

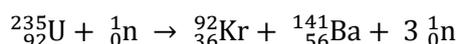
# La séparation des radioéléments contenus dans les déchets de l'industrie nucléaire

Université libre de Bruxelles – Faculté des Sciences – Département de Chimie

L'industrie nucléaire propose une manière de produire une grande quantité d'énergie avec de très faibles rejets de gaz à effet de serre. Elle s'inscrit donc dans une optique de lutte contre le changement climatique. Les gaz émis proviennent essentiellement de l'extraction et de l'enrichissement de l'uranium et non de la centrale en elle-même.

La production d'énergie se base sur la désintégration radioactive artificielle d'un élément, phénomène physique au cours duquel des noyaux atomiques instables se divisent, par collision avec des neutrons, en noyaux atomiques plus stables ayant perdu une partie de leur masse.

Le combustible utilisé dans les réacteurs est de l'uranium enrichi en isotope 235. La fission de ce dernier entraîne l'apparition d'une série d'isotopes radioactifs.



Ces produits de fission subissent alors un phénomène de désintégration naturelle au cours duquel différents types de rayonnements sont émis.

Les rayonnements  $\alpha$  : ils sont caractérisés par l'émission d'un noyau d'hélium (2 protons et 2 neutrons). Celle-ci a lieu pour des noyaux dont le nombre de masse est supérieur à 200. Ces particules ont un très faible pouvoir de pénétration. En effet, une feuille de papier suffit à les arrêter.

Les rayonnements  $\beta$  sont de deux types :

- Les rayonnements  $\beta^-$  qui sont caractérisés par l'émission d'un électron (particule de faible masse portant une charge électronique négative).
- Les rayonnements  $\beta^+$  qui sont caractérisés par l'émission d'un positron (particule de faible masse portant une charge électronique positive).

Ces particules ont un pouvoir de pénétration plus important que celui des rayonnements  $\alpha$ . En effet, il faut une feuille d'aluminium ou une vitre en verre pour les arrêter.

Les rayonnements  $\gamma$  sont des rayonnements électromagnétiques de haute énergie qui se manifestent seuls ou qui accompagnent la radioactivité  $\alpha$  ou  $\beta$ . Ils possèdent un pouvoir de pénétration très important. En effet, ils sont stoppés par plusieurs centimètres de plomb ou plusieurs décimètres de béton.

Lors d'une désintégration, un élément est donc transformé en un autre plus stable via l'émission de ces rayonnements. La quantité initiale d'éléments diminue au cours du temps, selon une loi cinétique d'ordre 1 :

$$N(t) = N_0 \cdot e^{-kt}$$

Où  $N(t)$  représente le nombre de nucléides au temps  $t$ ,

$N_0$  : le nombre de nucléides initiaux et  $k$  : la constante de désintégration.

Afin d'étudier la décroissance radioactive des éléments, on introduit le concept de temps de demi-vie ( $\tau$ ), c'est-à-dire le temps nécessaire pour que le nombre de nucléides de départ soit réduit de moitié.

$$\frac{N_0}{2} = N_0 \cdot e^{-k\tau} \Leftrightarrow \tau = \frac{\ln(2)}{k}$$

Par exemple, l'uranium 235 possède un  $\tau$  de 704 millions d'année. Ces temps de demi-vie sont propres à chaque élément radioactif, ce qui permet de comprendre la problématique liée à la gestion et au stockage des déchets radioactifs. Etant donné que chaque élément possède des propriétés physico-chimiques différentes, la politique actuelle est de trouver des solutions adaptées pour chacun des composés. Ces solutions consistent notamment en un conditionnement en couche géologique profonde pour les produits de fission de haute activité ou en un stockage en entrepôt pour ceux de faible activité. Une réutilisation des actinides mineurs (Am, Cm, Np) ou du Plutonium dans les centrales nucléaires pourrait également constituer des solutions futures. Néanmoins, afin d'appliquer ces solutions, il faut dans un premier temps parvenir à séparer les différents isotopes.

Les techniques de séparation développées par l'industrie nucléaire sont essentiellement des extractions liquide-liquide. Ces dernières sont basées sur la différence de solubilité des constituants d'un mélange dans deux phases non-miscibles. Pour illustrer ceci, nous avons réalisé une extraction de l'ion potassium à l'aide d'un éther couronne (18-couronne-6) : une solution aqueuse de permanganate de potassium (phase aqueuse) et du toluène (phase organique) sont placés dans un tube à essai. Les cations  $K^+$  sont initialement solvatés par les molécules d'eau. L'ajout d'un extractant spécifique permet de piéger les ions  $K^+$  et de les entraîner dans la phase organique. Les anions  $MnO_4^-$  passent aussi dans le toluène par interaction électrostatique avec  $K^+$ . Cette extraction s'accompagne d'une coloration rose de la phase organique initialement incolore.

Dans l'industrie nucléaire, plusieurs procédés d'extraction ont été établis. Ils sont effectués les uns à la suite des autres afin d'extraire sélectivement les isotopes présents dans les combustibles usés. Le procédé PUREX constitue la première extraction qui permet de séparer l'uranium et le plutonium des autres produits de fission. Le combustible est dissous dans une phase aqueuse acide dans laquelle on ajoute un mélange de kérosène et de TriButylPhosphate (TBP), actif uniquement en milieu acide. Suite à l'agitation de la solution, le TBP extrait l'uranium et le plutonium dans le kérosène. Ceux-ci peuvent ensuite être séparés l'un de l'autre par réduction du Plutonium. La phase aqueuse contenant les autres produits de fission est alors évacuée et subit une série d'autres extractions à commencer par le procédé DIAMEX. Celui-ci permet d'extraire les lanthanides et actinides mineurs des autres produits de fission tels que le césium. L'extractant de référence utilisé est le N,N'-diméthyl-N,N'-dioctylhexylethoxymalonamide (DMDOHEMA). A la suite du procédé DIAMEX, deux autres peuvent avoir lieu en parallèle. D'une part, le procédé SANEX permettant la séparation des actinides mineurs des lanthanides grâce, par exemple, à l'acide Bis(o-Trifluorométhylphényl)Dithiophosphinique. D'autre part, le procédé CSSX permettant d'extraire le césium des produits de fission hors lanthanides et actinides grâce à une extraction sélective du césium par le Calix[4]arene-bis(t-octylbenzo-crown-6) (BoBcalixC6).

Ce n'est qu'après toutes ces séparations seulement qu'il est possible de trouver une solution adaptée à chaque isotope radioactif.