

# Le cycle de l'uranium depuis la mine jusqu'au traitement/recyclage

*L'uranium dans tous ses états*

BRUN Frédéric (Orano DHSE)

DEVIN Patrick (Orano BU Recyclage)

02/02/2023



**orano**

# L'uranium, au cœur du cycle du combustible nucléaire



# De l'uranium, sous plusieurs formes

Installations du cycle	Formes physico-chimiques de l'uranium
Mines (y/c Bessines)	$\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ , $\text{U}_2\text{O}_7(\text{NH}_4)_2$ , $\text{U}_3\text{O}_8$
Orano Malvési	$\text{U}_2\text{O}_7(\text{NH}_4)_2$ , $\text{U}_3\text{O}_8$ , $\text{UO}_2$ , $\text{UF}_4$
Orano Tricastin	$\text{UF}_4$ , $\text{UF}_6$ (naturel et enrichi), $\text{U}_3\text{O}_8$
Framatome Romans	$\text{UF}_6$ , $\text{UO}_2$ (e<5%) , (URE 30ppb)
Réacteurs	Combustible UOX et MOX
MELOX	$\text{UO}_2$ [ $\text{PuO}_2$ ]
Orano La Hague	$\text{UO}_2$ , $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ [ $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ , $\text{PuO}_2$ ]

Quelles différences entre uranium naturel « géologique » et uranium naturel du cycle ? Uranium enrichi, uranium appauvri, uranium de retraitement ... ?

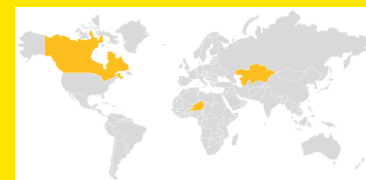
# 01

**L'uranium ... à la Mine**





# Plusieurs méthodes de production



PROSPECTION  
EXPLORATION

0



EXTRACTION

1



Mine à ciel ouvert



Mine souterraine



Récupération in-situ

MINERAIS

SOLUTION BASSE TENEUR

MISE EN  
SOLUTION

2



Lixiviation  
dynamique



Lixiviation en tas



Traitement solutions

SOLUTION RICHE EN URANIUM

PURIFICATION  
ET CONCENTRATION

3



CONCENTRÉ D'URANIUM :  $U_3O_8$  / « YELLOW CAKE »



L'uranium « géologique » va être chimiquement traité et concentré : il est alors séparé de ses descendants en équilibre séculaire



**PURIFICATION  
et CONCENTRATION**

Installations du cycle

Formes physico-chimiques de l'uranium

Mines (y/c Bessines)

$\text{U}_3\text{O}_8$ ,  $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ ,  $\text{U}_2\text{O}_7(\text{NH}_4)_2$



**YELLOW CAKE**

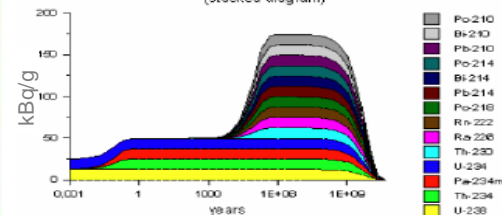
Yellow cake sur filtre à bande. Usine de Muyunkum, Kazakhstan.

Aman

Les têtes de chaînes (U5 et U8) ont des périodes radioactives du même ordre de grandeur que l'âge de la Terre

Natural Uranium Activity

(stacked diagram)

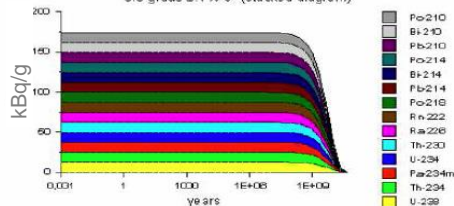


Chaîne de l'uranium 238

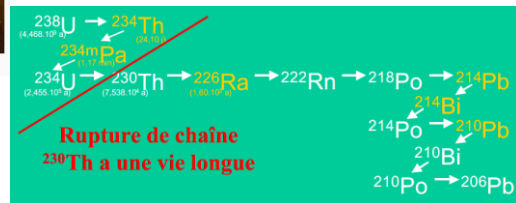
Radionucléides émetteurs  $\gamma$

Uranium Ore Activity

ore grade 0.1% U (stacked diagram)



Son activité spécifique passe de  $> 150 \text{ kBq/g}$  (U + descendants éq. séculaire) à  $\sim 50 \text{ kBq/g}$  (U + descendants éq. court terme, et  $25 \text{ kBq/g}$  pour alpha de l'U).



# 02

## L'uranium ... à la Conversion / Enrichissement



# Objectif : fournir la matière première pour la fabrication du combustible



## MINES

### URANIUM NATUREL GÉOLOGIQUE MINÉRAI D'URANIUM

0,7% Uranium 235 (+ énergétique)

Le seul noyau fissile à l'état naturel

99,3% U 238,



### YELLOW CAKE

Sous forme de poudre stable (U3O8 oxyde)

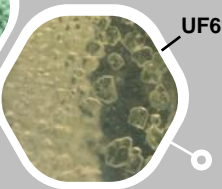
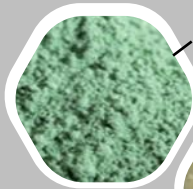
0,72% U235



## CONVERSION (CXII, PHILIPPE COSTE)

Ajout de 6 atomes de fluor à l'uranium naturel après purification

0,72% Uranium 235



UF4

UF6



## ENRICHISSEMENT SET - GBII CONCENTRATION EN URANIUM 235

0,2% Uranium 235

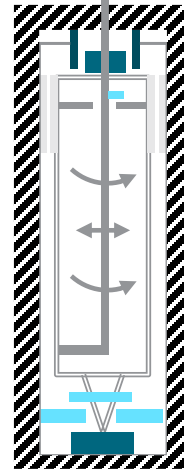


3 à 5% Uranium 235

SORTIE DE L'U APPAUVRI

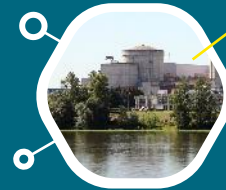
FEED

SORTIE DE L'U ENRICH



Sous l'effet de la force centrifuge, les molécules d'U238 se concentrent en périphérie tandis que les plus légères (U235) migrent vers le centre. Cette étape élémentaire de séparation isotopique est répétée dans un ensemble de centrifugeuses connectées en série : c'est une cascade.

## PRODUCTION D'ÉLECTRICITÉ

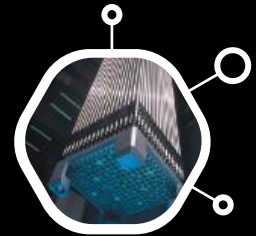


CENTRALE NUCLÉAIRE

Uranium 235 enrichi de 3 à 5%



## FABRICATION COMBUSTIBLE



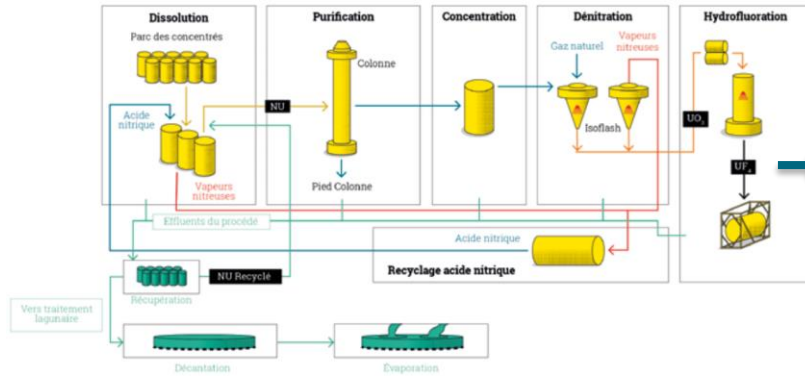


# Conversion et enrichissement de l'uranium naturel

→ des concentrés miniers à l'UF<sub>6</sub>

Concentrés miniers

Orano Malvésí (CXII)



UF<sub>4</sub> naturel

Activité spécifique  
15 kBq/g

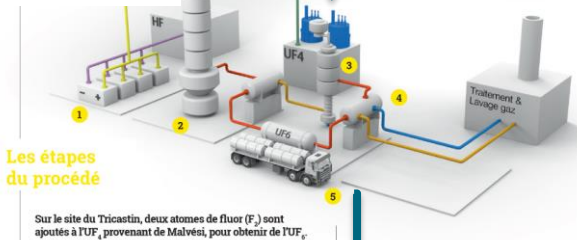
**$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$**   
~ 0,2%  
UF<sub>6</sub> appauvri

Activité spécifique  
de 80 à 130 kBq/g

**$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$**   
= 3 à 5%  
UF<sub>6</sub> enrichi

**$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$**   
= 0,72%

Activité spécifique 25 kBq/g  
(activité alpha de l'U)

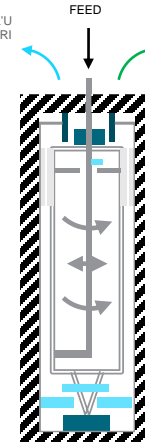


Les étapes du procédé

Sur le site du Tricastin, deux atomes de fluor (F<sub>2</sub>) sont ajoutés à l'UF<sub>4</sub>, provenant de Malvésí, pour obtenir de l'UF<sub>6</sub>.

Usine Ph Coste  
(Tricastin)

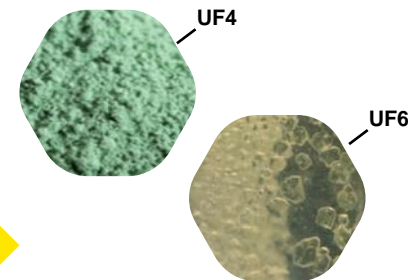
SORTIE DE L'U APPAUVRI



Usine GB II  
(Tricastin)

UF<sub>6</sub> naturel

Installations du cycle	Formes physico-chimiques de l'uranium
Mines (y/c Bessines)	$\text{U}_3\text{O}_8$ , $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ , $\text{U}_2\text{O}_7(\text{NH}_4)_2$
Orano Malvési	$\text{U}_2\text{O}_7(\text{NH}_4)_2$ , $\text{U}_3\text{O}_8$ , $\text{UO}_2$ , $\text{UF}_4$
Orano Tricastin	$\text{UF}_4$ , $\text{UF}_6$ (naturel et enrichi), $\text{U}_3\text{O}_8$
Framatome Romans	$\text{UF}_6$ , $\text{UO}_2$ (e<5%)
MELOX	$\text{UO}_2$ , $\text{PuO}_2$
Orano La Hague	$\text{UO}_2$ , $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ , $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ , $\text{PuO}_2$



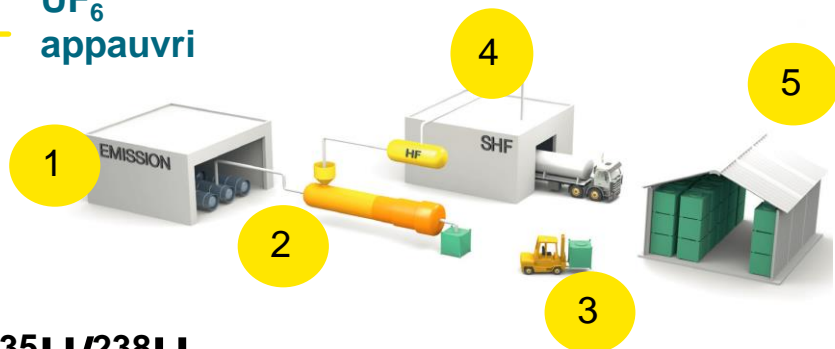
L'uranium naturel (isotopie 0,72%) à la Conversion va être purifié puis associé à du fluor (transformation chimique jusqu'en  $\text{UF}_6$ ). Le risque chimique (décomposition de l' $\text{UF}_6$  en  $\text{UO}_2\text{F}_2$  et en  $\text{HF}$ ) s'ajoute au risque radiologique.

L'uranium est enrichi en  $^{235}\text{U}$  (jusqu'à 5%) en phase gazeuse ( $\text{UF}_6$ ), qui sera ensuite défluoré pour la fabrication du combustible. Le flux d' $\text{UF}_6$  appauvri nécessite une forme stable ( $\text{U}_3\text{O}_8$ ) pour être entreposé en vue d'une valorisation future. A noter « l'absence » à ce stade de radionucléides artificiels, dans les limites de la norme ASTM (norme pour la commercialisation de l'uranium enrichi).

# Défluoration de l'UF<sub>6</sub> appauvri

## Usine W

UF<sub>6</sub>  
appauvri



$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$   
~ 0,2%

U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>  
appauvri

Uranium naturel entreposé à Bessines sous forme stable U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>, en tant que matières valorisables suivant les conditions technico-économiques.



1

### Introduction de l'UF<sub>6</sub>

Un cylindre d'UF<sub>6</sub> appauvri est mis en chauffe dans une étuve afin de sublimer l'UF<sub>6</sub>\*.

\* sublimer : passer de l'état solide à l'état gazeux

2

### Hydrolyse

L'UF<sub>6</sub> gazeux est injecté dans un four chauffé à 300°C, simultanément avec de la vapeur d'eau □ l'hydrolyse : réaction instantanée libérant de l'acide fluorhydrique (HF) et de l'oxyfluorure d'uranium (UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub>).

3

### Extraction et traitement HF

L'HF gazeux est immédiatement libéré et s'échappe vers le haut du four : filtré, puis évacué vers un condenseur, il est liquéfié puis transféré dans une cuve d'entreposage pour enlèvement par nos clients chimistes.

4

### Pyrohydrolyse

Suite de la réaction dans le four : l'UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub> est mis en contact avec de la vapeur d'eau surchauffée (à contrecourant) et de l'hydrogène complémentaire : la pyrohydrolyse (formation d'HF et d'oxyde U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>).

5

### Conditionnement U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>

L'U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> sort du four puis est acheminé, par transport pneumatique, vers la zone de remplissage des conteneurs adaptés (DV 70). Un DV 70 contient 12 tonnes d'U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>.

Les DV 70 sont ensuite entreposés sur parc en attente de réutilisation ultérieure. Entreposage essentiellement à Bessines

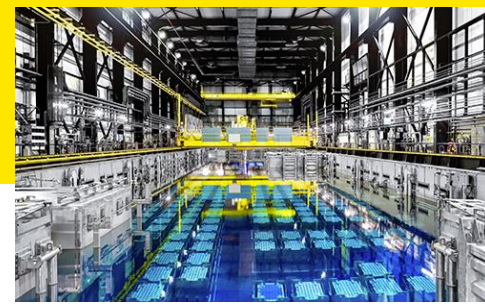
# 03

## L'uranium ... au Retraitement



# Orano La Hague

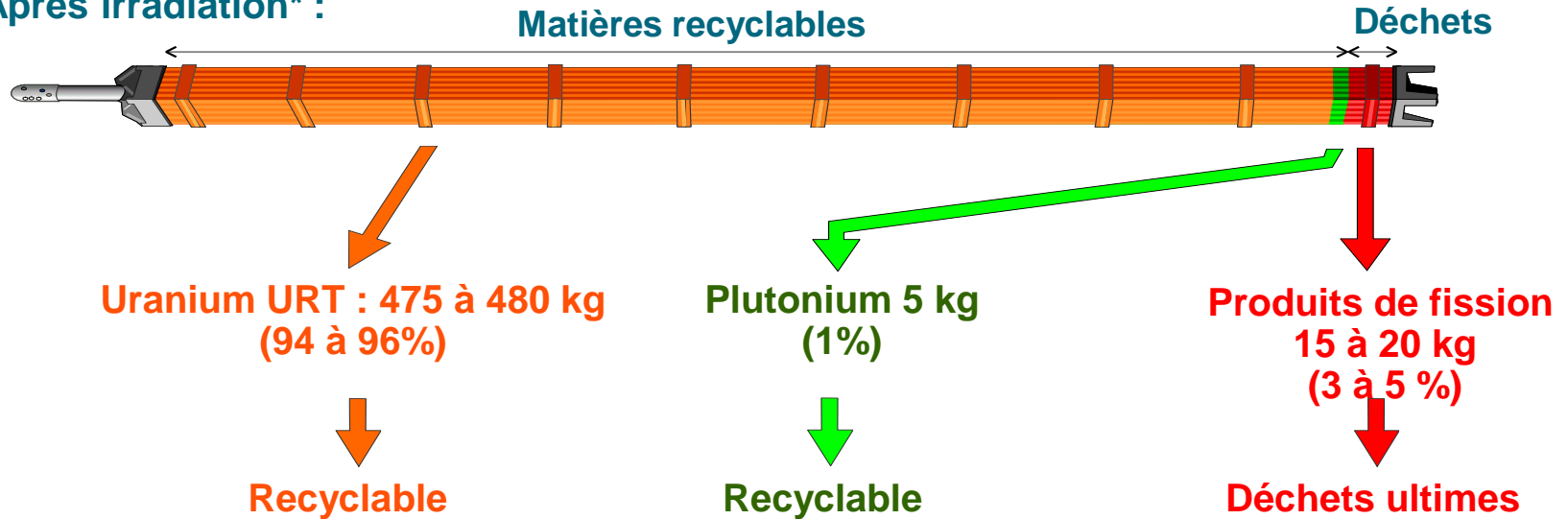
## Traitement et recyclage des combustibles usés



### Structure du combustible eau légère usé

1 combustible eau légère : 500 kg d'uranium avant irradiation en réacteur

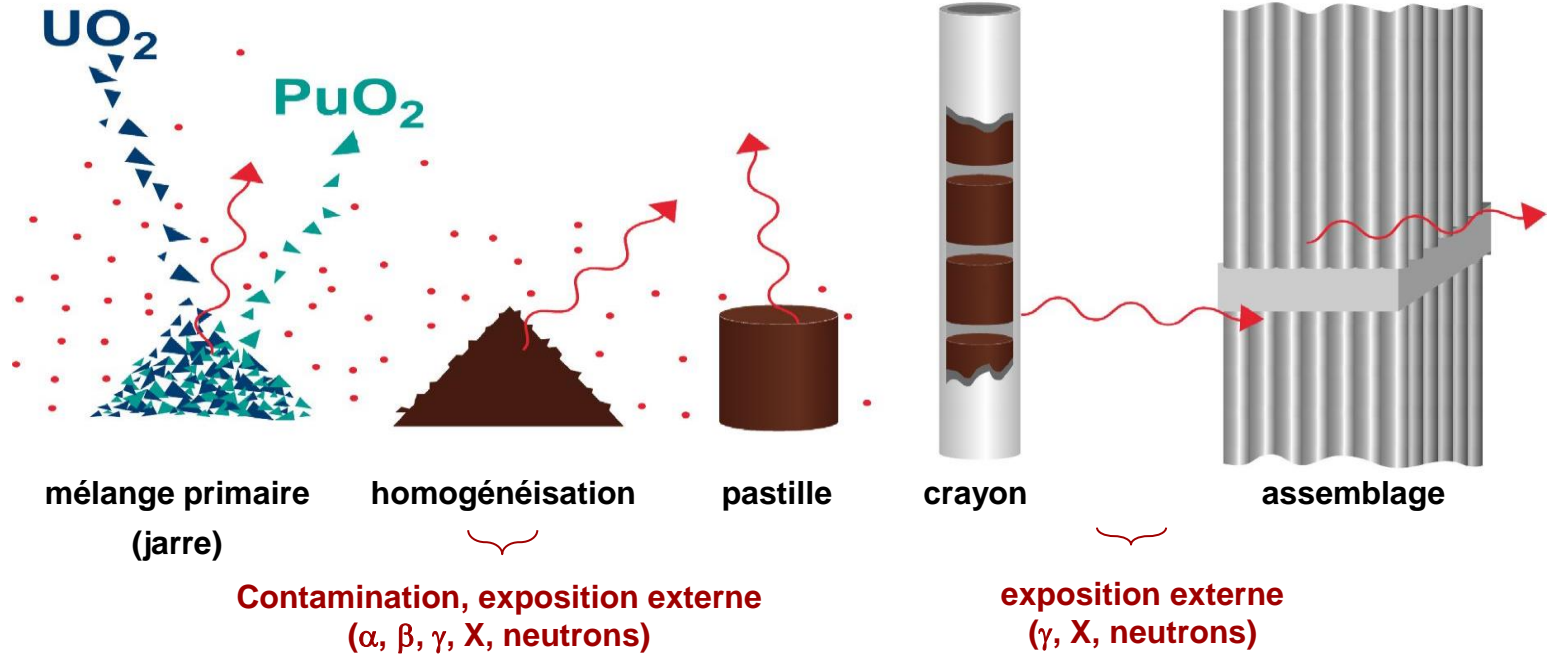
Après irradiation\* :



# Orano MELOX

## Fabrication de combustible MOX

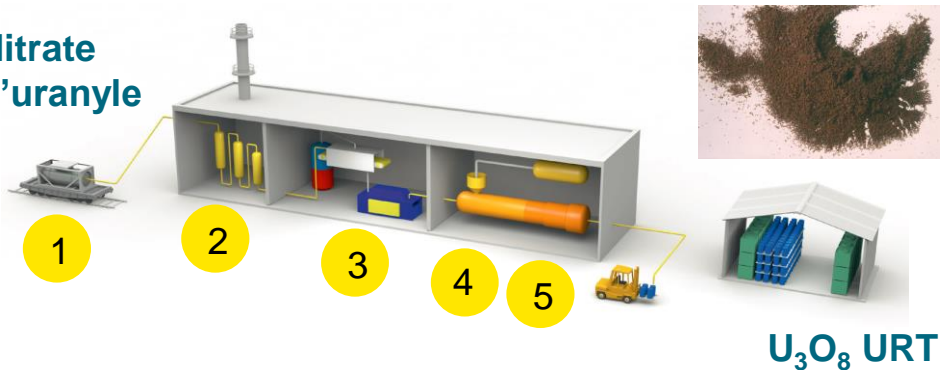
### Fabrication du MOX : mélange de Plutonium et d'Uranium appauvri



# Dénitration de l'URT

## Usine TU5 (Tricastin)

Nitrate d'uranyle



Uranium de retraitement entreposé sous une forme stable ( $U_3O_8$ ), en tant que matières valorisables suivant les conditions technico-économiques.

1

### Alimentation de l'installation

Le Nitrate d'Uranyle issu d'une citerne LR65 est transféré vers une cuve de préparation.

2

### Précipitation

Le Nitrate d'Uranyle (NU) est ensuite précipité avec de l'eau oxygénée en une pulpe d'uranium.

3

### Filtration

Cette pulpe est lavée et filtrée sur un filtre à bande, d'où les eaux-mères sont recyclées en tête de procédé. Le NU récupéré rejoint le procédé en aval (dénitration thermique) pour être transformé en  $UO_3$ .

4

### Séchage

La pâte d'uranium est séchée jusqu'à obtenir une poudre  $UO_4$ .

5

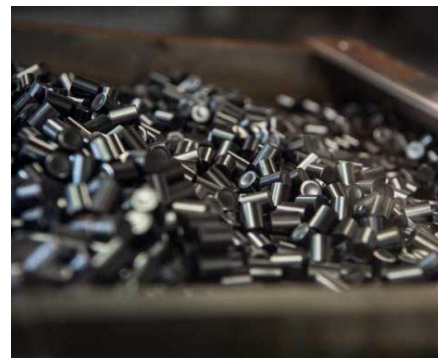
### Calcination

La poudre  $UO_4$  (et l' $UO_3$  issu de l'étape filtration) alimentent un four de calcination pour être convertis en  $U_3O_8$  (Oxyde d'Uranium)



# Etats de l'URANIUM au Retraitement

Installations du cycle	Formes physico-chimiques de l'uranium
Mines	U <sub>3</sub> O <sub>8</sub> , UO <sub>2</sub> (NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> , U <sub>2</sub> O <sub>7</sub> (NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub>
Orano Malvési	U <sub>2</sub> O <sub>7</sub> (NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> , U <sub>3</sub> O <sub>8</sub> , UO <sub>2</sub> , UF <sub>4</sub>
<b>Orano Tricastin</b>	UF <sub>4</sub> , UF <sub>6</sub> (naturel et enrichi); <b>UO<sub>2</sub>(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub></b> , <b>U<sub>3</sub>O<sub>8</sub></b>
Framatome Romans	UF <sub>6</sub> , UO <sub>2</sub> (e<5%)
MELOX	UO <sub>2</sub> , PuO <sub>2</sub>
Orano La Hague	UO <sub>2</sub> (NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> , Pu(NO <sub>3</sub> ) <sub>4</sub> , PuO <sub>2</sub>



L'Uranium issu du traitement des combustibles usés (sous forme de nitrate d'uranyle) est envoyé à Tricastin pour être transformé en oxyde de forme stable U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>.

<sup>235</sup>U/<sup>238</sup>U  
~ 0,9 à 1%

Cet Uranium URT présente une isotopie en <sup>235</sup>U proche de 1%, et des traces de radionucléides artificiels : <sup>236</sup>U, <sup>239</sup>Pu, produits de fission ...



# L'Uranium de ReTraitement (URT)

**L'URT contient des isotopes de l'uranium caractéristiques de son passage en réacteurs**

L'<sup>232</sup>U, en faible proportion, mais qui est gênant du point de vue de la radioprotection du fait de sa décroissance en <sup>208</sup>Tl émetteur gamma de forte énergie (~2,6MeV).

L'<sup>236</sup>U, en proportion notable, caractéristique de l'URT, qui du fait de ses propriétés neutrophages devra être pris en compte pour le recyclage de l'URT en combustible nucléaire.

**L'URT est entreposé sur le site du Tricastin dans des parcs prévus à cet effet sous forme d'U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>, solide de couleur noir verdâtre, qui est la forme oxyde la plus stable.**

**Le recyclage de l'URT en combustible URE (Uranium de Retraitement Enrichi)**

De 1994 à 2013, environ 600t d'URT/an ont été recyclés dans les 4 réacteurs de CRUAS. EDF est en train de relancer cette filière et étudie l'extension à d'autres réacteurs 1300 MWe avec l'objectif de résorber le stock d'URT.

Cette filière nécessite de reconvertir l' U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> en UF<sub>6</sub> pour enrichissement.

Compte tenu des caractéristiques radiologiques de l'URT, ces opérations nécessitent des adaptations des installations.



# Différents Uranium(s)

= différentes toxicités ?

**La gestion des risques repose d'abord sur la connaissance des propriétés intrinsèques des substances**

**La toxicité radiologique et la toxicité chimique peuvent « cohabiter », et l'une et l'autre ne s'exprimeront pas avec la même intensité suivant la forme physico-chimique des substances mises en œuvre à chaque étape du cycle et selon la composition isotopique**

**→ par exemple, pour l'uranium, les modes dominants de toxicité ont été définis selon la nature de l'exposition par la norme ISO 16638-1 relative au contrôle et à la dosimétrie interne suite à l'inhalation de composés d'uranium (12/15/2015).**

# Exemple : les modes dominants de toxicité pour l'uranium - Norme ISO 16638-1 (12/15/2015)

**Type F (absorption pulmonaire rapide ou composé avec une forte solubilité) :  $UF_6$ ,  $UO_2F_2$ ,  $UO_2(NO_3)_2$**

**Type M (absorption pulmonaire modérée ou composé avec une solubilité moyenne) :  $UO_3$ ,  $UF_4$ ,  $UCl_4$ , autres composés hexavalents**

**Type S (absorption pulmonaire lente ou composé une solubilité faible) :  $UO_2$ ,  $U_3O_8$**

Physicochemical and isotopic characteristics		Toxicity	
Absorption type of uranium compound	U-235 Enrichment by mass	Acute intake or single intake	Chronic intake or multiple intakes
Type F	less than 3 %	Chemical	Chemical
	above 3 %		Radiological
Type M	Less than 30 %	Chemical	Radiological
	above 30 %	Chemical and radiological	
Type S	All enrichment	Radiological	Radiological
All types	With $^{232}U$ and/or $^{236}U$	Radiological	Radiological

# Conclusion

L'uranium est extrait, concentré, transformé, purifié et mis en œuvre sous différents états dans le cycle du combustible.

Près d'une dizaine de formes sont ainsi recensées, avec plusieurs « signatures » différentes (de minerais d'uranium à l'équilibre séculaire à de l'uranium  $U_3O_8$  issu du combustible utilisé, en passant par de l' $UF_6$  naturel, enrichi ou appauvri en  $^{235}U$ ).

Chaque forme répond à un besoin industriel et à une étape précise, et à chacune sont mises en œuvre des modalités de gestion spécifiques et adaptées aux risques, chimiques et/ou radiologiques.



**orano**

Donnons toute sa valeur au nucléaire