation à l'hypochlorite de sodium ou l'ozone (B7) et précipitation des carbonates doubles K_5 (AmO₂ (CO₃)₂) (B 7) et (B 8). Les conditions opératoires et l'influence des différents paramètres sont exposées en (B 9). La séparation américium-curium utilise aussi (B 10) la précipitation des carbonates.

Il existe également un procédé utilisant la précipitation de sulfates doubles de potassium et de lanthane pour une séparation plutonium-américium (B 11), cependant qu'un procédé qui a pour bases l'oxydation du plutonium à la valence (VI) par le dichromate de sodium et celle de l'américium à la valence (V) par le peroxydisulfate d'ammonium permet l'extraction du premier dans l'hexone et la décontamination, en fer notamment, de ce dernier par le diisopropylether (B 12).

2.1.2 - Extraction par solvants

C'est cette voie qui a reçu le plus d'applications.

2.1.2.1 - L'extraction de molécules neutres peut être faite par les éthers, trialkylphosphates, trialkylphosphines oxydes :

- extraction de l'américium et curium en milieu 11 M chlorure de lithium dans le TBP à 50 % dans le dodécane (B 4 et B 13) : les terres rares ne sont pas extraites et la réextraction se fait par l'acide chlorhydrique 7 M.

- extraction dans le TBP d'une solution 15 M acide nitrique et 12 M acide chlorhydrique (B 14) mais ne donnant pas de facteur de séparation suffisant, également d'une solution 10 à 16 M HNO_3 (B 15).

- les actinides en solution dans l'eutectique nitrate de lithium et nitrate de potassium à 150° sont extraits par le mélange TBP et polyphényls (B 16).

2.1.2.2 - Les acides orthophosphoriques alkylés ou pyrophosphoriques alkylés permettent l'extraction de molécules ou complexes anioniques :

- le traitement des actinides en vue de leur séparation des terres rares utilise les acides mono et dialkyl phosphoriques (B 17) à partir de solution LiCl (B 18) ou les acides organophosphoriques de la forme

 $R' - \frac{\hat{P}}{P} - \hat{C} - \hat{N} < \frac{\hat{R}''}{R''}$ bidendates (B 19) dont l'intérêt est d'éviter le

contrôle très précis du pH et l'emploi des fortes concentrations salines.

- la séparation des transcuriens de l'américium peut être faite par l'acide mono 2 éthyl hexyl phosphorique (B 20), la séparation américium-curium par l'acide diphénylphosphorique dans le toluène (B 21).

- une séparation américium-uranium-neptunium-plutonium en solution nitrique est donnée en (B 22), cependant que l'étude des variations sur les effets synergétiques pour les composés organophosphoriques est précisée en (B 23).

2.1.2.3 - La troisième grande catégorie de solvants est formée par les amines (surtout tertiaires et quaternaires) qui permettent l'extraction des complexes anioniques.

- à partir de solutions diluées d'actinides et de lanthanides à la valence 3 + et en présence de nitrate d'aluminium (1 à 6 M) et d'acide nitrique, les sels d'ammonium quaternaire, p. ex le nitrate de tricapryl ammonium ; "aliquat 336 S NO₂" à 30 % dans un diluant xylène ou diéthylbenzène (B 24), donne un facteur de séparation et de décontamination élevé pour l'américium et le curium et permet même une séparation des lanthanides légers et lourds.

- l'effet du nombres d'atomes de carbone sur les sels d'ammonium quaternaire a été étudié par (B 25) pour la séparation lanthanide actinide et sur les amines tertiaires (25 à 35 atomes de carbone, p. ex. la triisooctylamine xylène) par (B 26) pour une séparation américiumcurium des terres rares et des produits de fission.

- l'extraction sélective par le thiocyanate et les solvants ammonium quaternaire conduit à des séparations intergroupes pour les actinides notamment (B 28).

Une étude intéressante a été faite (B 31) pour les composés organophosphoriques

monoacides (ex. : acide di 2 éthyl hexyl phosphorique dilué dans le DIB) et une phase aqueuse contenant l'acide glycolique et un acide aminopolycarboxylique (DTPA) pour lequel l'américium et le curium donnent des chélates non extraits.

L'influence des complexants a été étudiée, pour le DTPA notamment, dans (B 32) où une application à la séparation lanthanides-actinides est donnée, celle des dilvants dans (B 33), celle des relargants dans (B 33 bis).

2.1.2.4 - Mais trois procédés retiennent l'attention puisque déjà utilisés pour préparer les premières gammes de transplutoniens.

a) Procédé TRAMEX (Tertiary Amine extraction) (B 34)

C'est la séparation des transplutoniens des produits de fission et preduits de corrosion par extraction dans une amine tertiaire, à partir d'une solution très concentrée en chlorure de lithium. L'activité ou plutôt la radiolyse provoque une perte d'acide par suite de l'oxydation des ions chlorures et nécessite l'emploi d'un réducteur : le méthanol donne de très bons résultats, mais l'inconvénient majeur du procédé, outre la nécessité d'un contrôle strict du pH à des concentrations faibles en acide, pour avoir des coefficients de partage élevés et suffisantes pour éviter l'hydrolyse, est bien la corrosion nécessitant des appareillages en tantale.

b) Procédé CLANEX (Co lanthanide and actinide nitrate extraction) (B 34)

Il consiste en une conversion des nitrates en chlorures par extraction de l'américium-curium et des terres rares dans l'alamine 336 HNO₂ (diluant DEB) et réextraction par l'acide chlorhydrique dilué. On obtient ainsi un facteur de décontamination de 10⁴ environ avec une perte d'américium de 0.01 %.

- l'emploi des amines tertiaires et quaternaires pour l'obtention des transuraniens en solution nitrique et en présence de nitrates d'aluminium, lithium, calcium, fer, a été examiné par (B 27) (alamine 336 HNO₃ dans le diisopropyl benzène et aliquat 336 HNO₃ dans le xylène).

D'autres solvants ont encore été étudiés par exemple la TTA dans le benzène (B 29), le mono et dibutyl phosphate (B 30).

c) Procédé TALSPEAK (TRIVALENT actinide-lanthanide Separation by Phosphorus Reagent Extraction from Aqueous Complexe) (B 34, 35 et 36).

Les lanthanides sont extraits par le HDEHP dilué dans un hydrocarbure aromatique à partir d'une solution contenant le diéthylène triamine pentacétate de sodium et un acide carboxylique (l'acide lactique par exemple) : l'américium et curium qui restent dans la phase aqueuse peuvent être récupérés par précipitation des oxalates ou extraction par du HDEHP plus concentré dans un diluant aliphatique et réextraction par l'acide nitrique dilué,

Cet ensemble forme le "curium Processing" en vue d'isoler le curium 242 et est présenté dans les schémas ci-contre. Quelques améliorations ont été publiées dans (B 37) (B 38) et (B 39).

2.1.3 - Extraction par échange d'ions

Une première étude générale à partir de solutions chlorhydriques a été effectuée par (B 40) sur les échanges cationiques et sur la séparation Actinides (III) Lanthanides (III) à partir de solutions nitriques par (B 41).

La réf. (B 42) est relative à une séparation terres rares-actinides par fixation sur résine cationique en solution 1 M acide chlorhydrique, élution 8 M thiocyanate d'ammonium des terres rares, élution 2 M de l'américium (formation de complexes anioniques) ; la décontamination est assurée par passage sur résine anionique où les terres rares ne se fixent pas.

Une séparation américium-curium des produits de fission est effectuée sur résine anionique Dowex 1-8 et élution LiCl (B 43) et (B 44), fixation en milieu 5 M thiocyanate d'ammonium et élution de l'américium par l'acide chlorhydrique 0,1 M (B 45) et (B 46).

Un échange anionique en solution nitrique et élution par l'acide nitrique 8 M permet la séparation de l'américium (+III), du plutonium (+ IV), du neptunium (+ IV) (B 46).

L'échange cationique sur Dowex 50 avec élution par le citrate d'ammonium (B 47) ou élution par les sels des acides tartrique, lactique, glycolique ou α hydroxyisobutyrique (B 48) conduit à des coefficients de partage inférieurs de moitié à ceux obtenus par les résines Dowex 1 x 8 ou AV 17 et l'éluant méthanol-acide nitrique (B 49).

2.1.4 - Autres méthodes

Aucune ne semble devoir dans l'immédiat être suivie d'essais en pilote.

L'électrolyse en milieu acide chlorhydrique 5 M des sels d'américium (B 50), l'électrophorèse, la chromatographie "reversed-phase chromatography" (B 51), l'extraction par les métaux à haute température entre phase métallique et phase saline (Magnésium-zinc ou Magnésium-cadmium) (B 52), et la distillation (la phase vapeur s'enrichit en curium, la phase liquide en américium) (B 53) forment l'essentiel de ces autres méthodes.

2.2 - CONCLUSIONS

2,2,1 - Procédés de précipitation

Il apparaît que les séparations par oxydoréduction ou précipitation sont insuffi-

· ...







santes pour assurer des rendements ou facteurs de décontamination élevés, sauf en fin de traitement dans le cas de l'américium et du curium déjà décontaminés.

2.2.2 - Utilisation des résines

Les essais d'utilisation de résines dans le cas de fortes activités se heurtent aux perturbations engendrées par la radiolyse et se traduisant par :

- des dégagements de produits gazeux contrariant les échanges par destruction de l'homogénéité du lit de résine,

- la dégradation due à l'absorption totale des particules alpha et bêta ainsi que des neutrons provenant des réactions (α, n) sur les éléments légers constitutifs de la résine,

- le faible coefficient de transmission de chaleur de la résine créant une élévation de température importante.

La réf. (B 54) signale pour des fortes activités une rétention jusqu'à 1/3 du curium total dans la résine ; et des essais pour minimiser les effets de la radiolyse ont conduit les Américains dans le "Curium Processing" à travailler sous pression en lit de résine pulsé.

2.2.3 - Critique des procédés d'extraction liquide-liquide

Dans l'ensemble les solvants ont une tenue à la radiolyse supérieure (meilleure pour les esters de l'acide phosphorique ou phosphonique que pour les amines) et surtout une utilisation plus souple sous rayonnement.

Le tributyl phosphate est à l'heure actuelle employé universellement et l'on sait le retraiter pour éliminer le dibutyl phosphate formé par la radiolyse et dont l'effet est néfaste sur la décontamination.

D'autres solvants commencent à être employés mais on manque encore en France de données précises : parmi ceux-ci le D2EHPA (notation anglo-saxonne HDEHP) qui est le di 2 éthyl hexyl phosphoric acide

$$(CH_3 - CH - CH_2 - CH_2 - CH_2 - CH_2)$$
 P = O
 $(CH_2 - CH_3)$ D = O
 $(CH_2 - CH_3)$ D = OH

est surement le plus connu. Sa radiolyse donne un diacide qui présente des coefficients de partage équivalents.

2.3 - PRINCIPE DES PROCEDES DE SEPARATION RETENUS

Il ne pouvait guère être envisagé d'adopter les procédés américains CLANEX et TRAMEX en raison de la différence des solutions à traiter et aussi en raison des problèmes de corrosion qu'ils soulèvent : les zircalloy ou hastelloy étant insuffisants, il faut avoir recours au tantale.

Le procédé retenu, qui a pour base de départ le procédé américain "Talspeak", fait l'objet de recherches, sur le plan analytique, menées par MM. BERGER et KOEHLY au Service de Chimie des Combustibles Irradiés.

Il présente l'avantage de ne pas exiger de milieu acide lactique dans lequel les solubilités des terres rares sont faibles mais seulement un milieu nitrate et nitrique. Les lanthanides et actinides (notées M^{3+}) ayant une faible tendance à se complexer les méthodes classiques d'extraction utilisées pour l'uranium et le plutonium deviennent inutilisables.

2.3.1 - Le solvant tri butyl phosphate - dont l'emploi est très généralisé - nécessite, pour l'extraction des lanthanides sous forme de molécules neutres, l'emploi de milieux très relargants.

Nous avons donc retenu cette solution puisque la solution de départ est déjà 1,33 M en aluminium, On peut schématiser l'extraction ainsi :

$$M^{3+} + 3 NC$$

L'emploi d'un solvant dilué à 40 % dans le dodécane favorise de plus l'extraction des lanthanides et actinides que l'on sépare ainsi des produits de fission.

à un.

2.3.3 - Par suite des facteurs de séparation assez proches, seuls les lanthanides légers : La, Ce, Pr, sont séparés quantitativement et la décontamination ne peut être assurée ainsi.

phosphoriques plus sélectifs.

tration dans le dodécane :

$$M^{3+} + 3(YH)_2 \longrightarrow M(Y_2H)_3 + 3H^+$$

On voit que l'acidité est défavorable mais d'autre part l'hydrolyse des cations M³⁺ qui se produit pour des pH peu acides l'est également.

Les coefficients de partage sont maximum pour pH 3 et la présence de DTPA permettra une séparation quantitative des terres rares et de l'américium curium.

L'emploi de milieux "classiques" nitrate et nitrique et de relargants peu concentrés (4 M maximum) est, bien sûr, un avantage certain sur d'autres procédés mais le fait d'extraire par échange cationique, donc par échange de protons, nécessiterait l'emploi de solutions tampons, ce qui n'est pas réalisé par le relargant employé nitrate de lithium.

Des études de cations relargants ont montré l'intérêt d'utiliser la cation aluminium (+3) d'autant que le couple $Al^{3,+}$ / $Al(OH)^{2+}$ forme un mélange tampon :

$$^{+}$$
 + H₂O \iff Al(OH)²⁺ + H⁺

$$\frac{1}{3}$$
 + 3 TBP $\stackrel{\frown}{=}$ ((TBP)₃ M(NO₃)₃)
relargant

2.3.2 - Une réextraction quantitative des transplutoniens est réalisable en milieu relargant LiNO, et en présence de complexant (chélates) : le diéthylène diamine pentacétate d'aluminium (DTPA), dont la force de complexation dépend du pH, permettra la séparation des lanthanides dont les coefficients de partage, pour la phase organique, restent supérieurs

On a recours à l'extraction par échange cationique avec des solvants organo-

Par exemple l'acide di 2 éthyl hexyl phosphorique qui se présente sous forme dimère, symbolisée (YH), permet une extraction intéressante lorsqu'il est en faible concen-

Un dernier cycle d'extraction au TBP sert comme purification ultime des dernières traces de produits de fission et permet la concentration de la solution américiumcurium en vue d'une utilisation ultérieure.

2.3.4 - L'utilisation de l'extraction par solvant ou de l'échange d'ions n'étant pas applicable à la séparation américium curium à l'échelle du kilogramme, celle-ci peut être effectuée - après précipitation des hydroxydes et redissolution dans l'acide chlorhydrique - par précipitation sélective de l'américium sous forme de K_2AmO_2 (CO₃)₃.

Le schéma de principe de cette séparation - utilisée aux Etats-Unis - sera donné dans ce document mais l'étude permettant la mise en oeuvre industrielle ne sera pas effectuée.

Nous avons en effet indiqué au paragraphe 1.3.5 que cette séparation n'était pas envisagée pour l'instant ; l'américium, contenant 3 à 4 % de curium ou de plutonium 238, est utilisable comme cible pour la préparation d'isotopes supérieurs du curium, berkélium, californium, etc ...

3.1 - Le procédé comprend comme étapes principales : (voir schéma I)

des lanthanides.

- lique à 40 %, aqueuse complexante. et envoyés au stockage.
 - 3.1.3 Concentration des actinides
- lère phase : ajustage de la solution contenant les actinides.
- concentrés.
 - 3.1.4 Séparation américium-curium
- lère phase : passage des actinides en milieu chlorure

 - redissolution par HCl

3 - MISE EN OEUVRE DU PROCEDE

3.1.1 - Première décontamination en produits de fission et séparation de la majorité

lère phase : coextraction des actinides et lanthanides trivalents dans le phosphate tributy-

2ème phase : séparation des actinides + ϵ La + Eu par lavage du solvant par une solution

3ème phase : la majorité des lanthanides contenus dans la phase organique sont réextraits

3.1.2 - Deuxième décontamination en produits de fission et purification des actinides

lère phase : ajustage de la solution contenant les actinides + ϵ La + Eu

2ème phase : décontamination en produits de fission réalisée par une coextraction des actinides + ϵ La + Eu dans le D2EHPA à 8 %.

3ème phase : réextraction des actinides seuls par lavage, avec une solution complexante à pH déterminé. Les ϵ La + Eu restent dans la phase organique, ils sont réextraits sur une installation parallèle et envoyés au stockage des lanthanides.

2ème phase : cycle d'extraction-réextraction au TBP 40 % dans lequel les actinides sont

- précipitation des hydroxydes par la soude,

- 2ème phase : précipitation de carbonate double d'américium V et de potassium par le carbonate de potassium en présence de persulfate de potassium.
 - filtration et redissolution pitrique de l'américium,
 - stockage de la solution de nitrate d'américium.
- 3ème phase : précipitation de l'hydroxyde de curium des eaux-mères de filtration par la soude.
 - filtration et redissolution nitrique du curium.
 - stockage de la solution de nitrate de curium.
- N.B. La partie relative à la séparation américium-curium sera traitée seulement à titre d'exemple de procédé envisageable, la réalisation de l'installation correspondante n'étant pas prévue.

3.2 - SEPARATION DES PRODUITS DE FISSION

L'utilisation d'un milieu relargant permet l'extraction au tributyl phosphate des actinides et lanthanides et leur séparation des produits de fission.

Le caractère acide du cation Al^{3+} amène en solution aqueuse un équilibre acide-base que l'on schématise ainsi :

 $Al^{3+} + H_2O \longrightarrow AlOH^{2+} + H^+ K = 10^{-4,5}$

Le couple $Al^{3+} = 1,6$ M et $AlOH^{2+} = 0,1$ M permet de tamponner le milieu aux environs d'une acidité 10^{-3} N en H⁺.

C'est ce milieu - proche de la saturation en nitrate d'aluminium - qui présente l'effet le plus favorable à l'augmentation des coefficients de partage.

3,2.1 - Ajustage aux conditions d'extraction

L'ajustage à une concentration voisine de la saturation en nitrate d'aluminium nécessite, pour éviter une trop grande dilution, l'emploi d'une solution concentrée de $Al(OH)_{2}^{+}$ 5 M, dont la stabilité s'avère très satisfaisante (C 1).

Cette solution est réalisée par mise en contact et agitation d'une solution sursaturée de nitrate d'aluminium cristallisé et d'une amine tertiaire insoluble dans l'eau : la trilaurylamine (TLA) par exemple.

L'amine fixe une molécule d'acide nitrique suivant le mécanisme :

$$2 R_3 N + A1^{3+} + 3 NO_3 + H_2 O \rightleftharpoons 2 R_3 NHNO_3 + A1(OH)_2^+ + NO_3^-$$

Au fur et à mesure de l'extraction de l'acide nitrique les cristaux de nitrate se dissolvent et après un laps de temps suffisant la phase aqueuse est décantée du solvant qui sera régénéré avant recyclage.

> Volumes d'ajustage -Solution de départ : $Al(NO_3)_3 = 1,33 \text{ M/1}$; $H^+ = 2 \text{ N}$; 1 V

f ^{er} (NIE D'EXTRACTION Elimination des PF Jéporation des Institution	T.B.P 4
	HNO3 M
2°CYCLE DEXTRACTION 1°C° Phoye Decantomination cn PF 2°C° Phoye Decontomination dey actinidey en	Li NO3 De Emos
Lon thanidej	Li NO3 DIRA MI PH- 3 Dg EMP,

3° CVCLE D'EXTRACTION Separation du complesant el concentration des actinides	LiNO3 4M T.B.P 40% HNO3
	No OH
	HC
SEPARATION Américium Curium	Nº CO3 KI SI OB
	HNO3
	1

30

FIG I

SCHEMA DE TRAITEMENT



Remarque :

Définition de V : V représente le débit horaire de la solution de départ, soit 10 1/h. Tous les débits mentionnés par la suite seront exprimés en fonction de V.

Les deux conditions de molarité et de déficience en aluminium amènent :

 $A1(OH)_2 NO_3 5 M :$ HNO₃ 4 N н,0

Remarque :

Cette dilution est destinée à réduire les risques de précipitation encourus lors de l'ajout de nitrate d'aluminium à une solution de produits de fission voisine de la saturation. Un filtre, devant travailler en actif, sera intercalé sur le circuit entre la cuve d'ajustage et l'alimentation de la première colonne.

3.2.2 - Décontamination en produits de fission

- les décontaminer en produits de fission

On se fixe donc :

- rendement américium
- facteur de décontamination $fd = 10^4$

 $V = 10 \ l/h$

0,245 V 0,075 V : : 0,180 V Solution ajustée : $Al^{3+} = 1, 6 M/1$ $A10H^{2+} = 0, 1 M/1$

```
3.2.2.1 - On désire dans ce premier cycle :
- extraire quantitativement les lanthanides et les actinides
                                      = 99,99 %
             3.2.2.2 - Coefficients de partage
              L'équilibre d'extraction que l'on peut écrire :
                   M^{3+} + 3 NO_3^- + 3 TBP \implies M(NO_3)_3, 3 TBP
montre que le logarithme du coefficient de partage K_{D} varie linéairement suivant une droite
de pente 3 avec le logarithme de la concentration en TBP (fig. 1 tirée de (C 2)).
                   \log K_{\rm D} = 3 \log (\text{TBP})_{\rm O} + \log K + 3 \log (\text{NO}_3)
Pour le zirconium (Zr (NO_3)_4, 2 TBP), la pente ne sera que de 2 unités.
                   \log K_{\rm D} = 2 \log (\text{TBP})_{\rm O} + \log K' + 4 \log (\text{NO}_3)
L'extraction est donc favorisée par les grandes concentrations en TBP.
```

Solvant 40 %

A1 ³⁺	*	1,7	M	LiNO3		4 M
A10H ²⁺	=	1	М	pH	=	2,5
Am	к _D	-	110	К _D	=	35
Pm	к _D	=	140	к _D	>	35
Zr	к _D	=	0,1	к _D	=	0,030

Les calculs seront effectués :

Solvant 40 %

- sur l'américium puisque le curium a un coefficient de partage supérieur

$$\alpha = \frac{K_D Am}{K_D Cm} = 0,7$$

- sur le prométheum qui présente le coefficient de partage le plus faible des lanthanides

- sur le zirconium comme représentant des produits de fission. On peut en effet admettre qu'il représente le coefficient de partage maximum des P.F. Mais sa valeur est donnée à titre indicatif parce que non reproductible, car le zirconium se présente sous des formes plus ou moins hydrolysées : $Zr(NO_3)_4$, $Zr(OH)_2$ (NO_3)₂, etc... suivant le vieillissement de la solution.

De plus, le DBP formé par radiolyse provoque une rétention du zirconium dans la phase organique.

Néanmoins ce coefficient de partage permet d'évaluer le facteur de décontamination minimum en P.F.

3.2.2.3 - Débit de solvant

Il est choisi de façon à conserver les deux tiers de solvant libre, une fois les terres rares et actinides extraits ($\simeq 0,255$ M/1). Il faut donc un volume de TBP à 40 % (1,46 M/1) dans le dodécane de

$$O = \frac{1,5 \times 0,255 \times 3 \times 3}{1,46} = 2,51$$

3.2.2.4 - Débit de lavage

Compte tenu des coefficients de partage (voir 3.2.2.2) il faut assurer un facteur d'extraction en zirconium suffisant :

$$E_{o}^{a} = \frac{L}{2,5 \times 0,017} = 23,5 \text{ (pour L = 1 V)}$$

On prendra L = 1 V



35

Remarque :

Un trop grand débit de lavage provoque une dilution importante de la solution de produits de fission, et l'introduction de grandes quantités de lithium est cause de réactions (α, n) ce qui complique une reconcentration éventuelle des effluents.

Le calcul en est fait étage par étage pour tenir compte de la variation des K_D en fonction de l'occupation du TBP. Ce calcul est reporté en annexe II-1. La fig. 2 montre que la colonne doit comprendre

2,3

la séparation sera réalisée.

3.3 - SEPARATION DES LANTHANIDES LEGERS

3.3.1 - Réextraction des actinides

- -C'est par complexation au moyen d'une phase aqueuse de $LiNO_3$ 4 M et DTPA 0,25 M qu'elle est réalisée.

Le DTPA qui est un polyacide (pk = 1,8 ; 2,55 ; 4,33 ; 8,60 ; 10,58) complexera d'autant plus les actinides et lanthanides que le pH est plus élevé

Il sera employé sous forme de sel d'aluminium (Al³⁺ = 0,25 M) ce qui diminue son pouvoir complexant et permet l'extraction des lanthanides (fig. 3). La valeur de pH retenue (pH = 2,5) doit assurer :

- la réextraction de l'américium curium dans la phase aqueuse, - la décontamination en lanthanides.

3.3.1.1 - Facteurs de séparation

Le tableau ci-dessous (C 2) montre que l'on ne peut envisager une séparation complète des lanthanides-actinides.

3.2.2.5 - Nombre de plateaux théoriques

2,9 étages théoriques d'extraction 11 de lavage.

La cinétique d'extraction étant rapide, c'est par une colonne pulsée (voir paragraphe 4) que

.

 $YH_5 + M^{3+} \iff YM^{2-} + 5 H^+$

Facteurs de séparation $\alpha = \frac{K_D \text{ lanthanides}}{K_D \text{ américium}}$	Coefficient de partage TBP = 40 %		
DTPA = A1 = 0,25 M ; Li	iNO ₃ 4M; pH 2,5		
La $\alpha = 600$	198		
Ce α = 52	17,2		
$\Pr \alpha = 12,5$	4,12		
$Pm \alpha = 9$	2,97		
Eu $\alpha = 2$	0,66		
Tb $\alpha = 1,4$	0,46		
Am	0,33		
$Cm \alpha = 0,70$	0,23		

Il apparaît que les lanthanides lourds : Sm, Eu, Gd, Tb, Dy seront réextraits avec l'américium et le curium.

Par contre les lanthanides légers : La, Ce, Pr, Nd, Pm, seront séparés plus ou moins quantitativement suivant la valeur du coefficient de partage.

3.3.1.2 - Rendements - Facteurs de décontamination

On se fixera : $p_{Am} = 99,99 \%$

Les terres rares seront classées en trois groupes pour lesquels on définira des facteurs de décontamination arbitraires.

-

La-Ce	$K_{D min}$	=	17,2	fd =	10 ⁵
Pr-Nd-Pm	^K D min	=	3	fd =	90
Sm-Eu-Gd	K _D min	=	0,66	fd \sim	1

En admettant récupérer le dernier groupe avec les actinides (on définira pour cela un rendement) le calcul du nombre d'étages sera effectué sur les conditions les plus pessimistes, à savoir :

$$Pm \qquad K_D = 3$$

$$Am \qquad K_D = 0,33$$

3.3.1.3 - Débits

Ils seront ici choisis uniquement dans le but d'obtenir des facteurs d'extraction intéressants en ce qui concerne le nombre d'étages.



Rejuitot: 2.9 etages d'extraction

Fig: 2



On prendra : 0,8 V Volume de TBP (lavage) Volume de solution de réextraction 1,65 V 3.3.1.4 - Nombre de plateaux théoriques Le calcul est présenté en annexe II-2 et fig. 4. La cinétique, commandée ici par la cinétique de complexation des actinides par le DTPA, est de trois minutes environ pour une réextraction supérieure à 95 %. Il est donc préférable de travailler en mélangeur-décanteur. Pour la section réextraction, le calcul du nombre d'étages théoriques est fait sur l'américium : Il faut alors pour le rendement désiré : n = 7 étages théoriques La section lavage est calculée pour assurer le fd prévu pour le promethium, soit : n = 7, 8 étages Ces deux valeurs du nombre d'étages aboutissent à : $fd_{Pm} > 10^5$ ρEu = 99 % le cycle ne peut donc séparer les lanthanides supérieurs (à partir du samarium). 3.3.2 - Réextraction des lanthanides : La, Ce, Pr, Nd, Pm Le coefficient de partage en présence d'une solution d'acide nitrique 4 N est au minimum de 10^{-2} . Le débit de la phase aqueuse de réextraction est fixé à 0,75 V permettant de stocker les lanthanides sous un volume comparable à celui de départ, Un lavage au dodécane est effectué dans le but d'éviter l'entraînement vers le stockeur de gouttelettes de TBP non décantées. Le rendement de réextraction désiré est de ρ = 99,99 %. Le nombre d'étages théoriques (voir annexe II-2) doit être de 3. (fig. 5). Pour le lavage au dodécane on se fixe arbitrairement 2 étages. 3.4 - 2ème CYCLE D'EXTRACTION Réalisé par l'acide di 2 éthyl hexyl phosphorique (D 2 EHPA) il est basé sur l'effet complexant du DTPA (acide diéthylène triamine pentacétique) en fonction du pH. 3.4.1 - Coextraction actinides-lanthanides 3.4.1.1 - Coefficients de partage Les déterminations des coefficients de partage n'ont été réalisées (fig. 6) que





, ,



с.



•

présence de nitrate 4 M s'élève à 5 ; ceux des terres rares sont supérieurs comme le montrent les courbes établies pour du nitrate 3 M.

44

Le lavage utilise une solution 4 M de nitrate de lithium à pH = 3, afin d'équilibrer le solvant en acidité et en cation relargant en vue de l'opération suivante qui se fait à pH = 3.

Le coefficient de partage est supérieur à 200 pour l'américium.

3.4.1.2 - Rendements - Facteurs de décontamination

L'extraction des actinides et lanthanides restants doit être quantitative, On se fixe $\rho_{Am} = 99,99$ M.

Une décontamination supplémentaire est possible : en effet, le zirconium a un coefficient de partage égal à 0,05. On prendra $fd_{Zr} = 10^3$.

3.4.1.3 - Débits

Le débit minimum de D 2 EHPA est fonction du nombre de moles à extraire et du nombre de molécules immobilisées (3 molécules de solvant dimérisé pour une molécule de lanthanide).

Un excès de solvant à 8 % (0,22 M) est utilisé pour éviter la variation du coefficient de partage en fonction de la concentration des cations en phase organique et de la variation des coefficients d'activité.

On prendra : phase organique = 2 V.

Le débit de lavage doit permettre la décontamination avec un volume d'effluents réduit. Il sera de 0,3 V.

3.4.1.4 - Nombre d'étages (voir annexe II-3)

Le calcul effectué avec des coefficients de partage constants montre la nécessité de disposer de :

5,30 étages théoriques pour l'extraction) voir la fig. 7

3.4.2 - Séparation terres rares - actinides

3.4.2.1 - Coefficients de partage

La réextraction des actinides et leur décontamination exige de se placer à pH = 3 (fig. 6) dans un milieu nitrate de lithium 3 M.

A ce pH le facteur de séparation actinides-europium (représentant les terres rares) est de 50, l'europium restant fixé en phase organique $K_D = 5$.

3,4,2,2 - Rendements - Facteurs de décontamination

On prendra pour la réextraction $\rho_{Am} = 99,99$ %, et pour la décontamination en europium $fd = 10^4$.



COEFFICIENTS D'EXTRACTION DE L'AMERICIUM, EUROPIUM ET CERNIM EN FONCTION DU PH

3.4.2.3 - Débits

Il est intéressant de disposer des actinides purifiés et concentrés dans la phase aqueuse de réextraction.

Compte tenu des performances demandées on prendra un rapport phase organique sur phase aqueuse égal à 5 ce qui conduit à un débit de réextraction de 0,40 V.

3.4.2.4 - Nombre d'étages

Le calcul (annexe II-4) conduit à

7,65 étages théoriques de réextraction

11 11 5.4 de lavage pour un débit de phase organique

(D 2 EHPA 8 %) de 0,5 V (fig. 8)

3.4.3 - Réextraction

La fraction de lanthanides lourds (Sm, Eu, Gd) est réextraite par l'acide nitrique 1 N par suite de la compétition entre l'extraction des protons et celle des cations м³⁺.

Le coefficient de partage est pour cette solution de 10^{-2} .

Puisqu'il s'agit d'une partie seulement des lanthanides présentant une activité de 30 curies environ par litre de solvant à l'entrée le débit de réextraction est fixé à 0,3 V.

Un rendement de réextraction en europium de 99,99 % impose 3,75 étages théoriques (voir annexe II-4) - fig. 9.

Un lavage au dodécane, comportant deux étages de mélangeur-décanteur, doit éviter l'entraînement de D 2 EHPA non décanté vers la cuve de stockage des lanthanides.

3.5 - 3ème CYCLE D'EXTRACTION ET DE CONCENTRATION

Il s'agit uniquement de purifier et concentrer la solution d'actinides.

Cette opération est possible avec le D 2 EHPA et le TBP.

Nous choisirons le TBP qui bien que donnant des facteurs de séparation moins élevés est d'une utilisation courante et d'un prix de revient nettement inférieur.

3.5.1 - Coefficients d'extraction

Le milieu nitrate de lithium 4 M (fig. 10) permet une extraction efficace des actinides $K_{DAm} = 20$ (à pH = 1,5).

L'effet relargant ne serait pas favorable - pour des concentrations supérieures à une décontamination.

Faute de coefficients de partage pour les produits de fission que seuls des essais permettraient de doser exactement à ce niveau-là, il ne sera pas possible de calculer un facteur de décontamination.





.

.



i

.

Rejultat . 8,1 ctages d'extraction

. .

. ...

.

,

.

Fig. 9 REEXTRACTION EU+ELO EN 90 Diagromme de MAC ABE al THIELE an coor danner lagarithmiquei log ¥ 10-1 VF 10-2 10-3 10-4

.



.

-



Par contre, la fig. 10 montre que les lanthanides suivront exactement l'américium, encore que le Gadolinium et Terbium présentent très vraisemblablement des coefficients de partage inférieurs. La réextraction est faite par l'acide nitrique 1 N et le coefficient d'extraction est alors $K_D = 10^{-3}$.

L'extraction comme la réextraction doit se faire avec un rendement $\rho = 99,99\%$. L'ajustage aux conditions d'extraction est réalisé par introduction dans la solution d'actinides 0,4 V de

nitrate de lithium $12 \text{ M} \neq pH = 1,5$ 0,057 V acide nitrique ΙΝ 0,013 V Solution ajustée ($x_{Am} = 2, 12 \ 10^{-3}$) 0,47 V

Le volume de TBP 40 % (1,46 M) représentera un large excès (40 fois environ) du nombre de moles nécessaire à l'extraction des actinides. Les coefficients de partage peuvent alors être considérés constants tout le long de l'extraction.

> TBP 40 % Lavage

Les autres débits sont calculés

- pour permettre un facteur de concentration d'environ 25 - pour respecter un rapport de débits entre les deux phases de 15 maximum.

3.5.3 - Nombre d'étages (voir annexe II-5)

Le calcul donne 4 étages théoriques d'extraction (fig. 11) On prend arbitrairement 3 étages réels de lavage pour les raisons précisées

plus haut.

La réextraction nécessite 2,2 étages théoriques (fig. 12). Enfin un lavage au dodécane (pour empêcher l'entraînement de TBP) utilisera 2 étages réels du mélangeur-décanteur.

3.6 - SEPARATION AMERICIUM-CURIUM

Le projet ne prévoit pas, pour l'immédiat, cette séparation mais plutôt l'utilisation directe de la solution nitrique contenant l'américium et le curium. La mise en oeuvre est donnée à titre indicatif. La méthode de séparation par fixation sur résines échangeuses d'ions présente l'inconvénient d'avoir une sélectivité assez faible dans le cas du mélange américium-curium, et d'ajouter à ceux-ci un éluant gênant tel le citrate ou lactate d'ammonium, dont il faut les débarrasser pour les opérations chimiques ultérieures.

3.5.2 - Conditions de fonctionnement : Rendement - Débits

O ≠ 0,25 V L = 0,03 V

D'autre part, l'activité élevée de la solution à traiter amène une dégradation

rapide de la résine, qu'il faut retraiter.

La séparation par précipitation du carbonate double d'américyle et de potassium a été préférée, bien qu'elle entraîne une suite d'opérations discontinues.

Cette méthode est décrite en détail dans la réf. (B 8).

Procédé :

La solution nitrique d'actinides à 12 gl d'américium est précipitée par un excès de soude 10 M puis filtrée. Les eaux-mères de filtration sont évacuées au stockage d'effluents moyenne activité.

La filtration des hydroxydes ne présente pas de difficultés.

Le précipité est ensuite redissous par l'acide chlorhydrique 6 M.

Le carbonate double d'américyle et de potassium est précipité de la manière suivante :

On ajoute à la solution chlorhydrique d'actinides une solution 3 M de carbonate de potassium (température 80°) avec un excès de l'ordre de 20 % vis-à-vis de la stoéchiométrie.

La précipitation de AmO_2 $(CO_3)_3$ K $_2$ est ensuite effectuée par le persulfate de potassium en solution. Après deux heures de digestion le précipité est filtré puis lavé par une solution de carbonate de potassium 3 M.

Après filtration, le carbonate double d'américyl et de potassium est repris par l'acide nitrique pour être stocké sous forme de solution nitrique.

Les eaux-mères de filtration contenant le curium sont traitées de la manière suivante :

- le curium est précipité sous forme d'hydroxyde par la soude, filtré. Le gateau est repris par l'acide nitrique pour donner une solution nitrique de curium en vue du stockage.

La réalisation de cette partie de l'installation présenterait quelques difficultés du point de vue technologique, étant donné la forte acidité du curium : 3325 Cie/g, correspondant à un dégagement de 120 wth/1 par gramme de produit.

En particulier la filtration de quelques dizaines de grammes de curium nécessiterait l'étude de filtres spécialement conçus.

3.7 - BILANS D'ENSEMBLE

Solution de P.F (25 l/T) débit l V ; $x_{Am} = 10^{-3}$ M/l ; activité 24100 Ci/l. Solution concentré d'américium débit 0,02 V ; $x_{Am} = 4,985 \ 10^{-2} M$; activité 1158 Ci/l.

Rendement global américium-curium = $\frac{0,02 \times 4,985}{10^{-3}}$ = 99,7 %



Fig. 11 EXTRACTION DES ACTINIDES EN 90 Diagramme de NAC CABE et THIELE. on coordonnées lugarithmiques

ŵ

Log Y 10-2 уF 10-3 10-4 10-5

10-6 yw 10:7 10-6 10-7 Pejullat: 2,19 étages de réextraction



Facteurs de décontamination -

Lanthane - C Pr, Nd, Pm Sm, Eu, Gd Zirconium,]

Il s'agit bien sûr de rendements ou facteurs de décontamination théoriques. Seuls des essais pilotes peuvent permettre de définir des valeurs sures, le comportement de 🚽 certains produits de fission comme le zirconium ou le ruthénium ne pouvant être prévu totalement.

 \mathbb{C}^{2}

Cas de l'uranium et du plutonium

L'uranivat et le plutonium s'extraient dans le TBP en milieu relargant aluminium. Ils semblent ne pas être complexés - ou très peu - par le DTPA (surtout sous la forme UO_2^{2+} et PuO_2^{2+}) et resteront donc dans le sclvant avec le lanthane et le cérium. L'acide nitrique réagit vis à vis d'eux comme relargant. L'emploi d'une solution nitrique 4 N permet donc de les séparer des lanthanides. De toute façon le plutonium, comme le zirconium, donne avec le DBP formé par radiolyse

des complexes à coefficients de partage très élevés.

3.8 - TRAITEMENTS ANNEXES

3.8.1 - Radiolyse - Régénération des solvants

3.8.1.1 - Régénération du TBP

Sous rayonnement le rendement des formations de molécules de dibutyl phosphate

dans le TBP est G = 1,5 à 2,5 (C 3).

Calcul de formation de DBP dans un cycle d'extraction.

La formation du DBP se fait principalement : 200

- tant qu'il y a mélange des phases aqueuses actives et des phases organiques, - tant que le solvant est chargé de molécules actives,

Pendant la décantation, seule la couche de solvant en contact avec la phase aqueuse active est soumise au rayonnement α et β sous une très faible épaisseur ; on pourra alors négliger la formation de DBP durant les décantations. Le mélangeur décanteur étant prévu pour 3 minutes de mélange et 10 minutes de décantation et le temps de passage dans la colonne pulsée étant de 2 minutes, il se for me

Cérium	fd	=	10'	
)	fd	=	5 10 ⁴	
P.F	fd	÷	10 ⁷	

La solution purifiée d'américium-curium présente donc un facteur de concentration de 50 par rapport à la solution de départ. La concentration des actinides est de 12 g/l, l'activité de 1158 Ci/l, soit un facteur de décontamination (en curies) d'environ 8,310⁵.

 $3,5 \ 10^{-3}$ moles/l/cycle de DBP

La quantité formée ne perturbera pas l'extraction au cours d'un cycle (mis à part le plutonium (10⁻⁴ M) qui sera en très grande partie complexé) mais imposera le traitement du TBP avant recyclage.

Un lavage alcalin (carbonate + soude) permettra de précipiter les phosphates de zirconium et de plutonium.

> A 60° environ la soude permet une décontamination du TBP en ruthénium. Un système de mélangeur décanteur - voir (4-3-2) permettra le lavage du TBP :

- par 10 % en volume de soude 1 N (à 60°) et enfin d'un lavage

- par 10 % en volume d'acide nitrique 1 N destiné à enlever les traces de carbonate ou de soude qui pourraient être entraînées.

N.B. - Pour diminuer le volume des effluents on utilise des solutions de Na₂ CO₃, NaOH et HNO, 1 M, au lieu de 0,1 M (quantité nécessaire) qu'on recyclera dix fois.

3.8.1.2 - Régénération du D 2 E HPA

Sa radiolyse donne l'acide 2 éthyl hexyl diphosphorique dont les effets ne semblent pas affecter les coefficients de partage.

Sa régénération sera effectuée à l'aide d'un lavage (10 % en volume) de nitrate de lithium 4 M à pH = 3 (pH contrôlé par ajout de soude ou lithine pour diminuer l'acidité causée par la formation du diacide).

Le solvant est ainsi mis en équilibre avec le cation relargant Li⁺, dans les mêmes conditions de la réextraction actinides-europium.

3.8.2 - Effluents

Ils sont de trois sortes :

3.8.2.1 - Effluents très fortement actifs

Ce sont les pieds de colonne

- de l'extraction (I) contenant les P.F :

 $4,75 \ 10^6 \ \text{Cie/m}^3$ et $3,7 \ 10^4 \ \text{Wth/m}^3$

- de la réextraction (III) contenant les lanthanides :

 $16,15 \ 10^6 \ \text{Cie/m}^3$ et $1,32 \ 10^4 \ \text{Wth/1}$

Remarque :

La puissance indiquée ici en watts par litre représente l'énergie dissipée dans le liquide (totalité de la puissance α , b et 10 % de la puissance) qui devra être enlevée par le système de refroidissement.

ø

3.8.2.2 - Fortement actifs

Il s'agit :

- de la phase aqueuse de sortie de IIa assurant la décontamination en P.F : (200 Cie/m³ et

 $2 \text{ Wth}/\text{m}^3 \text{ environ.}$

et 667 Wth/m³.

3.8.2.3 - Moyennement actifs

rieure à 100 Cie $/m^3$).

Cette solution sera envoyée au traitement des effluents correspondants de l'ensemble de UP $_{
m II}$ de la Hague, ainsi d'ailleurs que la solution de carbonate souillée de précipités de phosphate actifs provenant de la régénération du TBP.

3.8.2.4 - Faiblement actifs

Il s'agit des solutions de régénération (nitrique et caustique) du TBP et de celle du D 2 HPA. Comme précédemment ces solutions seront envoyées au traitement correspondant de l'ensemble UP_{TT} .

3.8.2.5 - Stockage des solutions contenant les P.F Les trois solutions contenant les produits de fission - 2,5 V à 35,5 g/l de PF, 59 g/l de matériaux de corrosion ou d'alliage et 28 g/l de

lithium.

- 0,5 V à 28 g/l de lithium et traces de PF

seront mélangées en vue d'une reconcentration dans un évaporateur du type de ceux utilisés à Marcoule ou la Hague pour aboutir à une solution finale de 1,5 V (facteur de concentration 3,3) soit une solution à 230 g/l en ions divers, contre 260 g/l pour la solution de départ. Cette reconcentration peut se faire à l'atelier de UP_{II} procédant aux concentrations des effluents, mais les effluents reconcentrés ne doivent pas être recyclés avec les effluents venant de la récupération de l'U et du Pu.

Il est envisagé un stockage séparé des deux fractions des lanthanides car l'utilisation ultérieure du cérium (¹⁴¹Ce T = 32,5 jours et ¹⁴⁴Ce T = 290 jours) et du ¹⁴⁴Pm est dès aujourd'hui envisagée. Cela conduit donc au stockage annuel de

d'une solution à 64,6 g/l environ de lanthane, Cerium, Praseodyne, Neodyne, Prometheum, et à un deuxième stockage de 0,3 x 12500 = 3750 l d'une solution à 18,7 g/l de samarium, europium, gadolinium.

- de la phase de réextraction des lanthanides supérieurs (Sm, Eu, Gd) : 9,75.10⁴ Cie/m³

C'est la sortie lavage du dernier cycle de concentration au TBP (activité infé-

- 2 V à 28 g/l de lithium et 6,14 10^{-2} g/l de PF

3.8.2.6 - Stockage des terres rares

 $0.75 \times 12500 = 9375 1$
3.9 - DISCUSSION

3.9.1 - Milieux tampons

L'absence de tampon pH 2,5 et 3 en milieu nitrate de lithium ne devait pas poser de problème si le solvant, avant chaque réextraction en présence de DTPA, est mis en équilibre par lavage avec une solution de nitrate de lithium au pH désiré.

L'ajustage du tampon Al³⁺/AlOH²⁺ sera vérifié au moyen de deux dosages : a) ajout d'excès d'acide nitrique et dosage par la soude de l'excès d'acide n'ayant pas réagi au cours de la réaction :

$$AlOH^{2+} + HNO_3 \longrightarrow Al^{3+} + H_2O$$

Soit v₁ le volume de soude nécessaire

b) complexation par l'oxalate de l'aluminium

$$A1^{3+} + 2 C_2 O_4^{2-} = A1(C_2 O_4)_2^{-}$$

et dosage de l'acidité libre par un volume v_2 de soude. D'où :

$$(A10H^{2+}) = (HNO_{3T}) - v_1 + v_2$$

3.9.2 – pH

.

Les pH indiqués n'ont pas de signification dans l'absolu ; dans les milieux très relargants, il ne peut être question de négliger les coefficients d'activité ; si la valeur du pH donnée par l'électrode de verre ne correspond pas à la concentration réelle des H^+ , il est parfaitement normal de définir une échelle de pH dans un milieu donné, les indications lues étant valables pour ce milieu.

Pour le milieu $LiNO_3$ 4 M on constate un décalage de l'échelle de pH de deux unités environ vers un pH plus acide.

Les valeurs données précédemment doivent être référées au nitrate de lithium 3 ou 4 M.

3.9.3 - Diluant

Plus la constante diélectrique du diluant est faible (cas des hydrocarbures aliphatiques comme le dodécane = 2,01) plus la force d'attraction électrostatique diminue, diminuant donc la dissociation.

L'extraction par échange cationique est contrariée et les coefficients de partage décroissent, d'autant plus que le solvant dilué peut s'y polymériser.

Dans le dodécane le D 2 EHPA est dymérisé et l'adoption de diluants plus polaires est susceptible de diminuer la polymérisation à défaut d'augmenter les coefficients de partage.

Mais jusqu'ici les études n'ont porté que sur le D 2 EHPA dilué dans le dodécane.

3.9.4 - Pertes d'acide

Quel que soit le procédé employé (oxydoréduction, résines, extraction), la radiolyse a pour effets notamment les pertes, parfois importantes dans le cas de fortes activités, d'acide (réduction du cation nitrate). Les pertes peuvent aller jusqu'à 0,1 N/j pour une densité thermique de 10 w/l (B 34).

L'addition de réducteur comme le méthanol ne semble guère minimiser les effets en dehors de solutions chlorures, seul le chlorure stanneux donne quelques résultats mais oblige à l'introduction d'élément étranger.

Il semble plus facile de suivre l'acidité par dosages tout le long du traitement et de procéder au réajustage éventuel. L'utilisation de milieux relargants moyennement concentrés nitrate de lithium 4 M (contre du nitrate ou chlorure de lithium 10 à 12 M dans les procédés Clanex et Tranex) et de solvants souples d'emploi permet d'envisager une application industrielle dont le prix de revient sera d'autant plus allégé que les problèmes causés par la corrosion ne dépasseront pas ceux rencontrés au cours du traitement des combustibles irradiés.



•

,

.

.

.

.

.

3 CYCLE D'EXTRACTION

4.1 - DESCRIPTION ET FONCTIONNEMENT DE L'INSTALLATION (voir schéma général n° 1) L'installation comporte : - les ensembles de colonnes et mélangeurs décanteurs relatifs aux trois cycles d'extraction formant l'essentiel du procédé, avec leurs annexes : - réservoirs de stockage, - cuves d'ajustage des réactifs - pompes et air lift pour transfert des fluides de procédé. - une installation de régénération de TBP servant au 1er cycle d'extraction, - une deuxième installation de régénération de TBP servant au 3ème cycle d'extraction, - une installation de régénération de D 2 EHPA, - des ensembles de préparation de réactifs à partir des produits commerciaux, soit : - acide nitrique 1 M. et 4 M.

- - soude 36°B
 - carbonate de soude

Les calculs relatifs à la détermination des dimensions d'appareillage figurent dans la deuxième partie de ce chapitre.

4.1.1 - 1er cycle d'extraction

La solution de produits de fission concentrés à traiter est stockée dans un réservoir St 1 de capacité utile 12500 l correspondant au volume traité pendant une campagne.

Avant l'alimentation de la première colonne d'extraction C 1, la teneur de la solution en $(NO_3)_3$ Al et Al $(OH)^{2+}$ est ajustée dans les cuves A_1A ou A_1B fonctionnant successivement, l'une alimentant la colonne pendant que l'autre est en cours d'ajustage. Le transfert de solution dans les cuves A₁A et A₁B s'effectue par soutirage au

4 - PARTIE TECHNOLOGIQUE

- nitrate de Lithium 3,4 et 11 M à différents pH

4.1.1.1 - Ajustage de la solution de PF

vide avec filtration intermédiaire dans les filtres F_1 et F_2 .

Ces filtres peuvent être débarrassés des dépôts qu'ils renferment par lavage à contre courant par l'eau et évacuation des produits dans le stockeur de produits de fission traités St 7.

Les cuves d'ajustage A1A et A1B ont une capacité utile de 360 litres correspondant à une opération journalière.

Les quantités de réactifs d'ajustage nécessaires sont introduites à partir des installations de préparation par pompe doseuse et compteurs volumétriques.

Réactifs nécessaires à une opération d'ajustage :

Pour une opération journalière :

_	volume	de	solution	de	\mathbf{PF}	à	traiter	:	240	1
---	--------	----	----------	----	---------------	---	---------	---	-----	---

- volume d'eau de dilution : 43, 21- volume de solution $Al(OH)^{2+}$ 5 M : 58,81
- volume d'acide nitrique 4 M : 18 1
- volume final : 360 1

Alimentation de la première colonne d'extraction

La solution contenue dans les réservoirs A1A ou A1B subit une deuxième filtration destinée à éliminer les insolubles éventuellement produits au cours de l'opération d'ajustage.

Cette filtration est effectuée par aspiration au vide dans deux réservoirs intermédiaires.

De là, la solution est reprise par air lift pour l'alimentation de la première colonne d'extraction.

Le débit est réglé au moyen d'un diaphragme.

4.1.1.2 - 1ère colonne d'extraction (C 1)

Il s'agit d'une colonne pulsée à plateaux perforés fonctionnant en phase organique continue afin d'obtenir une meilleure décantation de la phase dispersée (réf. D 3).

L'interface de séparation entre phases est ramené au niveau du sommet de la colonne par transport de l'émulsion prélevée au bas, par air lift dans le décanteur où s'effectue la séparation.

Cette disposition a l'avantage d'assurer une bonne régulation d'interface.

La phase aqueuse provenant de la colonne C 2 est transportée par air lift à la partie supérieure de C 1. La solution épuisée de produits de fission est évacuée au stockeur de PF traités St 7.

Note :

1° - La description des colonnes proprement dites et des mélangeurs décanteurs est donnée au paragraphe 4.2.

2° - Les débits d'alimentation des extractions figurent dans le diagramme général de circulation.

4.1.1.3 - 2ème colonne d'extraction (C 2) Cette colonne assure le lavage de la phase organique provenant de la colonne C 1, La solution de lavage est introduite en tête de colonne au débit voulu au moyen

L'interface est réglé par système pneumatique contrôlant l'ouverture de la vanne 4.1.1.4 - Ensemble de mélangeurs décanteurs MD 1 A et MD 1 B Rôle : Cette batterie assure la réextraction sélective des actinides, ceux-ci

Fonctionnement en phase aqueuse continue d'une pompe doseuse à partir du stockeur St 30, La circulation de TBP à partir de la première colonne s'opère par gravité. de soutirage au bas de la clonne. étant complexés par le DTPA.

Groupe MD 1 B

Composé de 9 étages de mélangeurs décanteurs du type I accolés. L'alimentation en phase organique s'opère par gravité à partir de la colonne d'extraction C 2. L'alimentation en solution complexante est effectuée par pompe doseuse à partir du stockeur n° St 27.

Groupe MD 1 A

Assure le lavage par le TBP des actinides réextraits en phase aqueuse, Comporte 10 étages de mélangeurs décanteurs du type III. Alimentation continue en TBP 40 % par pompe doseuse. La solution d'américium obtenue est stockée dans le réservoir tampon St 2,

4.1.1.5 - Ensemble de réextraction C 3 C 4

Cet ensemble assure la réextraction des lanthanides restant en phase organique à l'issue de la première réextraction.

Colonne C 3

Sert au lavage de la phase aqueuse réextraite. Il s'agit d'une colonne pulsée à plateaux perforés fonctionnant en phase aqueuse continue, régulation de l'interface par système pneumatique.

stockeur St 34.

La solution de lanthanide recueillie au bas de la colonne est évacuée vers le stockeur St 3 de capacité 9375 1 correspondant au stockage d'une campagne de traitement.

Colonne C 4

Rôle : Assure la réextraction proprement dite. Alimentation en acide nitrique par pompe doseuse. La phase aqueuse recueillie au bas de la colonne est transférée par air lift au sommet de la colonne C 3.

70

Le dodécane assurant le lavage est introduit par pompe doseuse à partir du

La phase organique provenant de la batterie de mélangeurs décanteurs MD 1 B est introduite au bas de la colonne par air lift.

72

La régulation de l'interface de la colonne s'opère à l'aide d'un système pneumatique.

4.1.2 - 2ème cycle d'extraction

La solution d'actinides et lanthanides lourds provenant du ler cycle d'extraction est stockée dans le réservoir tampon St 2 assurant une autonomie de marche de deux jours.

Cette solution est transférée dans les réservoirs d'ajustage A II A et A II B (volume utile 360 1) par aspiration au vide pour le 2ème cycle d'extraction.

La quantité d'acide nécessaire est introduite par pompe doseuse, cette quantité 🔊 est fonction du pH du contenu du réservoir.

Un contrôle continu du pH de la cuve en service est effectué pendant sa mise en oeuvre.

Les trois batteries de mélangeurs décanteurs formant le deuxième cycle d'extraction sont alimentées en solution par un réservoir à niveau constant muni d'un orifice calibré. L'excès de liquide transporté par l'air lift retourne par trop-plein dans le réservoir d'ajustage en service.

Batteries de mélangeurs décanteurs

Leur disposition est telle que les phases organiques s'écoulent par gravité d'un ensemble au suivant.

4.1.2.1 - Ensemble MD II A - MD II B

Rôle : assure la décontamination finale en PF des actinides et lanthanides lourds.

Section MD II A

Comprend 7 étages de mélangeurs décanteurs du type II.

Alimentation en D 2 EHPA 8 % par pompe doseuse à partir du réservoir St 16. La solution de produits de fission est évacuée au stockeur de produits de fission traités St 7.

Section MD II B

Comporte 4 étages de MD du type I.

Alimentation en solution de lavage (LiNO₂ 4 M à pH 3) à partir du stockeur St 28 par pompe doseuse.

4.1.2.2 - Ensemble MD II C - MD II D

Rôle : Assure la réextraction sélective de l'américium de la phase organique par complexation par le DTPA,

La solution aqueuse de réextraction est stockée dans le réservoir tampon St 5.

Section MD II C

Rôle : lavage de la solution réextraite. Comporte 7 étages de mélangeurs décanteurs du type III. Alimentation en D 2 EHPA 8 % par pompe doseuse à partir du stockeur St 16

de D 2 EHPA régénéré.

Section MD II D

Assure la réextraction proprement dite. Comprend 10 étages de mélangeurs décanteurs du type II. Alimentation en solution complexante par pompe doseuse à partir du stockeur

St 29.

Ensemble MD 2 E

Rôle : Réextraction des lanthanides lourds par l'acide nitrique. La solution nitrique de lanthanides réextraits est stockée dans le réservoir St 4 dont la capacité permet de recevoir la production d'une campagne.

Section MD II E

Assure le lavage par le dodécane de la solution réextraite. Comporte deux étages de mélangeurs décanteurs du type IV. Alimentation en dodécane par pompe doseuse à partir du stockeur St 34.

Section MD II F

Assure la réextraction proprement dite. Comporte 5 étages de mélangeurs décanteurs du type II. Alimentation en HNO₂ 1 M par pompe doseuse. Le D 2 EHPA épuisé est recueilli dans le réservoir St 17 de l'installation de

régénération.

4.1.3 - 3ème cycle d'extraction

tion.

- éliminer le complexant qu'elle contient.

La solution contenue dans le stockeur tampon St 5 est ajustée en acidité et concentration en nitrate de lithium dans les réservoirs d'ajustage A III A et A III B. Le transfert de solution s'opère par mise sous vide. La quantité de nitrate de lithium nécessaire à l'ajustage est contrôlée par

compteur volumétrique.

L'introduction d'acide nitrique est fonction du pH.

4.1.3.1 - Ensemble de batterie MD III A et MD III B

phase organique.

Rôle : - concentrer la solution d'américium provenant du 2ème cycle d'extrac-

Rôle : assure la séparation du complexant par passage de l'américium en

Section MD III A

Comprend 5 étages de mélangeurs décanteurs type IV. Alimentation en TBP régénéré par pompe doseuse à partir du stockeur St 18. Alimentation en phase aqueuse par air lift à partir des cuves d'ajustage A III A

ou A III B.

Section MD III B

Rôle : lavage de la phase organique extraite. Comporte 4 étages de mélangeurs décanteurs du type IV. Alimentation en nitrate de lithium par pompe doseuse, La phase organique chargée alimente par gravité le groupe de réextraction.

4.1.3.2 - Ensemble MD III C - MD III D

Rôle : assure la réextraction de l'américium de la phase organique, par l'acide nitrique 1 M.

Section MD III C

Sert au lavage par le dodécane de la phase aqueuse réextraite. Comprend 2 étages de mélangeurs décanteurs du type IV. Alimentation en dodécane par pompe doseuse.

Section MD III D

Assure la réextraction proprement dite de l'américium. Comporte 3 étages de mélangeurs décanteurs du type IV. Alimentation en acide nitrique 1 M par pompe doseuse.

4.1.4 - Installation de régénération de TBP du 1er cycle.

On y effectue les opérations suivantes :

- 1er lavage du TBP au carbonate de soude assurant l'élimination du Pu et de l'U résiduaire.
- 2ème lavage à la soude pour piégeage de PF résiduaires tel que le Ru.
- 3ème lavage du TBP par l'acide nitrique 1 M.

Le TBP à régénérer stocké dans le stockeur 15 est envoyé par une pompe doseuse dans le MD V à un étage où il est lavé par la solution de carbonate de sodium 1 M amenée par pompe doseuse du réservoir stockeur 14.

Débit de φ O	:	33 l/h	
Débit de φ a	:	3,3 1/h	
Temps de séjour	dans	MD V :	45 mn.

Lorsque la teneur de la solution de lavage en produits contaminés devient prohibitive (analyse laboratoire), elle est évacute pour traitement et une solution neuve est introduite dans le stockeur 14.

Le deuxième lavage est effectué par la soude N dans un étage de MD VI iden-Débit de ω O : 33 1/h Débit de 🛛 a : 3,3 1/h Temps de séjour dans MD VI : 45 mn. Le troisième lavage par l'acide nitrique 1 M est effectué dans la colonne C 6 La solution d'acide nitrique circule en circuit fermé par pompe doseuse à partir Débit de φ O : 33 1/h Débit de ø a : 3,3 1/h Vitesse de passage de la φ continue : 1,24.10⁻⁴ m/s. 4.1.5 - Installation de régénération du TBP venant du troisième cycle d'extraction. Le lavage intermédiaire du solvant par la soude a été éliminé étant donné le Le TBP usé, stocké dans 21, alimente en continu par une pompe doseuse le Débit de ω O : 2,7 1/h Débit de ω de lavage : 0,27 l/h Le lavage à l'acide nitrique se fait dans la colonne C 5 selon le même processus Débit de ω O : 2,7 1/h Débit de HNO₂ : 0,27 l/h Le TBP régénéré est stocké dans le stockeur 18 d'où il alimente en continu le 4.1.6 - Installation de régénération de D 2 EHPA Cette régénération s'effectue en discontinu par lavage au nitrate de lithium à pH Il est prévu trois opérations par jour traitant 207 l de D 2 EHPA. Le laveur de solvant contient le nitrate de lithium (200 l) nécessaire au lavage. Pendant l'opération le pH est maintenu à 3 par addition de soude, Après 1 heure d'agitation, la phase organique est décantée et transférée par Le nitrate de lithium est évacué périodiquement aux effluents lorsque le taux

tique au précédent. garnie d'anneaux Raschig, du stockeur 12. Celui-ci peut être vidangé lorsque l'acidité devient insuffisante, et l'acide remplacé à partir du stockeur 25. stade de décontamination avancé. MD IV à un étage où s'effectue le lavage au carbonate. Celui-ci circule en circuit fermé à partir du stockeur 20 par pompe doseuse. que précédemment. 3ème cycle d'extraction. contrôlé (pH 3) dans un lavage de solvant genre "COLVEN". gravité dans le stockeur de D 2 EHPA régénéré. d'impuretés devient excessif (contrôle laboratoire).

4.1.7 - Installations annexes

4.1.7.1 - Préparation de la solution de $Al(OH)_2 NO_3 5 M$

Cette solution est préparée par action de la trilaurylamine sur le nitrate d'aluminium.

Déroulement d'une opération

On introduit dans le récipient de préparation D 3 :

TLA : 434 1 $A1(NO_3)_3$: 125,67 kg Eau : 118 1

L'ensemble est agité jusqu'à dissolution complète du nitrate d'aluminium.

La TLA constituant la phase la plus dense est évacuée dans le réservoir intermédiaire St 38 puis la solution de Al OH)₂ NO_3 est transférée dans le réservoir d'alimentation de l'extraction St 10. La TLA se trouvant dans le réservoir St 38 est régénérée par lavage à la soude dans le récipient de préparation. Elle est ensuite stockée à nouveau dans le réservoir St 9 pour être réutilisée.

- La consommation du premier ensemble d'extraction nécessite l'exécution d'une opération tous les deux jours, soit 26 opérations pour une campagne annuelle.

La régénération de la TLA étant exothermique, un circuit de refroidissement est prévu dans le réservoir de préparation, capable d'évacuer 16200 kcal/h pour une durée de neutralisation de 1 heure.

4.1.8 - Préparation des solutions de nitrate de lithium

Le procédé nécessite l'emploi de solutions de nitrate de lithium à différentes concentrations et à divers pH, contenant ou non du complexant (DTPA).

Ces solutions sont préparées par opérations discontinues dans le réservoir St 26. Elles sont ensuite reprises par pompe pour être transférées dans le réservoir individuel correspondant.

4.1.9 - Installation d'épuration de l'air d'agitation des stockeurs actifs

L'air d'agitation des stockeurs est dévésiculé par passage à travers une colonne à plateaux.

Cette colonne reçoit à la partie supérieure un courant d'eau circulant en circuit fermé par pompe centrifuge à partir du stockeur St 39 de 1 m3.

A la sortie de la colonne, l'air est filtré à travers une batterie de filtres absolus avant rejet dans les circuits d'extraction.

Le nombre de plateaux de la colonne, nécessaires pour obtenir une décontamination satisfaisante, est estimé à 5 par analogie avec une installation semblable.

- L'eau de lavage de la colonne est évacuée aux effluents lorsque son degré de contamination est trop élevé.

76



LAVAGE DES EFFLUENTS GAZEUX

Schama: 2

77

Filtral

Effluants of

4.2 - CALCUL D'APPAREILLAGE

 $\sqrt[4]{4.2.1}$ – Calcul des colonnes d'extraction

La détermination de l'efficacité et des dimensions d'une colonne d'extraction liquide liquide ne peut être effectuée qu'en extrapolant des résultats d'essais à l'échelle pilote.

Différentes études ont été publiées (D1 D2) portant sur l'extraction en colonnes pulsées, de solution de nitrate d'Uranyle plus ou moins concentrées, par le TBP en solution à 25 % ou 40 % dans le dodécane ou d'autres solvants organiques.

De ces études, il ressort que les données les plus généralement préconisées

sont :

Ecartement entre plateaux perforés : 40 à 500 mm Diamètre des perforations: 3 mm Surface perforée : 23 % de la section Amplitude de pulsation 50 à 80 cycles/minute.

Le débit global des phases avant engorgement est de l'ordre de 1,9 à 3,6 l/h par cm² de section, selon les conditions opératoires : fréquence et amplitude de la pulsation, nature et rapport des débits de phases ; la hauteur équivalente à un étage théorique est de 30 à 40 cm dans les meilleures conditions.

Etant donné le manque de renseignements sur le comportement des solutions P.F concentrées et fortement actives en présence de TBP, et faute d'essais préalables, nous adopterons les valeurs préconisées dans le rapport d'activité d'Eurochimie (réf. D1).

Soit :

	Extraction	Lavage	Réextraction
Pulsation :			
Fréquence	60 c/mn	60 c/mn	60 c/mn
Amplitude	20 mm	20 mm	12 mm
Ecartement entre plateaux perforés	50 mm	50 mm	100 mm
Diamètre des perforations	3 mm	3 m.m	3 mm
Surface perforée	23 %	23 %	23 %
Débit maximal à l'engorgement	3,2 l/h/cm ²	3,2 l/h/cm ²	3,05 l/h/cm ²
Débit à 60 % de l'engorgement	1,92 l/h/cm ²	1,92 l/h/cm ²	1,83 l/h/cm ²

.....

4, 2, 1 - Colonne d'extraction C1

tion entre phases (D 3).

Débit de lavage : 1 V soit Débit de phase organique : 2,5 V Débit global des phases

On adoptera un diamètre de tube standard de 60 mm.

Hauteur de la colonne : On adoptera une hauteur de plateaux théorique de 50 cm. Nombre d'étages nécessaires : 3

Hauteur utile de la colonne : 1 m 50

La phase continue étant la phase organique, l'interface est ramené artificiellement à un niveau supérieur au sommet de la colonne par transport de l'émulsion par air-lift. Hauteur d'élévation : 2 m à 2 m.20. Débit maximal : deux fois le débit de l'émulsion correspondant aux transports

de la phase aqueuse, soit :

Diamètre du tube d'air lift Diamètre de la buse Submergeance Consommation d'air (données tirées de

Décanteurs

Le temps de décantation sera pris égal à 5 minutes, la position de l'interface sera fixée au milieu du décanteur supérieur, que la colonne fonctionne en phase aqueuse continue ou en phase organique continue, l'interface étant dans ce dernier cas ramené artificiellement en tête de colonne. Les décanteurs seront de forme orthocylindrique et en inox comme les colonnes.

Décanteur supérieur

78

Cette colonne travaille en phase organique continue, afin d'améliorer la sépara-

Débit d'alimentation en phase aqueuse : 1,5 V V est fixé arbitrairement à 10 l/h soit 15 l/h 10 l/h $25 \ 1/h$ 50 l/h Section de la colonne $\frac{50}{1.92} = 26 \text{ cm}^2$ <u>Diamètre</u> d = $\sqrt{26 \times \frac{4}{\pi}}$ = 57,5 mm

Air lift assurant le transport de l'émulsion.

```
2(25 + 25) = 100 1/h.
                  : 10 mm
```

e	d'inje	ection	:	1	mm
			:	60	%
			:	300	1/h .
la	réf.	D 1)			

Débit de phase dispersée : 25 l/h Volume utile $v = 2 \times \frac{25}{60} \times 5 = 4,17 \text{ dm}^3$ Diamètre et hauteur $d^{\dagger} = \sqrt[3]{\frac{4 v^{\dagger}}{\pi}} = 175 \text{ mm}$ Décanteur inférieur

Débit de la phase continue : 25 l/h Volume utile $v'' = \frac{25}{60} \ge 5 = 2,085 \text{ dm}^3$ Diamètre et hauteur $d'' = \sqrt[3]{\frac{4}{\pi}} 2,085 = 138,5 \text{ mm}$ 4.2.1.2 - Colonne de lavage C 2 Débit de phase aqueuse : 1 SV soit 10 1/h Débit de phase organique 25 l/h Fonctionnement en phase aqueuse continue Section de la colonne : $\frac{35}{1.92}$ = 16,25 cm² Diamètre de la colonne : 4,8 cm On adopte un diamètre de 50 mm correspondant à une taille standard de tube inox. Hauteur de la colonne Nombre d'étages théoriques nécessaires : 3 Hauteur équivalent à un étage théorique : 0 m Hauteur de la colonne x 0 m 50 = 1 m 50Décanteur supérieur Débit de la phase organique dispersée : 25 1/h Volume utile : $v' = 2 \times \frac{25}{60} \times 5 = 4,17 \text{ dm}^3$ Diamètre et hauteur d' = 175 mm Décanteur inférieur Débit de la phase aqueuse continue : 10 1/h Volume utile $v'' = 0,834 \text{ dm}^3$ Diamètre et hauteur $d^{11} = 120 \text{ mm}$ 4.2.1.3 – Colonne de réextraction C_3 Débit de phase organique 35 1/h Débit de phase aqueuse 7,5 l/h Débit global 42,5 1/h Section de la colonne $\frac{425}{1.83}$ = 23,2 cm² Diamètre de la colonne 5,45 cm Diamètre de tube Inox standard correspondant : 54 mm

Autres caractéristiques Amplitude de pulsation Fréquence 60 cycles minute. Décanteur supérieur Volume utile Décanteur inférieur Phase aqueuse continue : 7,5 l/hVolume utile Diamètre et hauteur Débit de phase organique : 2 l/h Débit de phase aqueuse : 7,5 1/h Débit global Diamètre de la colonne : d : 2,57 cm Hauteur de la colonne (2 étages théoriques) Hauteur de la colonne Décanteur supérieur Phase organique dispersée Volume utile

Décanteur inférieur

Identique à celui de C 3 (ϕ 92,6 mm)

```
Hauteur de la colonne (3° étages théoriques)
    Hauteur équivalente à un étage théorique : 70 cm
    Hauteur de la colonne 70 x 3 = 2 m 10
    Ecartement entre plateaux perforés : 100 mm
                                        : 12 mm
    Débit de la phase organique dispersée 35 1/h
                            v' = 5,84 \, dm^3
    Diamètre et hauteur d' = 195 mm
                             : 0,625 \, \mathrm{dm}^3
                             : 92,6 mm
    4.2.1.4 - Colonne de réextraction C 4
                              : 9,5 1/h
    Section de la colonne : \frac{95}{1,83} = 5,19 \text{ cm}^3
     Diamètre du tube Inox standard correspondant : 26 mm
     Hauteur équivalente à un étage théorique : 70 cm
                                               : 140 cm
Autres caractéristiques : identiques à celle de la colonne C 3
                                  : 2 1/h
                                   : 0,333 \, \mathrm{dm}^3
                                   : 75,2 mm
     Diamètre et hauteur
```

4.2.2 - Calcul des mélangeurs - Décanteurs

Dans un but de standardisation du matériel, on se limitera à 4 types différents de mélangeurs-décanteurs et deux modèles de turbines.

Ces mélangeurs décanteurs sont à boites imbriquées, avec turbines d'agitation type "Pump Mix" selon la terminologie américaine.

4,2,2,1 - Mode de calcul

Chambre de mélange

Le volume de la chambre de mélange est déterminé par le temps de contact moyen Tc entre phases nécessaire à la mise en équilibre.

Ce temps est estimé à 3 minutes dans le cas d'extraction par le TBP et à 5 minutes pour l'extraction en présence de DTPA.

Si $\rm D_{T}$ est le débit global des deux phases, et $\rm V_{M}$ le volume de la chambre de mélange, on a

$$V_{M} = D_{T} \times \frac{Tc}{60}$$

Pour un mélangeur de forme cubique, les dimensions seront :

$$L = L = M = \left(\frac{D_T \times T_c}{60}\right)^{1/3}$$

Chambre de décantation

Le volume de la chambre de décantation est calculé à partir du temps nécessaire à la décantation de la phase dispersée, celle-ci occupant la moitié du volume du compartiment.

Ce temps T_D est estimé à 5 minutes pour l'extraction au TBP et à 10 minutes pour l'extraction au D, EHPA.

Ce procédé permet de calculer les batteries pour lesquelles les temps de séjour sont impératifs du fait de la radiolyse et de la lenteur des réactions chimiques.

Pour d'autres batteries, les temps de séjour moyen varieront dans d'assez grandes proportions du fait des débits de phases différentes.

Voir tableau nº 3 et 4

Turbine d'agitation

La turbine d'agitation a pour rôle :

· d'effectuer le transfert des phases d'un compartiment à l'autre,

o d'assurer un mélange des deux phases pour que l'échange chimique puisse s'effectuer.

La formation de cette émulsion demande une certaine énergie correspondant à l'augmentation de surface interfaciale entre phases.

Cette énergie est caractéristique des phases en présence et de la finesse de l'émulsion. Nous adopterons comme énergie spécifique pour le TBP : 21 joules/litre et la même valeur pour le D₂ EHPA, faute de données exactes.

Rappel des formules de calcul (D_A)

H	hauteur d'élévation
Kh	constante de la turbine
Us	vitesse tangentielle externe
Ue	" " interne

Le débit est exprimé par :

2	diamètre extérieur de la t
	hauteur de la turbine
19	voir figure 13
40	vitesse de rotation
	angle caractéristique de la

D,

L

٧,

N В

La hauteur d'élévation de la turbine H s'évalue par rapport aux hauteurs de

phase dans les compartiments (voir fig. 13) :

$$(T - H) \rho_{m} = ($$

$$P = K_p D^4 L N$$

К _р	constante caractéristique
D	diamètre de la turbine
L	hauteur
N	vitesse de rotation

$$Es = \frac{6\sigma}{d}$$

σ	tension superficielle
М	rapport volumique : pha
D	diamètre moyen des vésic
	Pour une roue centrif

$$Es = Ke$$

ou

Ke constante caractéristique de la turbine.

82

La hauteur d'élevation d'une turbine est proportionnelle à (voir figure 13) : $H = Kh - \frac{Us^2 - Ue^2}{\sigma}$

 $Q = \pi D_{s} L (U_{s} - V_{us}) tg \beta$

turbine

la turbine

= $(T - H_0) \rho_0 = (T - H_A) I_A$

La puissance à fournir est proportionnelle à

de la turbine

L'énergie spécifique correspondant à la formation de l'émulsion est :

M

```
se dispersée
olume total
ules
```

nge

 $\frac{\text{Kp D}^5 \text{N}^3}{(\text{Q})}$

$$Es = \frac{K \acute{e} K p D^4 L N^3}{QA + Qo}$$

Le calcul complet d'une turbine de mélangeur décanteur n'est pas possible faute de connaître les divers coefficients Ke, Kp, Kh.

Aussi les dimensions des turbines utilisées seront calculées à partir d'une turbine expérimentale (réf. D3 et D4) utilisée dans les conditions suivantes :

> Solvant : TBP Energie spécifique : Es = 21 j/litre Diamètre de la turbine $D_1 = 85 \text{ mm}$ Hauteur de la turbine $L_{A}^{-} = 32 \text{ mm}$ Vitesse de rotation Nu = 720 t/mnDébit de phases 1000 l/h Volume de chambre de mélange : 20 litres Hauteur de chambre de mélange T : 270 mm Puissance : 6,5 W/1 Taux de recyclage interne : 4 Débit global de la turbine : 5000 1/h

4.2.2.1 - Mélangeur décanteur Type 1

Le calcul est fait de données relatives à la batterie MDIB du 1° cycle d'extraction au TBP.

Calcul du mélangeur

Données : Débit de contact entre phases : 3 minutes Débit de phase aqueuse = 1,65 V soit 16,5 l/h Débit de phase organique : 3,3 V soit 33 1/h Débit global : 49,5 1/h

Volume de la chambre de mélange :

$$49,5 \times \frac{3}{60} = 2,51$$

Forme adoptée : sensiblement cubique

Hauteur de l'émulsion : T = $(2,5)^{1/3}$ soit 13,6 cm Hauteur du couloir inférieur d'amenée de phase aqueuse : on adopte 10 mm. Taux de recyclage interne : 4

Débit global de la turbine : 250 l/h

Calcul de la turbine

L'extrapolation est effectuée à partir de la turbine décrite précédemment, en conservant une énergie spécifique constante.

On choisit une vitesse de rotation de 970 t/mn correspondant à une vitesse de rotation standard de moteur asynchrone.

La hauteur d'élévation H de la turbine est proportionnelle à U^2

U étant la vitesse tangentielle de la roue.

Diamètre de la turbine

On les paramètres

affecte de l'indice 1 le paramètre de la turbine de départ et de l'indice 2
de la turbine à calculer.
a :
$$\frac{H2}{H2} = \left(\frac{D2N2}{D1N1}\right)^2 = \frac{13,6}{27} = 0,504$$

 $\frac{D2N2}{D2N1} = 0,71$

avec

on en déduit

On

 $\frac{D2}{D1} = 0,526$

Hauteur de la turbine

Pour une énergie spécifique Es constante

Q étant le débit global de la turbine

D2 = 0,526 D1avec N2 = 1.35 N1 $\frac{L2}{1.1} \times (0,526)^4 \times (1,35)^3 = 0,0495$ d'où $\frac{L2}{L1} = 0,263$ $L2 = 32 \times 0,263 = 8,4 \text{ mm}$

La turbine comportera donc deux groupes de 4,2 mm.

Calcul de la chambre de décantation

On choisit un temps de décantation de 5 minutes.

Volume de la phase dispersée (phase organique)

$$33 \times \frac{5}{60} =$$

l'appareil - :

 $2,75 \times 2 = 5,5 1$

Pour des densités de phases voisines, on admet que la hauteur d'élévation H est proportionnelle à la hauteur d'émulsion dans le mélangeur.

 $\frac{N2}{N1} = \frac{970}{720} = 1,75$

 $D2 = 0,526 \times 85 = 44,8$ soit 45 mm

On adopte un diamètre intérieur d2 égal au 1/3 du diamètre externe soit 15 mm.

 $\frac{D2^4 L2 N2^3}{D_1^4 L_1 N_1^3} = \frac{Q2}{Q1} = 0,0495$

2,75 litres

Volume du décanteur - la phase dispersée occupant la moitié du volume de

Section longitudinale : le décanteur étant accolé au mélangeur,

$$13,6 \times 13,6 = 185 \text{ cm}^2$$

Longueur du décanteur

$$\frac{5500}{185}$$
 = 29,8 cm

4.2.2.3 - Mélangeur décanteur type II

Celui-ci est calculé à partir de données relatives à la batterie D-II-A du 2° cycle d'extraction.

Données de départ

Durée de contact entre phases	:	5 minutes
Durée de décantation	:	10 minutes
Débit de phase aqueuse	:	20 1/h
Débit de phase organique	:	20 1/h
Débit global des phases	:	40 l/h

Pour éviter la multiplication des modèles de turbines différentes, on conserve la même que pour le mélangeur décanteur type I. Ceci conduit à conserver la même hauteur d'émulsion de 13,6 cm.

Calcul du mélangeur

Volume de la chambre de mélange :

$$40 \times \frac{5}{60} = 3,33 \ 1$$

Dimensions de la chambre de décantation :

longueur = largeur =
$$\sqrt{\frac{3,33}{1,36}}$$
 = 15,7 cm

Taux de recyclage interne dans le mélangeur

$$\frac{250}{40} = 1 = 5,25$$

Calcul du décanteur

Volume de la phase dispersée

$$20 \times \frac{10}{60} = 3,331$$

Volume du décanteur : 6,66 1 Hauteur du décanteur : 13,6 cm Largeur du décanteur : 15,7 1 Longueur du décanteur :

$$\frac{666}{1,57 \times 1,36} = 31,2 \text{ cm}$$

Données de départ

Durée de décantation Débit de phase organique Débit de phase aqueuse Débit global de phase

Calcul du mélangeur

Volume 7,5 x
$$\frac{3}{60}$$

Pour une forme cubique :

Calcul du décanteur

Volume de la phase dispersée :

$$2,5 \times -\frac{3}{6}$$

$$\frac{416}{7,2 \times 7,2} =$$

Calcul de la turbine

 $7,5 \times 5 = 37,5 1/h$

méthode que précédemment.

Diamètre de la turbine

d'où

avec

d'où

On doit avoir

$$\frac{\text{H2}}{\text{H1}} = \frac{\text{D2}}{\text{D1}}$$
$$\frac{\text{D2 N2}}{\text{D1 N1}} =$$
$$\frac{\text{N2}}{\text{N1}} = 1,3$$

$$\frac{D2}{D1} = 0, 3$$

```
4.2.2.4 - Mélangeur décanteur type IV
Calcul effectué à partir des données relatives à la batterie MD-III-A
        Durée de contact dans le mélangeur : 3 minutes
                                           : 5 minutes
                                           : 2,5 1/h
                                           : 5 1/h
                                           : 7,5 1/h
                          - = 0,375
             hauteur d'émulsion : 7,2 cm
                         \frac{5}{60} = 0,2081
        Volume total : 0,416 litres
        Longueur de la chambre de décantation :
                           8,04 cm
        Débit global pour un taux de recyclage interne de 4
        On extrapole les dimensions à partir de la turbine de départ, selon la même
```

87

 $\frac{D2 N2}{D1 N1} = \frac{7,2}{27} = 0,267$

0,517

35

383

Diamètre extérieur $D2 = 8,5 \times 0,383 = 32,6 \text{ mm}$ Diamètre intérieur : $\frac{326}{3} = 10,8$ mm

= 7,5 10^{-3}

Hauteur de la turbine

$$\frac{D2^4 L2 N2^3}{D_1^4 L_1 N_1^3} = \frac{Q^2}{Q_1} = \frac{75}{1000}$$

avec

 $\frac{L2}{L1} = 0,42$

d'où

L2 = $0,142 \times 32 = 4,5 \text{ mm}$

soit un écartement entre flasques de 2,25 mm.

4.2.2.5 - Mélangeur décanteur type III

Le calcul est effectué à partir des données relatives à la batterie de mélangeur décanteur

AD-II-C du 2° cycle d'extraction

On conserve la même turbine que pour le Type IV donc une même hauteur d'émulsion de : 7,2 cm.

Débit	global de	la turbine	:	37,5	1/h
Débit	de phase	organique	:	5	1/h
Débit	de phase	aqueuse	:	4	1/h
Débit	global		:	9	1/h

Calcul du mélangeur :

Durée de contact entre phases : 5 minutes

Volume :
$$9 \times \frac{5}{60} = 0,750$$

Dimensions :

hauteur : 7,2 cm

longueur : largeur :
$$\sqrt{\frac{750}{7,2}} = 10,2$$
 cm

Taux de recyclage interne :

$$\frac{375}{9}$$
 - 1 = 3,15

Calcul du décanteur :

Durée de décantation : 10 minutes Volume de la phase dispersée :

$$5 \times \frac{10}{60} = 0,833 1$$

Volume de la chambre de décantation :

0,833 x 2 = 1,66 1

Longueur du décanteur :

$$\frac{1666}{10,2 \times 7,2} = 22,7 \text{ cm}$$

Tableau récapitulatif des mélangeurs décanteurs utilisés

Туре	I	II	Щ	IV
Turbine	I	II	 	II
Mélangeur Volume (l) L=l (cm) Hauteur (cm)	2,5 13,6 13,6	3,33 15,7 13,6	0,750 10,2 7,2	0,375 7,2 7,2
Décanteur Volume (1) Largeur (cm) Longueur (cm) Hauteur (cm)	5,5 13,6 29,8 13,6	6,66 15,7 31,2 13,6	1,666 10,2 22,7 7,2	0,416 7,2 8,04 7,2



2

· .

TABLEAU nº 3

Caractéristiques des turbines

, •

уре	I	II
(mm) (mm)	45 15	32,6 10,8
e entre (mm) (1/h) lsion (cm) tion	8,4 250 13,6 970 t/mn	4,5 37,5 7,2 970 t/mn
ales	4	4

TABLEAU Nº 4

Emploi des différents types de mélangeurs décanteurs

Groupe de batteries	IA	ΙB	II A	II B	пс	II D	ΠF	ΠB	III A	III B	III C	III D
Type de MD	III	I	II	I	III	II	II	IV	IV	IV	IV	IV
Nbre d'étages	10	9	7	4	7	10	5	2	5	4	2	3
Débit de 1/h phase aqueuse	16,5	16,5	20	3	4	4	3	3	5	0,3	0,2	0,2
Débit de phase organ. (1/h)	8	33	20	20	5	25	26	1	2,5	2,5	0,2	2,7
Durée de séjour dans le mélangeur (mn)	1,84	3	5	6,52	5	6,5	6,9	5,62	3	8,0	56,2	7,75
Taux de recyclage interne	9,2	4	5,2	9,9	26,8	7,6	7,6	8,4	4	12,4	61,5	12
Durée de séjour dans le décanteur (mn)	6,25	5	10	8,26	10	8	7,36	12,5	5	5	62,4	4,6



MELANGEUR DECANTEUR A ROUE CENTRIFUGE

SCHEMA DE PRINCIPE

ROUE A AILETTES ET TRIANGLES DES VITESSES



4,3 - APPAREILLAGE

4.3.1 - Stockeurs réfrigérés

Stockeur nº 1

Capacité utile : 12500 l Capacité totale : 18000 l Agitation par barbotage d'air. Surface d'échange : 80 m^2 entraînée lors du barbotage.

Stockeur nº 2

1,68 m².

Capacité utile 1 m³ Agitation par barbotage d'air. Température de stockage 25°

```
Sauf indication contraire, tout l'appareillage est en acier inoxydable.
             Rôle : stockage des produits de fission à traiter
             Refroidissement par serpentin avec circulationd'eau.
             Quantité de chaleur à éliminer : 590 000 kcal/h (55 W/l)
             Température de la solution stockée : 60°
             Débit d'eau de refroidissement : 59 m^3/h.
             Coefficient d'échange admis : de l'ordre de 210 K-cal/h/m<sup>2</sup>/°-c
             Le serpentin de refroidissement pourra être constitué par exemple de 4 tubes
en parallèle de longueur 92 mètres en tubes de 68,8/76,1 mm.
             Si la réalisation d'un tel stockeur réfrigéré présente des difficultés, un échangeur
externe pourra être envisagé bien que cette solution soit peu recommandable.
             Ce stockeur est muni d'un condenseur à reflux, pour piégeage de la vapeur d'eau
             Surface d'échange minimale : 0,57 \text{ m}^2
             Débit d'air d'agitation : 232 m<sup>3</sup>/h soit 24 m<sup>3</sup>/h/m<sup>2</sup> de surface agitée
                                         correspondant à une agitation totale.
             Débit d'eau de refroidissement : 380 1/h
             Perte d'eau correspondant à la saturation de l'air à 30° : 7,32 kg/heure.
             Ce condenseur pourra être identique à celui équipant le stockeur n° 7, de surface
             Rôle : réservoir tampon entre le premier et le deuxième cycle d'extraction.
             Refroidissement par serpentin avec circulation d'eau froide.
             Quantité de chaleur à éliminer 425 K cal/h (0,63 W/l)
             Débit d'eau de refroidissement : 425 l/h
             Température de l'eau de refroidissement : entrée 20°
                                                          sortie 21°
             Surface d'échange 0,47 m<sup>2</sup> (K = 200 Kcal/h/m<sup>2</sup>/C).
```

94

Stockeur nº 4 Rôle : stockage de la solution nitrique de lanthanides lourds provenant du dernier cycle d'extraction. Capacité utile : $5 M^3$ Stockeur nº 3 Agitation possible par barbottage d'air. Refroidissement par circulation d'eau dans un serpentin : Quantité de chaleur à éliminer : 2150 Kcal/h (0, 66 W/l)Volume total : 14 m³ Surface d'échange : 0,8 m² (K : 200 kcal/h/m²/°c) Volume de solution : 9400 l Débit d'eau de refroidissement : $0,43 \text{ m}^3/\text{h}$ Température de stockage : 35° Température de l'eau de refroidissement : entrée 20° sortie 25° de : 46°. Stockeur n° 5 Réservoir AIA et AIB Rôle : stockage identique au nº 2. Volume : 500 l Stockeur n° 6 Rôle : stockage de la solution finale d'américium Volume total : 500 1 Agitation possible par barbottage d'air. Surface d'échange $2 m^2$ Refroidissement par serpentin : Quantité de chaleur à évacuer : 8960 Kcal/h (41,5 W/l) Débit d'eau de refroidissement $1,79 \text{ m}^3/\text{h}$ Réservoir AllA, AllB, AllA, AllB Température d'eau de refroidissement : entrée 20° Identiques au réservoir AIA. sortie 25° Température de stockage : 35° Surface d'échange : $3,27 \text{ m}^2$ (K : $210 \text{ Kcal/h/m}^2/^{\circ}$ c) Stockeur nº 15 Stockeur nº 7 Volume utile : 1000 l. Rôle : stockage des produits de fission traités. Volume : 90 m^3 fonctionnement de l'extraction. Agitation par barbottage d'air. Débit : $685 \text{ m}^3/\text{h}$ Refroidissement par serpentin : Quantité de chaleur à évacuer : 224 000 Kcal/h Stockage nº 17 Débit d'eau de refroidissement : $224 \text{ m}^3/\text{h}$. Température de l'eau : entrée 20° sortie 25° Volume : 10001. Température de stockage : 50° Surface d'échange : 42,5 m² Condenseur de reflux : Température du condensat : 30° Température de l'eau de refroidissement : 20/25° Température de stockage

```
Surface d'échange : 1,68 m<sup>2</sup>
             Débit de l'eau de refroidissement : 1, 12 \text{ m}^3/\text{h}
             Perte d'eau correspondant à la saturation de l'air à 30° : 21,6 kg/h
             Rôle : Stockage de la solution de Lanthanides provenant de la 1° extraction
             Quantité de chaleur à éliminer : 348000 Kcal/h
             On adoptera un ensemble stockeur-condenseur de reflux identique au stockeur n° 1.
             Pour un même débit d'eau de refroidissement, la température de la solution est
             Rôle : Récipient d'ajustage de la solution de PF
             Agitation par barbotage d'air.
             Température de stockage de la solution : 35°
             Refroidissement par serpentin.
             Débit d'eau de refroidissement 2,27 m<sup>3</sup>h.
                     K = 200 \text{ Kcal/h/m}^2/\text{w}
             Rôle : Stockage du TBP régénéré du 1° cycle d'extraction.
             Circuit de refroidissement prévu pour éliminer 9400 Kcal/h, en cas de mauvais
             Débit d'eau de refroidissement : 1,88 m<sup>3</sup>/h
             Température maximale de stockage : 35°
             Surface d'échange : 3,57 \text{ m}^2
             Rôle : stockage du D2 EHPA à régénérer.
             Le circuit de refroidissement est prévu pour éléminer la chaleur dégagée par
les lanthanides, en cas de non fonctionnement de la réextraction.
             Quantité de chaleur à éliminer : 210 Kcal/h
             Débit d'eau de refroidissement : 210 l/h
                                             : 30°
             Surface d'échange : 0,11 \text{ m}^2 (K : 20 Kcal/h/m<sup>2</sup>/°c)
```

Stockeur nº 21 Chambre de mélange Durée de contact entre phase Rôle : stockage du TBP à régénérer provenant du troisième cycle d'extraction. Débit global Volume : 3001. Volume Le circuit de refroidissement est prévu pour éliminer la chaleur dégagée en cas Dimension (forme cubique) de non fonctionnement de la réextraction. Quantité de chaleur à éliminer : 565 Kcal/h Chambre de décantation Température de stockage : 30° Durée de décantation Débit d'eau de refroidissement : 565 1/ Volume Température de l'eau de refroidissement : entrée 20° Dimensions : largeur 9,1 cm sortie 21° Surface d'échange : $0,83 \text{ m}^2$ 4.3.2 - Appareillage divers Colonne C 5 Mélangeurs décanteurs MDV et MDVI Rôle : lavage du solvant du 1° cycle de réextraction, comporte un seul étage : Laveur de solvant LS Chambre de mélange : temps de séjour : 15 minutes volume 9,625 1 Forme cubique : L = 1 = h = 21,25 cm Agitation par turbine. Chambre de décantation : Durée de décantation : 30 minutes Volume 35 litres Dimensions : largeur 21,25 cm hauteur 21,25 cm Dissolveur D3 longueur 77,5 cm tion. Colonne de lavage C 6

Rôle : lavage à l'acide nitrique du solvant régénéré Colonne de verre (éléments EIVS) Diamètre 10 cm Hauteur 1 mètre Garniture en anneaux Raschig 10 x 10 x 1,6 mm Vitesse de passage de la phase continue : $1,24 \ 10^{-4}$ m/s. Vitesse d'engorgement correspondante : 2,5 10^{-4} m/s (calcul d'après la formule de DELL et PRATT, réf. C 1 - 2).

Mélangeur décanteur MDIV

Rôle : lavage du TBP de 3° cycle d'extraction par le carbonate de soude. Comporte un seul étage.

Température de la solution : 35° Surface d'échange : $6,1 \text{ m}^2$.

: 15 minutes : 3 1/h : 0,75 1 : 9,1 cm de côté : 30 minutes : 2,71 hauteur 9,1 cm longueur 32,6 cm Role : lavage à l'acide nitrique du solvant régénéré constitué d'une colonne en verre identique à la colonne C6. Rôle : Assure le lavage en discontinu du D2 EHPA à régénérer par le Nitrate de Lithium à pH3. Laveur de solvant du type Colven. Volume total : 600 1 Volume de phase aqueuse : 2001 Volume de phase organique : 2071 Dimensions : diamètre 360 mm hauteur totale 1030 mm hauteur de la turbine de mélange par rapport au fond : 340 mm. Rôle : préparation de la solution d'ajustage nécessaire au premier cycle d'extrac-Réservoir muni d'un agitateur à hélice Volume total 100 1. Comporte à la partie inférieure un voyant en verre Pyrex permettant de situer l'interface lors de la vidange. Refroidissement par serpentin avec circulation d'eau froide. Quantité de chaleur à évacuer de la régénération de la TLA 16200 Kl/h Débit d'eau de refroidissement : $3,24 \text{ m}^3/\text{h}$

Température de l'eau de refroidissement : entrée 20° sortie 25°

Rôle : séparer les insolubles de la solution de produit de fission à traiter. Matériau : enveloppe extérieure en acier Inox . Bougie filtrante en Alumine frittée.

Faute de données sur la filtration des solutions concentrées de produits de fission on adoptera une bougie filtrante de : hauteur 600 mm diamètre 80 mm,

soit une surface filtrante de 1510 cm^2 pour un débit de 10 l/h.

Colonne C7 - Schéma 2

Rôle : dévésiculage de l'air provenant de l'agitation des stockeurs actifs. Colonne à plateaux du type à cloches. Nombre de plateaux 5 Vitesse de passage de l'air à épurer : 0,7 m/s Débit d'air total : $1150 \text{ m}^3/\text{h}$ Diamètre de la colonne : 0,765 m Ecartement entre plateaux : 0,5 m Hauteur totale : 3 m.

6.1 - GENERALITES

Les facteurs économiques dépendent principalement de la disponibilité et du coût des isotopes de l'américium, ces facteurs peuvent évoluer considérablement en fonction du développement de l'énergie nucléaire. La production d'américium 241, grâce au procédé envisagé, est prévue pour 2,6 kg/an, et une évaluation, basée sur une production de 1 kg/an vers 1972, conclut à un prix variant entre 2000 et 7000 F le gramme (E - 1).

qué (2000 F/g).

6.2 - DETERMINATION DU COUT TOTAL DE L'ATELIER

Une méthode pratique, couramment utilisée dans les évaluations d'avant-projets d'usines chimiques est celle de LANG. Elle consiste à admettre que l'on peut obtenir une bonne moyenne statistique du coût total d'une usine en multipliant le coût du "matériel significatif" de l'atelier de production chimique dont les caractéristiques entraînent celles du reste de l'équipement par un coefficient appelé facteur de LANG (E2).

$C = E \times L$

où	С	=	coût total de l'usine
	Е	=	prix d'achat de mate
	L	=	facteur de LANG.

6.2.1 - Détermination de L

L est constant quand la taille de l'usine augmente mais il dépend de la nature physique des produits véhiculés. L = 4,74 lorsque les produits véhiculés sont des fluides (E - 2).

6 - ASPECTS ECONOMIQUES

Le procédé exposé permet sans nul doute une récupération plus aisée de l'américium, ce qui abaisse le prix de revient pour l'amener très en dessous du minimum indi-

ériel significatif

6.2.2 - Détermination de E

Le matériel concerné par l'appellation "matériel significatif" est le gros matériel, c'est-à-dire :

- les batteries de mélangeur-décanteurs,
- les cuves de stockages et de préparation des solutions non actives,
- les pompes centrifuges et les pompes doseuses,
- les cuves de stockage des solutions actives,
- les filtres,
- les colonnes pulsées,
- les colonnes à remplissage.

(Pour le calcul des prix du gros matériel, voir Annexe III - 1).

Matériel	Prix total en Fr.
Batteries de mélangeur-décanteurs	516 150
Cuves de stockage et de préparation des solutions	
non actives	208 100
Pompes centrifuges et pompes doseuses	145 000
Cuves de stockage des solutions actives	84 300
Filtres	80 000
Colonnes pulsées	40 000
Colonnes à remplissage	1 500
Coût total du "matériel significatif"	1 075 050

6.2.3 - Coût global de l'atelier

En applicant la formule de LANG, on trouve

1 075 000 x 4,74 = 5 100 000 Francs

6.3 - FRAIS D'EXPLOITATION

Ils comprennent les dépenses de matières premières d'utilités, de personnel de fabrication, d'entretien courant.

Matières premières

Elles représentent une partie importante du coût des frais d'exploitation. Le calcul de la consommation des matières premières pour une campagne annuelle est porté en Annexe III-2.

Matières	Importance du marché en T/an	Fournisseurs	Emballage	Transport	Prix en F. unité T	Total en Fr.	т.т.с.
A1(NO ₃) ₃	4,46	Rhône-Poulenc	Fûts perdus	Route	3 170	14 100	non
LiNO ₃	12,6	Rhône-Poulenc	Fûts perdus	Route	12 670	160 000	non
hno ₃	5,15	Kuhimann	Citerne	Fer Route	210, 35	1100	non
Dodécane	1,24	Progil	Fûts 225 l perdus	Route	2 230	2760	non
TBP	1,75	SPCS	Fûts perdus	Route	7 250	12 700	oui
NaOH	1,7	Solvay	Citerne	Fer	345	586	non
Na ₂ CO ₃	0,11	Solvay	Sacs	Fer	188, 2	20	non
DTPA	6620 1	Ces corps ne sont pas encore commercialisés à une échelle industrielle					
D ₂ EHPA	0,25						
T.L.A.	1,2	Rhône-Poulenc	Fûts perdus	Route	80 000	100 000	oui

N.B. : La consommation en T.LA. est négligeable, on la considérera comme négligeable au cours d'une campagne. Coût global des matières premières consommées par campagne : 250 000 francs.

Le D₂ EHPA et le D.T.P.A. n'étant pas commercialisés, leur prix a été évalué comme étant de l'ordre de 50000 francs

6.3.2 - Les utilités

Elles comprennent la vapeur, l'électricité, l'air comprimé, la réfrigération, l'eau de procédé. Si l'atelier est construit, comme il est prévu, en annexe de l'ensemble UPII de l'usine de traitement de combustible irradié de la Hague, leurs prix seront négligeables devant les autres composants du prix de revient.

6.3.3 - L'entretien

(E-1). Soit: 100 000 francs.

100

L'effort portant sur l'entretien doit se déterminer en fonction des incidents possibles. On peut évaluer les frais annuels aux environs de 10 % du prix du gros matériel

6.3.4 – La main d'oeuvre	Le taux d'amortissement à 16,66 % de la valeur de l'investisse
Personnel à la journée	I comprend :
- un ingénieur	
- un agent technique	- l'investissement proprement dit,
- un ouvrier spécialisé.	- l'intérêt de 6 % dû à l'immobilisation
	- le capital l' necessaire a la premi
Personnel en equipe	$I = 5 \ 100 \ 000 \ + \ 30 \ 600 \ +$
4 équipes en 3 x 8	
Maltrise : 1 agent technique	6.4.2 – Charges financières
Destes a préparation des répetifs : 1 ouvrier spécialisé	Les charges financières c
régénération des solvants : 2 ouvriers spécialisés	annuellement une fraction i du montar
extractions 3 ouvriers specialisés	i est le taux de location
laboratoire : 2 agents techniques	6% (E3).
	6.4.3 – Prix de revient de l'amér
Traitements moyens	
Ingénieur : 2500 fr/mois	Si x est le taux d'amorti
Agent technique : 6,5 fr/heure	x = 16,
Ouvrier spécialisé : 4,5 fr/heure (E-1)	Voyons ce que revient le
Total des traitements pour une campagne (deux mois)	lère année : ca
1 I 2500 x 2 = 5000 fr	2ème année :
13 AT 1200 x 2 x 12 = 31 200 fr	3ème année :
25 O.S. 800 x 2 x 25 = 40 000 fr	4ème année :
Total = 76200 fr	5ème année :
	6ème année :
Charges sociales	Les charges financières p
Leur importance est estimée à 50 % du salaire versé, soit : 38 100 fr.	i.I(1-(n
Frais du personnel par campagne : 114 300 fr.	On peut calculer le prix c
	$1 \leqslant n \leqslant 6$
6.3.5 – Total des frais d'exploitation par campagne	I.x + i I [1 - (n-
matières premières : 250 000	Pn =Q
entretien : 100 000	
maind'oeuvre : 114 300	F = frais d'exploitation p
total : 464 300 fr.	Q = quantité d'Am produi
	C'est donc à un prix de r
6.4 - AMORTISSEMENTS ET CHARGES DU CAPITAL	qu'aboutit cette rapide évaluation.

6.4.1 - Amortissement

Dans un travail d'estimation, il paraît raisonnable de fixer un amortissement . sur six ans.

102

sera invariable d'une année sur l'autre ; il sera fixé ement I. de ce capital durant un an (durée de la construction) ière exploitation $500\ 000 = 5\ 906\ 000\ fr$. correspondant à un investissement donné représentent nt de cet investissement.

du capital emprunté, on peut le considérer égal à

ricium

issement, chaque année l'amortissement sera I. x

66 %

capital à amortir au cours des années.

:	capital	à amortir	I
:	It	tt	I (1 - x)
:	11	11	I (1 - 2x)
:	11	ti	I (1 - 3x)
:	11	11	I (1 - 4x)
:			I (1 - 5x)

our la nième année seront :

-1)x

de revient de 1 g d'américium au cours de l'année n

-1)x]+F

our une campagne

ite en g au cours de la nième année.

revient moyen de 560 francs le gramme d'américium .

Cette valeur est le quart de celle minimale envisagée pour 1972 dans la réf. (E 1) ; mais dans ce dernier cas, il s'agit d'une production de 1 kg/an d'an d'américium 241 à partir du stockage de plutonium.

Année	Amortissement I.x en 10 ³ Fr	Charges financières en 10 ³ Fr	Frais d'exploitation en 10 ³ Fr	Q en g	P _n
1ère	985	354	500	3.10 ³	612 Fr
2ème	985	295	500	3.10 ³	594 Fr
3ème	985	236	500	3,10 ³	574 Fr
4ème	985	177	500	3,10 ³	554 Fr
5ème	985	118	500	3,10 ³	534 Fr
6ème	985	59	500	3.10 ³	515 Fr

Deux éléments importants peuvent ajouter de l'intérêt à cette voie économique de récupération, ce sont :

- la possibilité d'isoler le curium 242 au cours d'un traitement de la solution de produits de fission au fur et à mesure de sa préparation,

- l'utilisation de certains lanthanides comme le cérium et le prométheum que le procédé permet de séparer des lanthanides supérieurs.

5.1 - PROTECTION CONTRE LES RAYONNEMENTS

dispositif de protection dans le but :

- d'empêcher la contamination radioactive
- nécessaires.

L'exposition maximum admissible pour un personnel travaillant 8 h par jour et 40 h par semaine en zone de travail normal est fixée légalement à :

Le traitement de la solution de produits de fission dont l'activité est de 24000 curies par litre nécessite l'implantation de l'atelier proprement dit dans des cellules isolées dont les parois seront en béton.

5.1.1 - Evaluation de l'exposition

L'activité globale de la solution initiale est de 24 000 ci/litre dont 30 % environ est fournie par des rayonnements γ . C'est cette activité γ qui servira de base au calcul de la protection, puisque les rayonnements α et β sont très peu pénétrants. Une relation approchée donne l'exposition intégrée sur 8 h, à un mètre de distance pour une source de C curies ponctuelle

E énergie en Mev du rayonnement.

l'exposition est alors :

5 - IMPLANTATION

L'existence d'effets biologiques des rayonnements impose la mise on place d'un

- de limiter à des doses légales l'irradiation externe à laquelle est soumis le personnel

- de prévenir toute irradiation accidentelle en mettant en place les moyens de sécurité

20 milli-roentgen par jour

R_{8h à Im} = 4,4 E C

Si on assimile 25 litres de solution (ce qui correspond à 1 tonne de combustible) à une source ponctuelle et si on prend comme énergie moyenne des γ la valeur de 1 mev,

```
C = 30/100 \times 25 \times 24\ 000\ ci
E_{\gamma} = 1 \text{ Mev}
R<sub>8h à 1m</sub> = 182 000 roentgens
```

5.1.2 - Evaluation des écrans

à :

Nous ne traiterons pas de la protection à placer autour des cuves de stockage de produits de fission (st. n° 1 et 7) qui pourront être jointes aux autres stockeurs de l'usine déjà en place.

L'atelier comprend 2 cuves de 240 litres chacune servant à l'ajustage de la solution initiale. Compte tenu des dilutions opérées au cours du traitement, le reste des opérations est effectué avec une activité moindre,

Le niveau moyen d'activité sur l'ensemble de la cellule sera assimilé à celui de l'ensemble des 2 stockeurs mentionnés.

L'activité moyenne ainsi définie s'élève à :

 $C = 30/100 \times 600 \times 24 000 ci.$

(le volume est majoré de 20 % environ pour tenir compte des appareillages annexes autour des stockeurs).

L'exposition à une distance de 5 mètres de la source s'élève dans ces conditions

$$D_{8 h} = 7,62 \ 10^5 \ roentgens$$

Epaisseur de béton

béton ordinaire	béton baryté
d = 2,3	d = 3,6
épaisseur dixième	épaisseur dixième
e ₁₀ = 17 cm	$e_{10} = 11 \text{ cm}$

nombre d'épaisseurs dixièmes nécessaires : 8,34

Epaisseur totale	Epaisseur totale
L = 140 cm	L = 92 cm

Le béton baryté présente une meilleure efficacité pour l'absorption des neutrons et des γ mais son emploi ne s'avère pas indispensable, l'épaisseur de béton ordinaire n'étant nullement prohibitive.

Les solutions de produits de fission contiennent après traitement du lithium (environ trois molarités) ; la présence au sein des solutions de fortes activités α provoque des réactions (α , n) sur le lithium :

$$\frac{7}{3}$$
Li (α , n) $\frac{10}{5}$ B

Dans le cas où le débit de fluence de neutrons dépasserait malgré l'épaisseur de béton, la valeur de 670 n cm $^{-2}$ s $^{-1}$ qui correspond à la dose légale de 20 mrem/jour, la mise en place d'un écran de polyéthylène serait nécessaire.

Les protections seront donc :

- en béton de densité 2,3 dans le cas général,

- en briques de forte densité pour les portes d'accès aux cellules actives,

- en plomb pour les appareils de faible dimension,

(agitateur).

5.1.3 - Ventilation

Elle sera assurée dans tous les locaux :

b

ν

Zone non active

Zone semi active Zone active

Toutes les zones actives seront mises en dépression. Des filtres à efficacité partielle et télédémontables seront placés à la sortie de chaque cellule afin de réduite l'activité de l'air renvoyé vers le circuit général de ventilation.

5.2 - CRITICITE

La concentration maximale de la solution d'actinides et les sections efficaces de fission des isotopes sont reportées dans le tableau suivant :

0,004

 241 Am 243Am 242 Cm 243 Cm 244 Cm

aqueuse inférieurs à 1. dimensions de l'appareillage.

5.3 - PRINCIPES D'IMPLANTATION

d'annexes.

5.3.1 - L'atelier d'extraction

Il comprend les colonnes d'extraction, les mélangeurs décanteurs et l'appareil-

107

- en fonte pour les protections démontables ou nécessitant le passage d'un arbre moteur

	Pression (par rapport à P _{atm})	Renouvellement (par heure)
ureaux	+2 mm colonne d'eau	10 à 20
estiaire	-5 mm c.e.	6 à 10
	- 12 mm c.e.	4 à 8
	- 15 mm c.e.	6 à 15

Concentration 12 g/l 3 0,2 0 0 0,334 0,0048 590

Ces concentrations conduisent à des coefficients de multiplication en phase Le risque de criticité est donc écarté et n'interviendra pas dans le calcul des

0

L'ensemble des installations se subdivisera en quatre ateliers principaux et un

lage annexe : cuves d'ajustage, air-lift, filtres, etc ... Il sera classé en zone 4 et son accès sera normalement interdit.

5.3.2 - L'atelier de régénération des solvants

Il comprend les trois installations de régénération et leurs stockeurs correspondants.

Cet atelier sera classé en zone 3 ou 4 selon l'intensité des radiations.

Des protections locales peuvent être prévues à proximité des stockeurs les plus actifs pour permettre l'accès temporaire du personnel. L'exposition devra être limitée à 12,5 mrem/h dans la zone d'intervention.

5.3.3 - L'atelier de préparation des réactifs

Classé en zone 2, il comprend les réservoirs de lithium, l'installation de préparation de la solution d'aluminium, les réservoirs des solvants non actifs et les pompes doseuses d'alimentation de l'extraction.

5.3.4 - Annexes

- Une salle de contrôle dans laquelle sont centralisées : les télémesures de débits, températures, pH, relevées en zone active, et les télécommandes diverses.
- Un laboratoire de contrôle (analyses)
- Bureaux
- Vestiaires
- Atelier d'entretien.

L'implantation de cet ensemble sera fonction de la disposition générale de l'usine de traitement de combustibles irradiés. Les stockeurs St 1, 3 et 7 seront regroupés avec les stockeurs de produits de fission provenant des autres ateliers.

Puisqu'il est prévu une durée de fonctionnement annuel de 52 jours et que l'importance de l'atelier est relativement faible, il sera peut-être possible d'intégrer les locaux communs (vestiaires, sas d'entrée) et l'atelier d'entretien à ceux de l'usine.

7 - CONCLUSION

Cet avant-projet a permis de définir les grandes lignes d'une installation de récupération d'américium dans les solutions de produits de fission, basée sur un procédé d'extraction en milieu nitrique n'offrant pas les inconvénients du milieu chlorure. Ce procédé, s'éloignant des solutions jusqu'alors retenues, appelle un certain nombre de réserves concernant l'extraction par solvant en milieu très actif (24000 Cie/l)

et très chargé en sels minéraux. De ce fait des essais à l'échelle pilote devront être effectués avant la mise sur pied du projet définitif.

Les conditions opératoires pourront être uniformisées sur l'ensemble des trois cycles d'extraction lorsque les études analytiques, actuellement en cours, seront terminées. Cela permettra la réduction du nombre des solutions d'extraction et de réextraction, Les essais porteront sur l'efficacité des séparations et décontaminations au cours d'une exploitation continue et plus particulièrement sur :

- le pourcentage de dégradation des solvants et l'influence des produits de leur radiolyse, - la formation de boues aux interfaces des mélangeurs décanteurs ; cette accumulation d'impuretés a été constatée dans tous les procédés d'extraction de solutions actives. - l'influence des variations de force ionique dues aux fortes salinités des solutions.

Ils permettront de définir :

- l'activité maximale admissible pour les solvants, donc la durée minimale de stockage de la solution de produits de fission avant traitement, - le facteur de concentration optimal de cette solution (possibilité d'une dilution éventuelle avant extraction),

- le mode de retraitement des solvants le plus approprié avant leur réutilisation.

Le marché des Actinides demeure à l'heure actuelle très mal défini, ce qui ne permet pas une juste comparaison des prix de revient des divers procédés,

Cependant, on peut attendre, au vu du formidable développement des applications spatiales et de la nécessité de mise au point de générateurs de puissance autonome la décision, dans un proche avenir, de récupérer de façon systématique l'américium et le curium dans les solutions de produits de fission provenant du traitement des combustibles irradiés.

108

Manuscrit reçu le 13 Janvier 1969

L'irradiation neutronique conduit à la formation de chaînes de réactions d'absorption de neutrons et de désintégrations et fissions de noyaux. Ces enchaînements sont représentés sur la fig. I-1 (d'après A1) à partir de l'uranium naturel, combustible utilisé dans le réacteur E.D.F. 3 pour lequel le taux de combustion doit être porté à 4000 MWJ/T. Dans un réacteur à neutrons thermiques et à uranium naturel, les captures radiatives de neutrons conduisent à la formation de plutonium en quantité notable ; sa composition isotopique varie durant l'irradiation.

Leurs applications s'avèrent nombreuses notamment pour les générateurs autonomes de puissance.

Le calcul de la production des actinides nécessite la résolution d'un système d'équations différentielles linéaires du premier ordre ; (N équations pour N isotopes, autant que de maillons dans les chaînes radioactives). Sa résolution se prête bien à l'emploi d'un calculateur analogique qui présente en outre l'avantage de donner l'évolution des isotopes disponibles en fonction du temps d'irradiation.

1 - MISE EN EQUATION

Le nombre de maillons peut être réduit : en effet, la formation des isotopes dont la période de décroissance est très brève vis à vis du temps d'irradiation atteint très rapidement un état d'équilibre où le nombre d'atomes formés (valeur a saturation) est égal au nombre d'atomes qui se désintègre. C'est le cas, par exemple, des isotopes uranium 239, neptunium 239, neptunium 240, etc.

ANNEXE I

PRODUCTION DES TRANSURANIENS PAR IRRADIATION

NEUTRONIQUE DE L'URANIUM NATUREL à 4000 MWJ/T

L'irradiation des isotopes ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu, ²⁴¹Pu, ²⁴²Pu, ²⁴³Pu conduit à la formation des isotopes du curium et de l'américium (par réactions (n, γ) et décroissances radioactives β). Les principaux isotopes disponibles à la fin du refroidissement sont :

 ^{241}Am , ^{243}Am , ^{242}Cm , ^{244}Cm .

1.1 - La formation de ²³⁹Pu par la chaîne

235
U (n, γ) 236 U (n, γ) 237 U (β) 237 Np (n, γ) 238 Np (β) 238 Pu 238 Pu (n, γ) 239 Pu

est négligeable devant celle due à la chaîne :

238
U (n, γ) 239 U (β) 239 Np (β) 239 Pu

D'ailleurs dans une pile graphite-gaz, il ne se forme pour une irradiation de 4000 MWJ/T que 0,03 % en atomes de ²³⁸Pu vis-à-vis de Pu total.

1.2 - La formation du plutonium 240 à partir du neptunium 240 s'avère négligeable ; en effet le rapport du nombre d'atomes de ²⁴⁰Np, issu par réaction (n, γ) de ²³⁹Np, à celui de ²³⁹Pu, provenant de la désintégration β de l'isotope ²³⁹Np, est :

$$\frac{\sigma c 29}{\lambda 29} = 0,83 10^{-6}$$

1.3 - En raison de sa longue période et de la faible section efficace commandant sa formation, nous négligerons 242 m (isotope métastable) devant celle de 242 Am.

Il existe de très nombreuses tables de sections efficaces pour les neutrons thermiques

Trilinear Chart of Nucleides (SULLIVAN) Neutron cross sections : ORNL - LR - DWG 55564 A? ANL 6750 BNL 325

Nous avons effectué les calculs avec, pour les premières chaînes, les valeurs des sections efficaces indiquées dans la référence (A 1) et pour les isotopes du plutonium, de l'américium et du curium celles du rapport ANL 6750 qui semblent plus homogènes.

N.B. : les isotopes sont notés ainsi :

 N_{25} c.à d. $\frac{235}{92}$ U

2 - dernier chiffre du N° atomique,

5 = dernier chiffre de la masse atomique.

Exemple de calcul :

 $\frac{dN_{25}}{dt} = -(\sigma_{c}^{25} + \sigma_{f}^{25}) N_{25}$

 $N_{25}^{\circ} = 0,184 \ 10^{25}$ (nombre d'atomes initial dans 100 kg d'uranium naturel).

L'adaptation de cette équation au calculateur analogique NADAC (sur lequel nous avons pu travailler à l'INSTN) nécessite un changement de variable :

- poi

pour le temps d'irradiation 10 j
$$\iff$$
 I s
soit $dt_{machine} = \frac{dtréel}{8,64 \cdot 10^5}$

- pour le nombre de noyaux des isotopes considérés.



$$V.1 = 0,0184$$

239
Pu: $\frac{dN_{49}}{dt} = N_{28}^0 \sigma_c^2$

le premier terme représente les captures thermiques sur ²³⁸U; le deuxième le nombre de neutrons rapides issus des fissions de ²³⁵U et ²³⁹Pu et absorbés dans les "trappes" de ²³⁸U durant leur ralentissement ; le troisième l'absorption thermique dans ²³⁹Pu formé

$$\begin{bmatrix} d \frac{N_{25}}{10^{24}} \\ \frac{1}{dt} \end{bmatrix} = \frac{dN_{29}}{dt} = \sigma_{c28} \Phi N_{28}$$

$$N_{29} = 1,92 \ 10^{19}$$

$$^{240}U : \frac{dN_{20}}{dt} = \sigma_{c29} \Phi N_{29}$$

$$N_{20} = 4,15 \ 10^{14}$$

Après adaptation, l'équation devient :

Des calculs analogues mènent aux autres équations ;

 ${}^{28}_{25} \Phi + \nu_{25} N_{25} \sigma_{f25} \Phi \epsilon (1-p) f$ + $\nu_{49} N_{49} \sigma_{f49} \Phi \epsilon$ (1-p) f - $(\sigma_{c} + \sigma_{f})_{49} \Phi N_{49}$

 $0,008 + 0,155 \frac{N_{25}}{10^{26}} = 0,0108 \frac{N_{49}}{10^{24}}$

 $- (\sigma_{c} + \sigma_{f})_{29} \Phi N_{29} - \lambda_{29} N_{29} = 0$

 $-\lambda_{20} N_{20} = 0$

$${}^{239}Np : \frac{dN_{39}}{dt} = \lambda_{29}N_{29} - (\sigma_{c29} \Phi + \lambda_{39})N_{39}$$
$$N_{39} = 2,735 \ 10^{21}$$

$${}^{240}Np : \frac{dN_{30}}{dt} = \sigma_{c39} \Phi N_{39} - \lambda_{30} N_{30} = 0$$
$$N_{30} = 1,39 \ 10^{15}$$

²⁴⁰Pu :
$$\frac{dN_{40}}{dt} = N_{49} \sigma_{c49} \Phi - N_{40} \sigma_{c40} \Phi + \lambda_{30} N_{30}$$

$$d \frac{\frac{N_{40}}{10^{24}}}{dt} = 0,004 \left[\frac{N_{49}}{10^{24}} - 0,006 \left[\frac{N_{40}}{10^{24}} \right] \right]$$

²⁴¹Pu :
$$\frac{dN_{41}}{dt} = \sigma_{c40} \Phi N_{40} - \sigma_T \Phi N_{41} - \lambda_{41} N_{41}$$

$$\frac{d \frac{N_{41}}{5 \frac{10^{22}}{dt}}}{\frac{10^{22}}{3 t}} = 0,123 \frac{N_{40}}{10^{24}} - 0,018 \frac{N_{41}}{5 \frac{10^{22}}{10^{22}}}$$

²⁴²Pu :
$$\frac{dN_{42}}{dt} = \sigma_{c41} \Phi N_{41} + 0,16 \lambda_{52} N_{52} - \sigma_{c42} \Phi N_{42}$$

$$\begin{bmatrix} d \frac{N_{42}}{5 \cdot 10^{22}} \\ \frac{1}{5 \cdot 10^{22}} \end{bmatrix} = 0,0041 \begin{bmatrix} \frac{N_{41}}{5 \cdot 10^{22}} \end{bmatrix} + 0,0014 \begin{bmatrix} \frac{N_{51}}{5 \cdot 10^{21}} \end{bmatrix} - 0,0004 \begin{bmatrix} \frac{N_{42}}{5 \cdot 10^{22}} \end{bmatrix}$$

²⁴³Pu :
$$\frac{dN_{43}}{dt} = \sigma_{c42} \Phi N_{42} - (\sigma_{T43} \Phi + \lambda_{43}) N_{43} = 0$$

 $N_{43} = 1,04 \ 10^{-5} \cdot N_{42}$

²⁴¹Am :
$$\frac{dN_{51}}{dt} = \lambda_{41} N_{41} - \sigma_{T51} \Phi N_{51}$$

$$\begin{bmatrix} \frac{1}{3} \frac{N_{51}}{16^2} \\ \frac{1}{3} \frac{1}{16^2} \\ \frac{1}{3} \end{bmatrix} = 0,0145 \begin{bmatrix} \frac{N_{41}}{510^{22}} \\ -0,0088 \begin{bmatrix} \frac{N_{51}}{510^{21}} \\ \frac{1}{510^{21}} \\$$

$${}^{244}Cm : \frac{dN_{64}}{dt} = \sigma_{c63} \Phi N_{63} - \sigma_{c64} \Phi N_{64} + \lambda_{54} N_{54}$$

$$\left[\frac{d \frac{N_{64}}{5 10^{18}}}{dt} - 0,029 \left[\frac{N_{63}}{5 10^{19}} + 0,013 \left[\frac{N_{53}}{5 10^{19}} \right] - 0,0004 \left[\frac{N_{64}}{5 10^{18}} \right] \right]$$

Le câblage est réalisé - voir schéma I-4 - à partir de tiroirs fonctionnels, ensembles électroniques simulant des fonctions potentiométriques, intégratrices ou sommatrices.

2 – RESULTATS

••

Les courbes donnant l'évolution de la composition du combustible sont représentées fig, I-2 et fig, I-3.

Nous avons juxtaposé sur l'axe des abscisses, à la suite du temps d'irradiation, le temps de refroidissement.

Les ordonnées doivent être affectées :

- du facteur de sensibilité (du à l'enregistreur graphique),

- du facteur caractéristique du changement de variable.

2.1 – Résultats à la fin de l'irradiation T = 1081 jours

Ils seront exprimés en grammes ou milligrammes par tonne d'uranium naturel (0,72%²³⁵U)

²³⁵ U consommé (g	/т): 3850	(53,5 %)		
Isotopes produi	ts (g/T)	Composition isotopique (atomes %		
239 _{Pu}	2330	78,2		
240 _{Pu}	550	18,44		
²⁴¹ Pu	93	3,09		
242 _{Pu}	11,2	0,37		
Pu total	2984 ,2			
²⁴¹ Am	3,54	97, 2		
²⁴² Am	0,003			
243 Am	0,103	2,8		
Am total	3,646			
²⁴² Cm	0,357	98,6		
²⁴³ Cm	2,43 10 ⁻³	0,7		
²⁴⁴ Cm	2,4 10 ⁻³	0,7		
Cm total	0,362			

2.2 - Après refroidissement de 180 jours

- Les quantités d'isotopes vont varier de deux façons au cours du refroidissement : - pertes pour les éléments subissant une décroissance radioactive β α ou β .
- gaines pour les éléments fils résultant de ces désintégrations nucléaires. Tous les isotopes produits sont radioactifs mais leur période est telle que la

variation du nombre d'atomes durant 180 jours est en général négligeable. Κ.

d'atomes d'éléments fils.

Par exemple :

$$N_{39} = 2,735 \ 10^{21} \xrightarrow{\beta^{-}}{T = 2,3j} N_{49} = 2,735 \ 10^{21}$$
$$N_{30} = 1,39 \ 10^{15} \xrightarrow{\beta^{-}}{T = 1h} N_{40} = 1,39 \ 10^{15}$$

²⁴³Pu :
$$N_{43} = 1,04 \ 10^{-5} \ N_{42} = 1,04 \ 10^{-5} \ x \ 2,79 \ 10^{21}$$

= 2,9 $10^{16} \xrightarrow{\beta^{-}}{T = 5 \ h} \ N_{53} = 2,9 \ 10^{16}$

242
Am : N₅₂ = 8,4 10⁻⁴ N₅₁

$$N_{52} \xrightarrow{\beta^{-}(84 \text{ M}_{6})}_{C.E.(16\%)} N_{62} = 0,84 \times 7,43$$

$$N_{52} \xrightarrow{P^{-}(84 \text{ M}_{6})}_{C.E.(16\%)} N_{42} = 0,16 \times 7,43$$

$$N_{54} = 3,32 \ 10^{-6} \ N_{53} = 8,42 \ 10^{13}$$

$$N_{54} = \xrightarrow{\beta^{-}}_{5=26'} N_{64} = 8,42 \ 10^{13}$$

 236 Pu : T = 24400 ans 240 Pu : T = 6600 ans 241 Pu : T = 13 ans 242 Pu : T = 3,810⁵ ans N₄₂ 241 Am : T = 462 ans.

Les isotopes dont le nombre d'atomes était à saturation durant l'irradiation disparaissent - quasi immédiatement devant la durée du refroidissement - pour donner autant

> $= 8.4 \ 10^{-4} \times 0.885 \ 10^{21} = 7.43 \ 10^{17}$ $10^{17} = 6,25 \ 10^{17}$ $10^{17} = 1.19 \ 10^{17}$

Nous noterons N° la valeur du nombre d'atomes à la fin de l'irradiation.

$$N_{49} = N_{49}^{\circ} + N_{39} = (5,87 + 0,02) \ 10^{23}$$

$$N_{40}^{\circ} = N_{40}^{\circ} + N_{30}$$

$$N_{41} = N_{41}^{\circ} e^{-\lambda} 41^{t} = \frac{N_{41}^{\circ}}{1,026}$$

$$N_{42} = N_{42}^{\circ} + 0,16 \ N_{52}$$

A l'américium 241 formé durant l'irradiation s'ajoute celui formé par désintégration β du plutonium 241 (environ 5 % par an) :

 $N_{52} = 0$

$$N_{51} = N_{51}^{\circ} + (1 - \exp(-\lambda_{41} t) N_{41}^{\circ})$$

 242 Am : T = 16 h

 243 Am : T = 8000 ans $N_{53} = N_{53}^{\circ} + N_{43}^{\circ}$

Isotopes produits	Temps de refroidissement		
(g/T)	t = 0	t = 180 j	
239 _{Pm}	2330	2335	
240 _{Pu}	550	550	
²⁴¹ Pu	93	90,6	
²⁴² Pu	11,2	11 ,2	
Pu total	2984,2	2986,8	
²⁴¹ Am	3,54	6,01	
242 _{Am}	0,003	0	
243 _{Am}	0,103	0,103	
Am total	3,646	6,113	
²⁴² Cm	0,357	0,168	
²⁴³ Cm	$2,43 \ 10^{-3}$	$2,42 \ 10^{-3}$	
· 244 Cm	2,4 10 ⁻³	2,36 10 ⁻³	
Cm total	0,362	0,172	

A ces chiffres, il faut ajouter ceux de l'isotope ²³⁸Pu provenant de la décroissance α du curium 242 ; il est possible d'obtenir cet isotope pur, sans avoir à effectuer une séparation isotopique, par simple stockage du curium après sa séparation du plutonium formé au cours de l'irradiation ²³⁸ Pu, émetteur α pur, peut être utilisé dans les générateurs isotopiques de puissance.



PAR IRRADIATION DE LURANIUM

Fig. I.1

						-		.			.:	: 	; • -	•		- <u>.</u>
				2	 		-		39 Pu				-			
1 23							7	Ň	12.			 				
101		- 58°	200 24	a. 342.		<u>\</u> .		<u> </u>	2							
<u></u>	AU COURT DE L'IRE.	SUATON DE	1080 1000	×.	<u>\</u>				 	 	 			1 m - 1		
- NFG	47	121.14 . 16 .													-	-;-
10 21			-	· \ · \	···· ·				• - · · - · · ·						•	
						. 										
1014					-			E	200					· · · · ·		
· -											 					

•

. • .

٩.,

· .





							1	;	
					:]	L	;
ł		· · ·		•	ļ		 	;	• -
 				. •	_ !		Ι.	1.	
	· ·			• •		•		}	 ,
) 	_ ;				,
1	i İ				•	·	Í		1
					_:		·	<u> </u>	
					;			-	ſ
			• ••	2	:	••			
	:	ı			Î				:
			-	٠	,		i		··
.	I			1				:	!
					· -4		∤	:.	-
	.	;			1				ļ
	l I	!			i	··· ·· -·		; -	1 -
	1	1	1	1					1
	; I			-	1		+		;
	į.	. i		!	t i		ţ	*	!
	• • :		•• ••••••	·	r :		·	• • •	•
ç				, . 	1			:	!
100				-	1 '		·•· •	:	1-
N.				1	1 -			4	
~				[Į İ			; ·	1.
	⊳ i			-	Ľ		į.	·	
	6	کي ا	1				1	1	-
		~>	2-	4-	Į'			<u> </u>	
			<	\mathbf{i}	⁻ {			1	:
				15		۰.		÷.	.į
	1	! !	Į	į.				£	
	· · · ·		l		1 i		\pm	3	١
)i	Í	1.5	-	-	-		<
			•	12	4		+		÷
			1	!	•	L.	Ì	Ì	ł
	• •			 .	•			+	;
ł	f	r	i :					· . 1	:
	 i		1				1		1
			1				I	• •	1
	[]		1	•••• 1	•			•	!
		. 8	.		ļ			•	ł
		1		Γ	j			; ··	; .
		•		<u>.</u>			↓.	. .	ļ.
,]	20	!		- "		.		1
		<u> </u>	12		l			-i	1 • • • •
1		2	5		1			: -	
	<u> </u>	<u> </u>	1.5				<u> </u>	+	
[2	0		1		4	İ	:
{		6	â		·,		- [·	
ŧ.	. -	34	i lu		,	ł	1	Ì	ŀ
{····-		, a		¥			+		
1			5	7		-	.		-
		- 4	19	<u>م</u> رية م	•••••		+	···	
1	ł	2	Ĩ.	2			1		ţ
	1	N	<u>n</u>	ğ			-	-	+-
L	Ľ	d	ġ.	*	•	-	_		ľ
[<u> </u>	1.3				-	;	ţ
		9		ļ Ļ	-	i	.]	1	
{` ```			N.	1			1.	1	Ţ
]	ļ		1.			Ĺ		ļ.	
1		\	8	ſ]		1.	1	ſ
 	 		ŏ	, 		L		, 	
1 -			1					1	
1	<u>}</u>	`	1×	-					1
	1	5	3	:			ł	;	:
		Â	<u>}</u>				<u> </u>		:
 	<u> </u>		i						1
	<u>∔-</u>			!		·			
			· • • • •				1		
			1						
	*	·	· · · · ·	.			-	.	,
		·	×þ	•	<i>1</i>	12			•
			12 11 2		EN,	1 015	(we)	<u>50 t/</u>	•
		(<i>N</i> e)	12 11 1		EKN]	210 14	(100	<u>1995</u>	•

•

,

,

.

•

.

•

.







2320



- 125 -

ou mélangeur décanteur.

II-1 - Séparation des produits de fission dans le T.B.P.

fonction de la concentration de solvant libre. coefficients de partage correspondants (fig. 1).

Section Lavage

La connaissance des concentrations dans le raffinat et de la concentration en T.B.P. libre permet, par l'intermédiaire des coefficients de partage, le calcul des concentrations en phase aqueuse.

Le bilan matière de l'étage aboutit alors à la détermination des concentrations du raffinat provenant de l'étage supérieur.

Section Extraction

Le mode de calcul est inversé ; à partir des concentrations en phase aqueuse et d'une valeur supposée de TBP libre, on calcule les concentrations du raffinat et vérifie la validité de la supposition sur le TBP libre. Le tableau ci-après donne les concentrations étage par étage. L'extraction de l'américium est réalisée en moins de trois étages et le lavage assurant la décontamination en zirconium en moins de trois étages également.

La construction du diagramme de MAC CABE et THIELE permet-de déterminer graphiquement 2,9 étages d'extraction. Les courbes opératoires figurées en coordonnées logarithmiques (fig. 2) ont pour équation :

Courbe opératoire d'extraction : $y = x - 0.5 \ 10^{-7}$

ANNEXE II

CALCUL DES NOMBRES D'ETAGES THEORIQUES

Les calculs sont exposés sous une forme condensée pour chaque colonne pulsée

Les conditions opératoires sont choisies pour extraire les lanthanides et actinides

Les coefficients de partage varient le long des sections lavage et extraction en

Il faut donc pour chaque étage calculer cette concentration et en déduire les

Courbe opératoire de lavage : $y = 0, 4 x + 0, 4 10^{-3}$



Tableau	:	LAVAGE
---------	---	--------

N° étage	$\mathbf{Y}_{\mathbf{Am}}^{\mathbf{L}}$	Y ^L TR	Y_{ZR}^{L}	TBP libre %	D _{Am}	D _{TR}	D _{Zr}	\mathbf{x}_{Am}^{L}	X ^L _{TR}	x_{Zr}^{L}
1	0,4 10 ⁻⁴	0,152	0,895 10 ⁻⁵	27,5	14	16	0,017	2,86 10 ⁻⁵	9,5 10 ⁻³	5,1 10-4
	$\mathbf{Y}_{2}^{\mathrm{L}}$	$=\frac{L}{0} x_1^L$	+ ¥ ^L ₁							
2	4,01 10 ⁻⁴	0,1558	2,185 10-4	26,9	13,7	15 ,6 5	0,016	2,86 10 ⁻⁵	9,73 10 ⁻³	1,28 10 ⁻²
	Y ^L ₃	$=\frac{L}{0}(x_2^2)$	$- X_1^{l}$) + Y_2^{L}				<u> </u>			
3	4,01 10 ⁻⁴	0, 1559	0,527 10 ⁻²	26,6	13,5	15,5	0,016	2,97 10 ⁻⁵	1,005 10 ⁻²	0, 33

Tableau : EXTRACTION

N° étage	$\mathbf{x}_{\mathbf{A}\mathbf{m}}^{\mathbf{E}}$	x_{TR}^{E}	x_{Zr}^{E}	TBP libre % supposé	D _{Am}	D _{TR}	D _{Zr}	Y _{Am}	Y ^L TR	$\mathbf{y}_{\mathbf{Zr}}^{\mathbf{L}}$	% TBP libre
1	0,4 10 ⁻⁷	0, 152 10 ⁻⁴	0,0895	39,5	107	135	0,095	4,28 10 ⁻⁶	2,05 10-3	0,85 10	39,4
	X ^E ₂	$\frac{1}{A+L} Y_1^E$	$+ x_1^E$								
2	4,32 10 ⁻⁶	2,065 10 ⁻³	0,098	28,3	53	66	0,050	2,29 10 ⁻⁴	0,1404	0,49 10 ⁻²	28,2
	$X_3^E = \frac{O}{A+1}$	$\frac{1}{L}(Y_2^E - Y_1^E) +$	- x ^E ~				. <u> </u>				
3	2,29 10 ⁻⁴	0,1404	0,0904	26,2	45	56	0,042	1,03 10 ⁻²	0, 1525	0,39710 ⁻²	26,3

La phase aqueuse d'alimentation de la colonne d'extraction a une puissance thermique de 37 watts par litre, le raffinat et l'effluent, respectivement 13,8 et 8,3.

II-2 - Réextraction des actinides et lanthanides (1er cycle)

La concentration en TBP libre varie très peu le long de la section de réextraction ; en effet, l'américium et les lanthanides réextraits (Sm, Eu, Gd) ne représentent qu'une faible fraction du nombre de moles extraites. Les coefficients de partage, déduits de la fig. 1 seront considérés comme constants,

Dans la section de lavage le solvant sera très peu chargé et les coefficients de partage correspondront à 40 % de TBP libre. Le nombre d'étages est tiré de la formule qui exprime l'égalité des concentra-

tions (en Am et en Pm) de la phase aqueuse qui sort de la section de réextraction et de celle qui entre dans la section de lavage. $m \pm 1$

$$\frac{\left(\frac{A}{(O+L^{1})}\right)}{\frac{A}{(O+L^{1})}}$$

tion permet de connaître Y_{W} et X^{E} pour l'europium.

$$A = 1,65 V$$

 $A = 1,65 V$
 $O+L'=3,3 V$
 Y_W

	Υ _F	¥ _w	x _E	D _{réex}	D _{lav}	$\frac{A}{O+L'}$	'	n	m
Am	0,4 10 ⁻³	0,3 10 ⁻⁷	0,610 ⁻³	0,135	0,33				
Pm	0,0796	5,9 10 ⁻²	1,3 10 ⁻³	1,3	3	0,5	0,485	6,9	7,8
Eu	0,0152	1,2 10 ⁻⁴	0,0227	0,28	0,66				

Construction graphique : (fig. 4)

les équations des courbes sont :

courbe opératoire de lavage courbe d'équilibre

$$\frac{\overline{D}}{\overline{D}}^{n} - \frac{1}{D} = \frac{Y_{W}}{\overline{D}} = \frac{\left(\frac{L'}{\overline{A}}D\right)^{n} - 1}{\frac{L'}{\overline{A}}D - 1} X^{E}$$

La valeur de n et m_est tirée de l'équation ci-dessus et son report dans l'équa-



courbe opératoire de réextraction : Y = 0,5 X + 0,15 10^{-7} : X = 0,485 Y + 0,606 10^{-3} : Y = 7, 4 X

Réextraction des lanthanides

Le facteur de réextraction retenu

$$E_0^a = \frac{A}{OD} = 0,75 / 3,3 10^{-2} = 22,75$$

donne une marge de sécurité dans le calcul du nombre d'étages puisque le coefficient de partage est en fait inférieur à 10^{-2} .

Le nombre d'étages se déduit du réarrangement de l'équation qui exprime le bilan matière sur la section de lavage.

	Υ _F	x _E		$Y_{F} = \frac{(L/OD) - 1}{L/OD - 1} X_{E}$
La	4,315 10 ⁻²	0,189	22,75	n = 3

Construction graphique (fig. 5)

courbe opératoire de réextraction : $Y = 2,275 X + 4 10^{-6}$ $: Y = 10^{-2} X$ courbe d'équilibre

II-3 - Co-extraction Europium - Actinides

Le D2EHPA étant pris en excès, la concentration du solvant libre restera sensiblement constante.

On considèrera donc que l'extraction se fait à coefficient constant.



	x _F	$\mathbf{Y}_{\mathbf{E}}$	x _u	OD A+L		$\frac{\left(\frac{OD}{A+L}\right)^{n} - 1}{\frac{OD}{A+L} - 1} \frac{\left(\frac{L}{OD}\right)^{m+1} - 1}{\frac{L}{OD} - 1}$
Am	0,58 10 ⁻³	0,49 10 ⁻³	0,49 10 ⁻⁷	5,5	0,75 10 ⁻³	n = 5,3
Zr	1,31 10 ⁻⁵	1,11 10 ⁻⁸	1,11 10 ⁻⁵	0,05	3	m = 2,9

courbe d'équilibre : Y = 5,5 Xcourbe opératoire d'extraction : $Y = X - 0,5 \ 10^{-7}$ de lavage : $Y = 0,15 X + 0,5 10^{-3}$ 13 11

II-4 - Réextraction des Actinides



	Υ _F	Y _W	x _E	A (O+L)D	L'D A	$\frac{\left(\frac{A}{(O+L')D}\right)^{n} - 1}{\frac{A}{(O+L')D} - 1} \frac{Y_{W}}{D} = \frac{\left(\frac{L'D}{A}\right)^{m+1} - 1}{\frac{L'D}{A} - 1} X_{E}$
Am	0,49 10 ⁻³	0,39 10 ⁻⁷	2,49 10 ⁻³	2,4	0,062	n = 7,85
Eu	1,93 10 ⁻²	1,54 10 ⁻²	9,65 10 ⁻⁶	0,064	3,125	m = 5,4

tion.

Courbe d'équilibre

11 11 de lavage

Réextraction des Lanthanides du D2EIIPA

Réalisée par l'acide nitrique IN, le coefficient de partage est au maximum de 10^{-2} (phase aq. vers phase org.). Le diagramme de MAC CABE et THIELE (fig. 9) et le calcul direct donnent :

3,75 étages théoriques

courbe d'équilibre

٥

Le nombre d'étages d'extraction peut être relevé également sur le diagramme de MAC CABE et THIELE (fig. 7) dont les courbes ont pour équations :

Le diagramme de MAC CABE et THIELE (fig. 8) donne 8,1 étages de réextrac-

 $: Y = 5 \ 10^{-2} X$ Courbe opératoire de réextraction : $Y = 0,1625 X + 6,4 10^{-9}$: $X = 1,25 Y + 2,5 10^{-3}$

 $: Y = 10^{-2} X$ courbe opératoire de réextraction : $Y = 1,155 \ 10^{-1} + 1,485 \ 10^{-6}$

	Y _F	^Y w	x _E		$Y_{F} = \frac{\left(\frac{L}{OD}\right)^{m+1} - 1}{\frac{L}{OD} - 1} X_{E}$
Eu	1,544 10 ⁻²	1,485 10 ⁻⁶	0,1266	11,52	m = 3,75

II-5 - 3ème cycle : purification et concentration des Actinides

a) Extraction



	x _F	\mathtt{Y}_{E}	x _w	<u>OD</u> A + L	$Y_{m+l} = Y_n = \frac{\left(\frac{O D}{A+L}\right)^n - 1}{\frac{O D}{A+L} - 1} D X_W$
Am	2,12 10 ⁻³	3,99 10 ⁻³	2 10 ⁻⁷	10	N = 4

La construction graphique, au moyen du diagramme de MAC CABE et THIELE, de l'extraction donne 4 étages théoriques.

La courbe d'équilibre a pour équation :

Y = 20 X

la courbe d'extraction

 $Y = 2 X - 4 10^{-7}$

et celle de lavage

.

$$Y = 0,12 x + 4 10^{-3}$$

En l'absence de coefficients de partage pour les impuretés, 3 étages de lavage seront utilisés et assureront la décontamination d'éléments de coefficient de partage inférieurs à : 0,12.

6

b) Réextraction





Construction graphiq

Courbe d'équilibre

Courbe opératoire de réextra

Y _W	x _E	L OD	$Y_{F} = \frac{\left(\frac{L}{OD}\right)^{n} - 1}{\frac{L}{OD} - 1} Y_{E}$
3,7 10 ⁻⁷	4,985 10 ⁻²	74,1	m = 2,15

:
$$Y = 10^{-3} X$$

action : $Y = 7,4 \ 10^{-2} X + 3,7 \ 10^{-7}$
1

•

.

~

III-1 – Coût du matériel significatif

III-1.1 - Prix des batteries de mélangeurs décanteurs

Connaissant le coût de l'appareillage d'une capacité donnée, on peut en déduire en première approximation le prix de ce matériel pour une capacité différente en utilisant l'équation suivante :

$$\left(\frac{\mathbf{P}_1}{\mathbf{P}_2}\right) = \left(\frac{\mathbf{t}_1}{\mathbf{t}_2}\right)$$

Туре	Volume du mélangeur (1.)	Prix d'un étage (en F.)	Nombre d'étages	Prix global (en F.)
I	2,5	10 000	16	11 600 000
II	3,33	11 870	16	190 000
III	0,76	4 410	20	88 200
IV	0,375	3 200	16	51 200
Р	rix des 2 étages de MI	D utilisés dans les de	eux cycles de rég	énération du TBP
	9,625	22 400	1	22 400
	0,75	4 350	1	4 350

	Volume du mélangeur (1.)	Prix d'un étage (en F.)	Nombre d'étages	Prix global (en F.)
	2,5	10 000	16	11 600 000
	3,33	11 870	16	190 000
	0,76	4 410	20	88 200
	0,375	3 200	16	51 200
Р	rix des 2 étages de MI	D utilisés dans les de	eux cycles de rég	cénération du TBP
	9,625	22 400	1	22 400
	0,75	4 3 50	1	4 350

Coût global des batteries de mélangeurs-décanteurs 516 150 F.

135

ANNEXE III

CALCULS ECONOMIQUES

4 types de mélangeurs décanteurs sont utilisés.

0,6

(E4)

P : prix de l'appareillage

t : capacité du mélangeur

III-1.3 - Prix des pompes (E 3)

Nature	Prix unitaire en F.	Nombre	Total
Centrifuges	4 10 ³	20	8 10 ⁴
Doseuses	2,610 ³	25	6,5 10 ⁴

Capacités (m ³)	Prix unitaire en F.	Nombre	Total
90	31 500	1	31 5 0 0
18	13 000	2	26 000
5	8 600	1	8 600
1	6 600	2	13 200
0,5	5 000	1	5 000

Coût global des stockeurs : 84 300 F.

III-1.5 - Prix des filtres (E 3)

Types	Prix unitaire en F.	Nombre	Total
A bo ug ies métalliques	2 10 ⁴	4	8 10 ⁴

2

III-1.6 - Prix des colonnes pulsées (E 4)

Leur prix a été évalué en gros à 10 000 F. pièce.

Nombre : 4

Coût global : 40 000 F.

III-1.2 - Prix des cuves de stockage et de préparation des solutions non actives

Prix des cuves de stockage simples (E 3)

Capacité (1)	Prix unitaire en F.	Nombre	Total
5 000	9 10 ³	1	9 10 ³
2 000	5,610 ³	1	5,610 ³
1 000	4 10 ³	17	6, 8 10 ⁴
500	2,5 10 ³	1	2,5 10 ³
300	1,7 10 ³ ,	3	5 10 ³

Prix des cuves munies d'un agitateur mécanique (E 3)

Capacité (1)	Prix unitaire en F.	Nombre	Total
1 000	7 10 ³	4	2,810 ⁴

Prix des cuves munies d'un serpentin (E 3)

Capacité (en l)	Prix unitaire en F.	Nombre	Total
500	5,5 10 ³	4	2,2 10 ⁴
300	4 10 ³	3	1,2 10 ⁴

Prix des cuves munies d'un agitateur mécanique et de serpentin

Capacité (1)	Prix unitaire en F.	Nombre	Total
1 -000	1,4 10 ⁴	4	5,6 10 ⁴

Coût global des cuves : 208 100 F.

Coût global des pompes : 145 000 F.

III-1.4 - Prix des cuves de stockage de produits radioactifs (E 3)

```
III-1.7 - Prix des colonnes à remplissage (E 4)
```

	Diamètre	:	10	0 mm
	Hauteur	:		1 m
	Nombre	:		2
Prix d	l'une colonne	e	:	690 F.
Prix c	lu garnissag	е	:	60 F.
Prix g	global		:	1500 F.

III-2 - Consommation en matières premières

Cette consommation a été calculée pour la durée d'une campagne. La perte en TLA a été négligée.

 $Al(NO_3)_3$ PM : 213

Volumes (en 1.)	Molarité	Poids en kg Al(NO ₃) ₃	Consommation globale (kg)
3 060	5 M	32260	
20 600	0,25 M	1100	4 460
5 000	0,1 M	100	

LiNO₃ PM : 69

Volumes (en l.)	Molarité	Poids de Li NO ₃ (kg)	Consommation globale (kg)
5 000	3 M	1 020	
40 350	4 M	11 057	12 660
715	1 2 M	583	

TBP d = 0,973

Volume TBP 40 % (pertes radiolyse) (en 1.)	Volume TBP 100 % (pertes radiolyse)	Poids de TBP consommé en kg
4 375	1 750	1 630

tria	(acide diéthylène	DTPA
M	Volume en litres	
	20 600	
	5 000	
uatio	Dans cette éval molaire.	solution 0,5
	A d = 0,970	D2EHP.
A	Volume D2EHP. à 8 % en 1. 2 270	
= 0,7 155	ANE d volume PM = 6	dodec hno ₃
N	Volume en litres	
	5 096	
	10 296	
	PM = 40	NaOH
N	Volume (en litres)	
	792	
	4 190	

138

iamine pentacétique)

Molarité	Volume de DTPA 0,5 M	Volume global
0,1 M	4 120	6 620
0,25 M	2 500	0 020

ion, le DTPA est supposé être disponible sous forme d'une

(10 % de pertes par radiolyse et par cycle)

Volume D2EHPA 100 % en l.	Poids D2EHPA en kg
252	244

0,76 1550 litres

Molarité	Volume HNO ₃ commercial d = 1,33	Volume global	
1 M	424	2.050	
4 M	3 432	3 000	

or malité	Poids en kg	Poids total (kg)
1 M	31,7	1 706 7
10 M	1 675	1 100, 1

 $Na_2 CO_3$ PM = 106

Volume (en litres)	Normalité	Poids en kg	Poids total (kg)
984	1 M	104	104

1 - TRANSPLUTONIENS - PRODUITS DE FISSION

(A 1)	BERGER	R. B	IST 10
(A 2)	SULLIVA	AN Tri	linear
(A 3)	Neutron	cross	section
(A 4)	11	11	11
(A 5)	н	н	11
(A 6)	BLOME	KE, TO	DDD, O
(A 7)	GLUEKA	UF A	tomic :

peut consulter aussi :

- (1957)
- 2 PROCEDES SEPARATIONS

BIBLIOGRAPHIE

04 (mai 1966) p. 26 Chart of Nucleider ons ANL 6750 BNL 325 ORNL - LR - DWG 55564 ORNL 2127 Energy Waste, chap. I

Pour la production de transplutoniens et le calcul des produits de fission, on

- ZYSIN Fission Product Yields and their mass distribution (traduit du Russe) - WAY and WIGNER : Rate of Decay of fission products - National Nuclear Energy series div. IV, vol. 9 Mc Grac, p. 43 - American Nuclear Society, vol. 8, nº 1 (transactions) 1965 - Production des transuraniens en fonction du temps d'irradiation - BENEDICT and PIGFORD, Series in Nuclear Engineering, Mac Graw et Hill, New-York

- STEINBERG et GLENDEMIN - Survey of Radiochemical studies of the fission process -Proceedings of the International Conference of the Peaceful uses of Antonnic Energy - Vol. 7, p. 3, United Nations, New York, 1956

(B 1) BERGER R. BIST. 104 (CEA) Mai 1966, pages 19-25 (B 2) ULSTRUP Atomic Energy Review, Vol. IV, n° 4, IAEA, Vienne, 1966 PASCAL, Vol. XV, 3ème fascicule, p. 865, p. 940 (Masson, Paris) (B 3) BUBERNAK, LEW, MATLACK Talanta, 6, (1960) 167 (B 4) SEABORG, JAMES, U.S. Patent, 3 044 944 (1962)

141

(B5)	SEABORG, JAMES, MORGAN, The transuranian Elements, Nat. Nucl. Energy Series Div IV 14 B Mc Graw-Hill (1949) 1339 et 1525	(B 42) (B 43)	KEENAN, J. Inorg. Nucl. Chem. 20 (1961) 185 HIGGINS OBANE US Pat. 2 887 358 (1959)
	belles, bay, iv, if b, we claw-min (10407, 1000 et 1020		MANNING STUDIER DIAMOND FIELDS US
(B 6)	STEPHANON, PENNEMAN J. Am. Chem. Soc. 74 (1952), 3701	(B 44)	OBNI, 3880 p 26
(B7)	YAKOVLEV, GORBENKO - GERMANOV, Proc. UN Int. conf. PUAE 7 (1956), 306	(B 45)	COLEMAN DENNEMAN KEENAN I Inord
(B 8)	Reactor Fuel Proce ing, vol. 9, n° 1 (65 - 66)	$(\mathbf{D} + 0)$	SUBIS CHORDIN I Inong Nucl Chor 4 (10
(B 9)	Rapport ORNL, 3880, p. 28	(D 40)	WERNER DERUMAN I Am Chem Ser 72 (
(B 10)	WERNER, PERLMAN, CALVIN, The transuranien elements, Nat. Nucl. Energy	(D 47) (D 40)	CAL Brook UN inter Conf. DUAE 9 (1050) 199
	Series, Div. IV, 14 B, Mc Graw-Hill (1949), 1586	(D 40)	GAL, PFOC. UN IIII, COM. PUAE 8 (1956) 123
(B 11)	GREBENSCHIKOVA, CHERNYAVSKAYA, h. Neorg. Khim 4 (1949) 941 et	(5,40)	BIEWARI II. 7 (1956) 321
	Radiolkimiya 4, 2 (1962) 232	(B 49)	BOCKHAREV, VOEVADIN Radiokminiya 7 (4) 4
(B 12)	MOORE ANALYST Chem. 35 (1963) 715	(B 50)	HOLST, BARRICK US Atom. Energ. Comm. Re
(B 13)	GROTH and alls Nuclear Application 1 (4), $321/336$ (1965)	(B 51)	Separation Am-La (Japon) J. Nucl. ci. Technol
(B 14)	PEPPARD, GRAY, MARCUS J. Am. Chem. Soc. 75 (1953) 6063	(B 52)	KNIGHTON, STENNEMBERG US. Pat. 3 147 10
(B 15)	PEPPARD, GRAY, USPAT 2 683 655 (1954)	(B 53)	SIMPSON, ERWAY, US Pat. Appl. 99 776 Offic
(B 16)	US Atom Energy Comm. Ger. Pat. 1 148 534 (1963)		
(B 17)	KOSYAKOV, GUREEV, YAKOVLEV, US Atom. Energ. Comm. Rep. Conf.		
	72 - 2 (1963)	(C 1)	KOEHLY D-C-SCCI CENFAR (Comm. Personn
(B 18)	BAYBARZ Leuze Nuclear Sci. Eng. 11-1, (1964) 60	(C 2)	KOEHLY, Separation Lanthanides Actinides, Ra
(B 19)	THOMAS SIDDALL, AIKEN US.PAT. 3 243 254 (1966)	(C 3)	SWALLON, Radiation chemistry of organics Con
(B 20)	LEUZE, BAYBARZ, WEAVER Nucl. Sci. Engng 17 - 2 (1963) 252		
(B 21)	PEPPARD, MASCH, PRISCOLL Mac Carthy J. Inorg. Nucl. Chem. 12 (1959) 141	•	
(B 22)	WEAVER KAPPELMAN U.S. Atom. Energ. Comm. Rep ORNL 3559 (1964)	(D 1)	Eurochimie : First Activite Report
(B 23)	ZANGEN J. Inorg. Nucl. Chem. 25.8 (1963) 1051	(D 2)	RENAULT TALMONT, Fonctionnement des col
(B 24)	MOORE, Anl. Chem. 38 1-3, p. 510-511		Nucléaire, Vol. 5, Mai 1963
(B 25)	FLETCHER, MOORE, KNOXVILLE US. Pat., 3 294 494 (1966)	(D 3)	DOLFUSS - SGN - Communication personnelle
(B 26)	¹¹ ¹¹ ¹¹ ¹¹ ¹¹ ¹¹ ¹¹ ¹¹	(D 4)	DOLFUSS - SGN - Echange de matière dans l
(B 27)	HORWITZ, BROOMQUIST, SAVRO, HANDERSOW (ANL) J. Inorg. Nuclear Chem.		Conférence ACHEMA 1964
	1966. Vol. 28 p. 2313/2 24		
(B 28)	MOORE, 115, Patent 3276 849 (1954)		
(B 29)	WERNER, PERLMAN, CALVIN, US Pat. 2894 805 (1959)	(E 1)	BERGER - BIST nº 104
(B 30)	ZEMLYAMICKHIN, SAVOSKINA, PUSHLENKOV, Radiokhimiya, Vol. 5, nº 6.	(E 2)	THIRIET - Cours de G.C.I.A., Fascicule II
(/	p. 674-679, 1963	(E 3)	Techniques de l'Ingénieur - Génie chimique - T
(B 31)	KAPPEIMANN, WEAVER, US Pat $3230, 036$ (1966)	(E 4)	DOLLFUS – St Gobain Nucléaire
(B 32)	BAYDARZ, J. Inorg. Nucl. Chem. 27 1965 1831	(E 5)	THIRIET - Cours de GCIA, Fascicule V
(B 33)	MASON LEWEY, PEPPARD, id 26 1964 2271		
(B 33h	is) FERGUSON. USAEC. OBNL. 3408. p. 37. 1962		
(B 34)	Transuranien Elements Processing (T B II) ORNI, 3627 (1964)		
(B 32)	OBNI. 3695 n 32		
(D 30) (D 33)	IDO 14 656 (1965)		
(סנים) (מנים)	Extractants bidentates at UDEUD OPNI 2000		
(וינים) (היפון)	ODNI 2000 - 15		
(B 38)	OUND 3800, h. 12		

(B 39) ORNL P 1577 (1965)

.

- (B 40) DIAMOND, STREET, SEABORG, J. Am. Chem. Soc. 16 (1954) 1461
- (B 41) MARCUS, GRIVON, CHOPPIN, J. Inorg. Nucl. Chem. 25 1457 (1963)

Pat. 2 887 358 (1959) DIAMOND, FIELDS, Us Pat. 2858 095 (1964) N, KEENAN ... J. Inorg. Nucl. Chem. 3 (1957) 327 Inorg, Nucl. Chem. 4 (1957) 62 J. Am. Chem. Soc. 73 (1951) 5215 Conf. PUAE 8 (1956) 123 id. 7 (1956) 321 DIN Radiokhimiya 7 (4) 461/465, 1964 Atom. Energ. Comm. Rep. RFP 183 (1960) pon) J. Nucl. ci. Technol. 245-50 (1965) IBERG US. Pat. 3 147 109 (1964) Pat. Appl. 99 776 Officiel Gaz 663 (1952) 1222

ENFAR (Comm. Personnelle) anthanides Actinides, Rapport interne, DC. Juin 1967 chemistry of organics Compounds, Pergamon Press

ctivite Report Fonctionnement des colonnes à pulsation, Energie Mai 1963 ommunication personnelle change de matière dans les systèmes à plusieurs phases onférence ACHEMA 1964

04 G.C.I.A., Fascicule II eur - Génie chimique - Tome IV n Nucléaire GCIA, Fascicule V

٩



۵.



