

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

Patrick DEVIN¹ et Frédéric BRUN²

¹ORANO Recyclage, Direction Sûreté Environnement, 125 Avenue de Paris, F-92330 Chatillon

²ORANO Support, Direction HSE, F-26701 Pierrelatte

Opérateur international reconnu dans le domaine des matières nucléaires, les activités d'Orano sont centrées sur le cycle du combustible dont la matière première est l'uranium. L'objet de cet article est de présenter le cycle de l'uranium depuis la mine jusqu'à son traitement et recyclage, en passant par la conversion, l'enrichissement et sa fabrication en combustible en France.

A chaque étape du cycle de l'uranium est associée une ou plusieurs transformations de l'uranium, afin de permettre in fine son utilisation optimale dans les réacteurs nucléaires afin de produire de l'électricité. Ces différentes transformations conduisent à modifier les formes physico-chimiques afin de conférer une composition isotopique adaptée pour l'uranium qui sera mis en œuvre dans les réacteurs nucléaires. Ces différentes formes d'uranium vont donc nécessiter des mesures adaptées de gestion des risques chimiques et /ou radiologiques, pour les travailleurs, le public et l'environnement.

Même si l'histoire de l'uranium commence dans les étoiles, la croûte terrestre renferme l'essentiel du stock d'uranium de la Terre avec une teneur moyenne de l'ordre de 3g/t. L'uranium exploitable s'y trouve alors sous forme de minerai incluant les 3 principaux isotopes naturels de l'uranium (^{238}U , ^{234}U , ^{235}U), avec leurs descendants à l'équilibre. C'est à ce niveau que commence la première étape du cycle de l'uranium avec le projet d'exploitation d'un site minier, qui commence par la prospection et se termine par le réaménagement du site et la gestion des résidus miniers. Pour extraire cet uranium, il est nécessaire d'accéder au gisement, soit en décapant la partie de la roche stérile qui le recouvre (mine à ciel ouvert), soit en creusant des galeries dans cette roche stérile si le minerai se situe plus en profondeur (mine souterraine), soit par injection dans les sols d'une solution lixiviante (In-Situ Recovery ou ISR). Après broyage du minerai, l'uranium est extrait par attaque acide. La solution uranifère est ensuite purifiée et concentrée puis précipitée sous forme d'uranate qui constitue le concentré marchand : le « yellow-cake ». L'uranium, généralement sous forme U_3O_8 , a alors pratiquement perdu tous ses descendants à l'équilibre séculaire, pour ne conserver que les premiers descendants dont les périodes courtes les mettent très vite à l'équilibre avec leur père : Thorium (231 et 234) et Protactinium. A ce stade, les risques liés à ces activités sont principalement dû à l'exposition externe due aux rayonnements bêta et gamma, l'exposition interne due aux descendants solides à vie courte du radon et aux poussières.

L'uranate est ensuite acheminé à l'usine Orano Malvési proche de Narbonne où il est entreposé avant d'être purifié pour obtenir une pureté dite « nucléaire », et subir une transformation en tétrafluorure d'uranium (UF_4) qui nécessite plusieurs étapes. Cette transformation a lieu dans les nouvelles installations COMURHEX II à partir d'un procédé Isoflash de dénitrification thermique (permettant une réduction significative de l'empreinte environnementale en consommant moins de réactifs). A cette étape, les risques chimiques de l'uranium (chimiotoxicité en tant que métal lourd) sont prépondérants sur les risques radiologiques, car il a pratiquement perdu tous ses descendants radioactifs. Compte tenu de la quantité d'uranates présente en entreposage sur le site, l'irradiation externe en bordure de site nécessite évidemment des dispositions particulières de surveillance et de gestion.

L'UF₄ est ensuite acheminé sur le site du Tricastin pour subir une dernière étape de conversion (fluoruration) en hexafluorure d'uranium (UF₆), dans la nouvelle usine Philippe Coste qui a démarré en 2018. Cette forme UF₆ est en effet requise car c'est la seule qui présente une phase gazeuse compatible avec les procédés des usines d'enrichissement actuelles. Les risques chimiques de l'uranium sont toujours prépondérants sur les risques radiologiques, mais il se rajoute un risque spécifique lié au fait que l'UF₆ s'hydrolyse au contact de l'humidité de l'air en générant du fluorure d'hydrogène (HF), ce qui nécessite la mise en œuvre de dispositions particulières de maîtrise des risques. L'UF₆ est alors conditionné dans des cylindres agréés de transports spécifiques.

Ces cylindres sont ensuite acheminés (par transport interne) vers l'usine d'enrichissement par centrifugation Georges Besse II, inaugurée en 2010 et qui a remplacé l'usine EURODIF Production arrêtée en 2012 (permettant au passage de réduire d'un facteur 50 environ l'électricité nécessaire pour réaliser cette opération d'enrichissement). L'enrichissement en uranium 235, nécessaire pour les réacteurs à eau légère, passe ainsi de 0,71 % à quelques pourcents (entre 3 et 5%). L'UF₆ appauvri issu de cet enrichissement présente quant à lui une faible teneur en uranium 235 (de l'ordre de 0,25%), et est défluoré (sur Tricastin) sous forme d'oxyde stable pour un entreposage de longue durée, à Bessines ou sur Tricastin en tant que matière réutilisable suivant les conditions du marché. Si l'UF₆ présente les mêmes risques qu'à l'étape de conversion (hydrolyse en HF notamment), la radiotoxicité de l'uranium augmente rapidement avec l'enrichissement en ²³⁵U, ce qui nécessite des mesures de gestion des risques radiologiques spécifiques. L'UF₆ enrichi est enfin acheminé à l'usine Framatome de Romans, où il est défluoré sous forme UO₂ avant d'être transformé en pastilles pour les assemblages de combustible UOX.

L'uranium enrichi est alors prêt à être utilisé dans les réacteurs électronucléaires, pour produire de l'électricité.

Après un ou plusieurs cycles d'irradiation pour en extraire son énergie, le combustible est ensuite déchargé du cœur du réacteur au bout de 3 ou 4 ans pour être entreposé en piscine et refroidir quelques années. En vue de son recyclage, il est ensuite transporté vers l'usine Orano La Hague dans le Nord Cotentin, où il va être entreposé à nouveau en piscine pour subir une seconde étape de refroidissement avant d'être traité dans les usines Orano La Hague (UP3 et UP2 800) pour séparer la matière réutilisable (95 % d'uranium environ et 1% de plutonium) des déchets ultimes (4 % environ de structures activées et produits de fission).

L'uranium de retraitement (URT) à la sortie des usines de La Hague est sous forme de nitrate d'uranyle (NU). Il est alors transporté vers le site de Tricastin (installation TU5) afin de subir une dénitration et être transformé sous une forme stable (U₃O₈) pour entreposage de longue durée dans des parcs dédiés, avant réutilisation sous forme de combustible pour produire à nouveau de l'électricité suivant les conditions de marché (comme entre 1994 et 2013 dans les réacteurs exploités par EDF à Cruas). L'autre matière réutilisable récupérée est le plutonium sous forme de PuO₂, qui est transporté vers l'usine Orano Melox à Marcoule pour être mélangé avec de l'uranium appauvri afin de fabriquer un combustible MOX issu du recyclage. Dans ce combustible, le ²³⁹Pu remplace le ²³⁵U en tant que matière fissile, dans des proportions d'environ 92% d'uranium appauvri et 8% de plutonium PuO₂. Le MOX est utilisé dans certains réacteurs nucléaires d'EDF, et permet également de produire de l'électricité.

Le tableau suivant présente l'uranium sous toutes ses formes, pour chaque étape du cycle :

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

Les différentes compositions isotopiques des isotopes de l'uranium varient ainsi en fonction des étapes du cycle, et peuvent se résumer de la façon suivante :

	U-238		U-235		U-234		Total alpha activity	Alpha activity ratio U-234/U-238
	Isotopic composition by mass	Total alpha activity	Isotopic composition by mass	Total alpha activity	Isotopic composition by mass	Total alpha activity		
	%	%	%	%	%	%	Bq/g	
U-nat	99,275	48,26	0,72	2,25	0,0055	49,49	2,56E+04	1,03
DU	99,799	83,45	0,2	1,07	0,0010	15,48	1,49E+04	0,186
LEU	96,471	14,78	3,5	3,45	0,02884	81,78	8,12E+04	5,54
HEU	6,41	0,042	92,8	3,92	0,79	96,04	1,89E+06	2282

Chacune de ces formes doit évidemment être prise en compte pour estimer les niveaux d'exposition des travailleurs et du public. En effet, selon la forme physico-chimique de l'uranium, celui-ci se comporte différemment dans l'organisme du fait de ses différences de solubilité :

- Type F (absorption pulmonaire rapide ou composé avec une forte solubilité) : UF₆, UO₂F₂, UO₂(NO₃)₂ ;
- Type M (absorption pulmonaire modérée ou composé avec une solubilité moyenne) : UO₃, UF₄, UCl₄, autres composés hexavalents ;
- Type S (absorption pulmonaire lente ou composé une solubilité faible) : UO₂, U₃O₈.

Cette différence de comportement de l'uranium est prise en compte dans les évaluations de doses, notamment dans la norme ISO 16638-1 relative au contrôle et à la dosimétrie interne suite à l'inhalation de composés d'uranium. Cette double toxicité (chimique et/ou radiologique), variable en fonction de l'enrichissement en ²³⁵U et de la forme physico-chimique, peut se présenter comme-suit :

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

En synthèse, on peut retenir qu'il n'y a pas un seul type uranium mis en œuvre dans le cycle du combustible, mais plusieurs qui se présentent à chaque fois sous des formes physico-chimiques différentes, adaptées aux besoins de chaque étape.

Chaque forme d'uranium présentant des propriétés particulières, elle nécessite à la fois des savoir-faire industriels pour l'utiliser, le transformer et valoriser au mieux son usage, et doit être accompagnée de mesures de gestion spécifiques et adaptées pour maîtriser les risques inhérents à cette précieuse matière.