

Radiological Protection Associated With Uranium Industries

Uranium in all its forms

IRPA 16 : 69TH HPS ANNUAL MEETING
July 7-12, 2024 - Orlando, FL
Rosen Shingle Creek

DEVIN Patrick (Orano BU Recycling France -
Chair of the French Society for Radiological
Protection)

LEPRIEUR Fabrice (CEA France)



Table of contents

1. Uranium and Fuel Cycle Industry

2. Uranium at the Mine

3. Uranium at Conversion/Enrichment

4. Uranium and Fuel Cycle Industry

5. French Logistics Services

6. Uranium Toxicity and Radiotoxicity

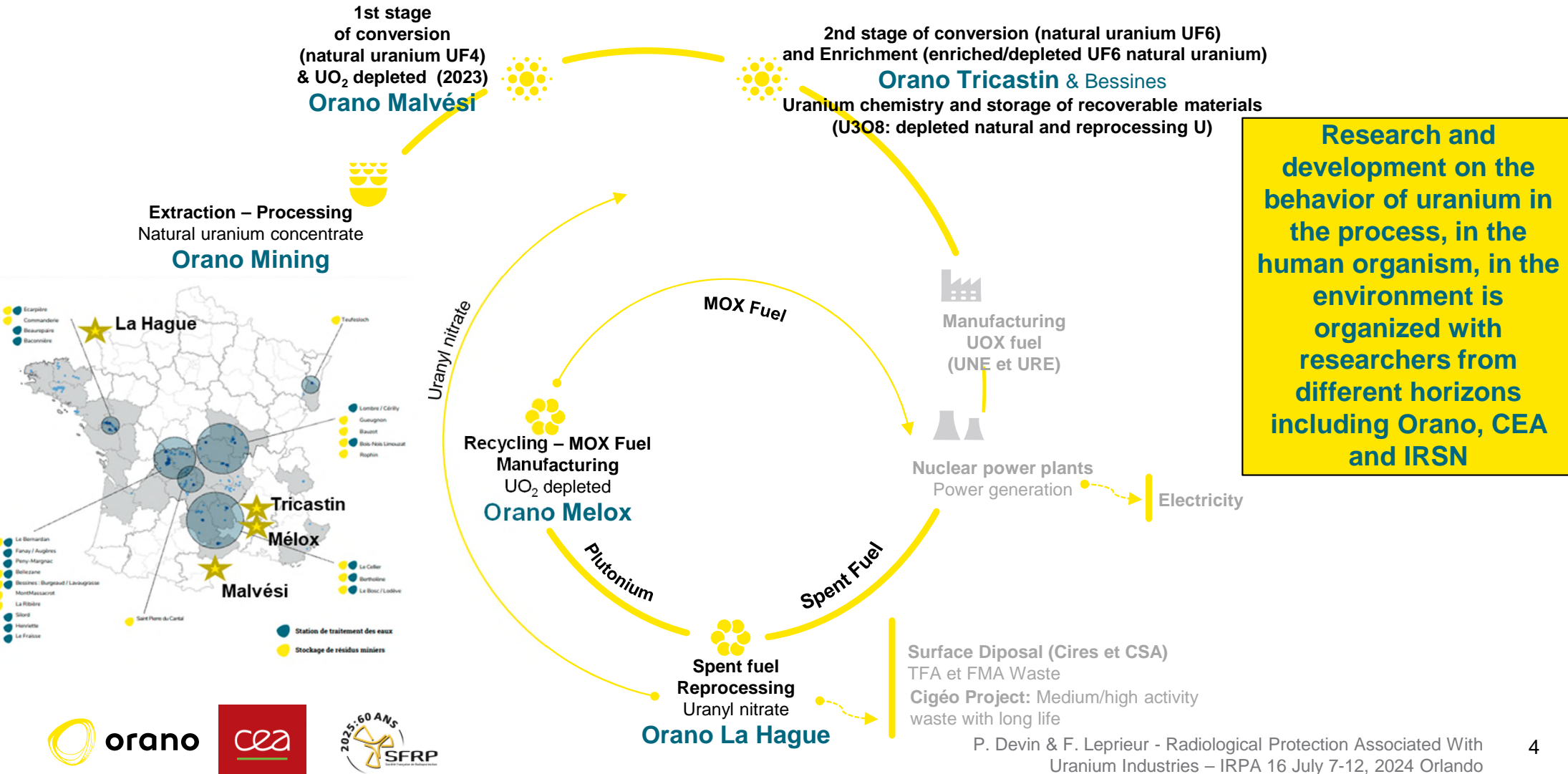
7. Environmental Survey and Dosimetric Impact on the Local Population

8. To conclude

01 • Uranium and Fuel Cycle Industry



01 Uranium, at the heart of the nuclear fuel cycle



P. Devin & F. Leprieur - Radiological Protection Associated With Uranium Industries – IRPA 16 July 7-12, 2024 Orlando

01 Uranium, in several forms

Installations du cycle	Formes physico-chimiques de l'uranium
Mines (y/c Bessines)	$\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$, $\text{U}_2\text{O}_7(\text{NH}_4)_2$, U_3O_8
Orano Malvési	$\text{U}_2\text{O}_7(\text{NH}_4)_2$, U_3O_8 , UO_2 , UF_4
Orano Tricastin	UF_4 , UF_6 (naturel et enrichi), U_3O_8
Framatome Romans	UF_6 , UO_2 ($e < 5\%$), (URE 30ppb)
Réacteurs	Combustible UOX et MOX
MELOX	UO_2 [PuO_2]
Orano La Hague	UO_2 , $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ [$\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$, PuO_2]

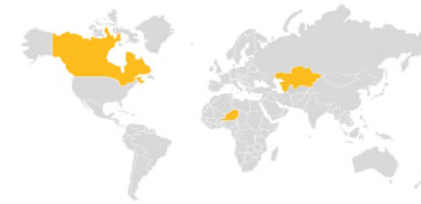
What are the differences between «geological» natural uranium and natural uranium in the cycle? Enriched uranium, depleted uranium, reprocessing uranium, etc.?

02 • Uranium at the Mine





Several methods of production



PROSPECTION
EXPLORATION

0



EXTRACTION

1



Open pit mine



Underground mine



In-situ recovery

ORE

LOW-GRADE SOLUTION

PUTTING INTO
SOLUTION

2



Dynamic leaching



heap leaching



Solutions traitement

URANIUM-RICH SOLUTION

PURIFICATION
AND CONCENTRATION

3



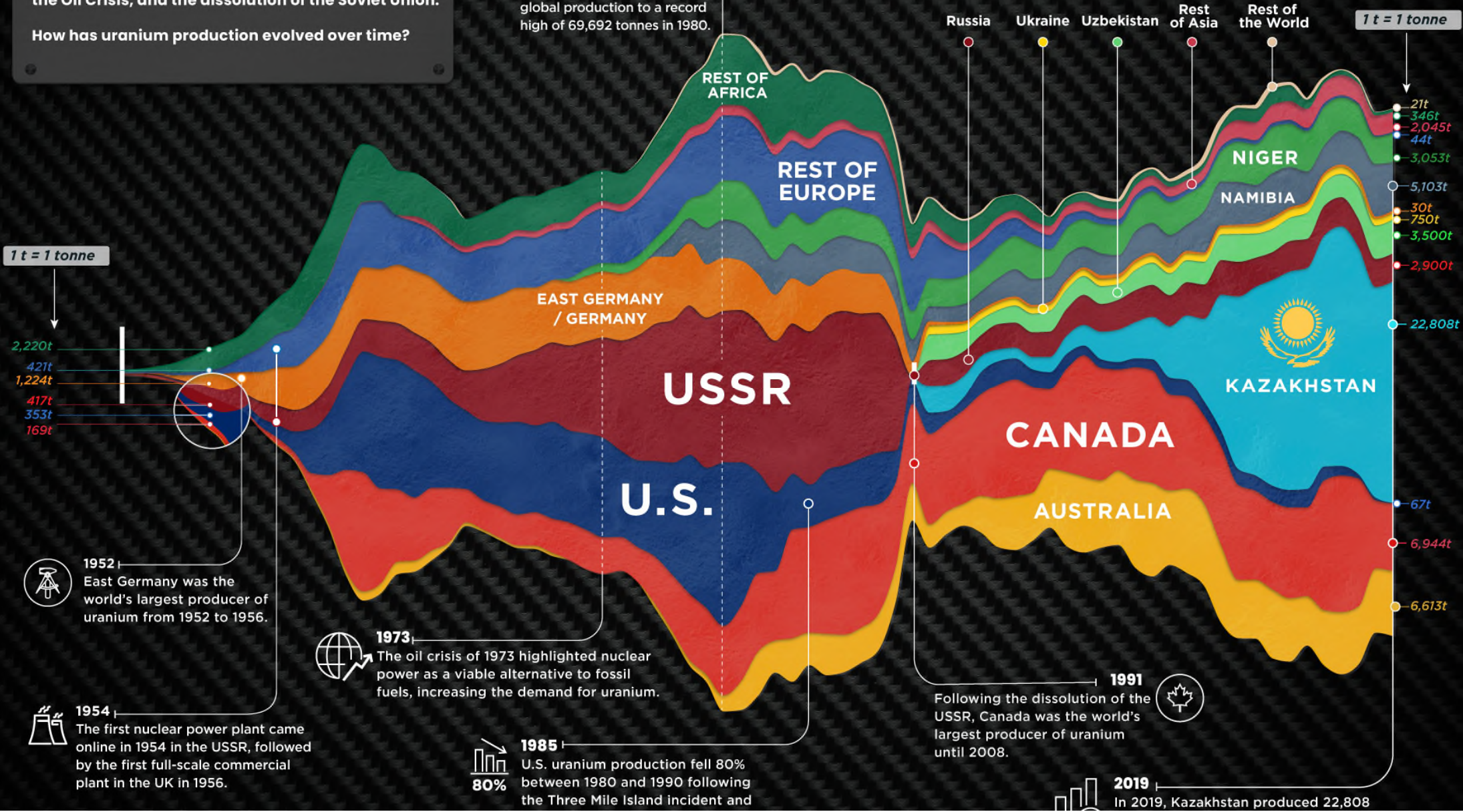
URANIUM CONCENTRATED : U_3O_8 / « YELLOW CAKE »



Throughout history, uranium production has been influenced by world events, including the Cold War, the Oil Crisis, and the dissolution of the Soviet Union.

How has uranium production evolved over time?

the U.S. and USSR peaked during the Cold War, driving global production to a record high of 69,692 tonnes in 1980.

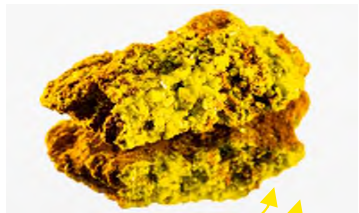


$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$
= 0,72%

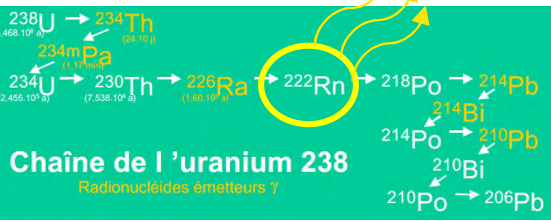
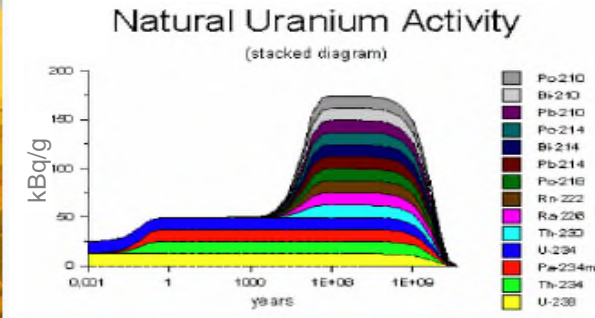
$^{234}\text{U}/^{238}\text{U} = 5,5 \cdot 10^{-5}$
 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U} = 0,725 \cdot 10^{-2}$
 $^{236}\text{U}/^{238}\text{U} = 5 \cdot 10^{-10}$

«geological» uranium will be chemically processed and concentrated: it is then separated from its descendants in secular equilibrium

Cycle Installations	Physicochemical forms of uranium
Mines (y/c Bessines)	U_3O_8 , $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$, $\text{U}_2\text{O}_7(\text{NH}_4)_2$

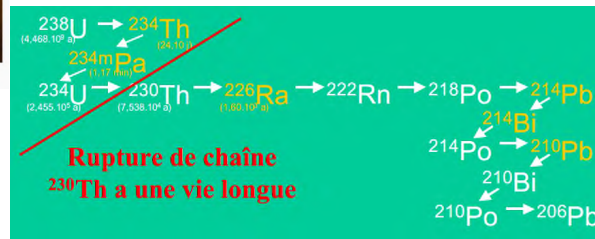


PURIFICATION and CONCENTRATION



The chain heads (U5 and U8) have radioactive periods of the same magnitude as the age of the Earth

Its specific activity increases from > 150 kBq/g (U + EQ descendants) to ~ 50 kBq/g (U + EQ descendants, and 25 kBq/g for U alpha)



03 Uranium at Conversion / Enrichment



03

Objective: to supply the raw material for the manufacture of fuel

MINES

GEOLOGICAL NATURAL URANIUM URANIUM ORE

0,7% Uranium 235 (more energetic)

The only fissile nucleus in its natural state 99,3% U 238,



YELLOW CAKE

In stable powder form (U3O8 oxyd)

0,72% U235



ENRICHMENT SET - GBII

URANIUM 235 CONCENTRATION

0,2% Uranium 235

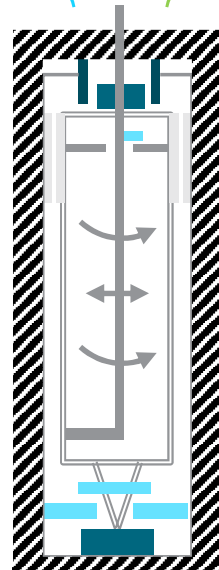


3 à 5% Uranium 235

SORTIE DE L'U APPAUVRI

FEED

SORTIE DE L'U ENRICHI



connected in series: it is a cascade. Under the effect of centrifugal force, U238 molecules concentrate in the periphery while the lightest (U235) migrate to the center. This elementary step of isotopic separation is repeated in a set of centrifuges

ELECTRICITY PRODUCTION



NUCLEAR POWERFUL

Uranium 235 enriched from 3 at 5%



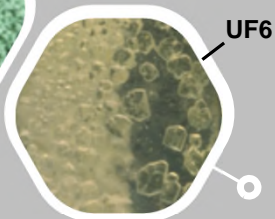
FUEL MANUFACTURING



CONVERSION (CXII, PHILIPPE COSTE)

Addition of 6 fluorine atoms natural uranium after purification

0,72% Uranium 235



03

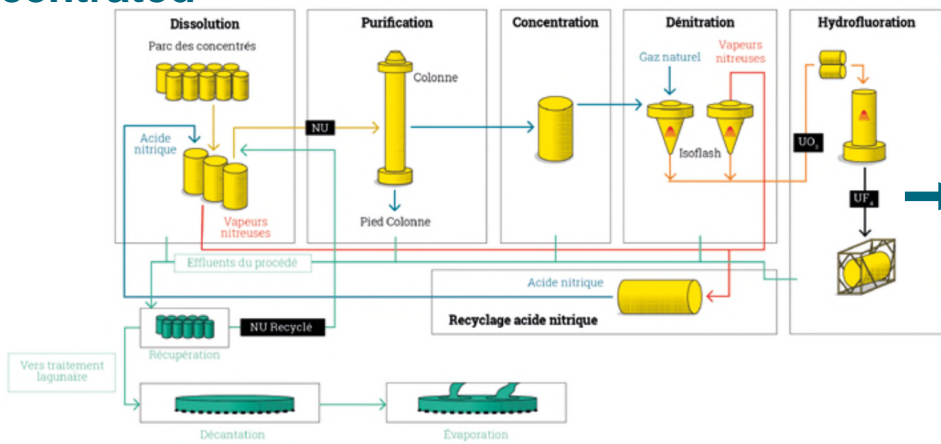
Conversion and enrichment of natural uranium

→ mining concentrates at UF₆

$^{235}\text{U}/^{238}\text{U} < 3,5 \cdot 10^{-3}$	$^{235}\text{U}/^{238}\text{U} : 3,5 \cdot 10^{-2}$
“Absence” de ^{236}U	“Absence” de ^{236}U
“Absence” de Pu	“Absence” de Pu
“Absence” de PF	“Absence” de PF

Mining concentrated

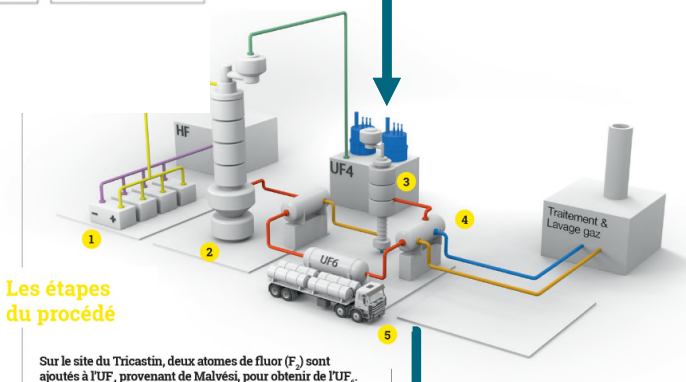
Orano Malvési (CXII)



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

Specific activity 25 kBq/g (uranium alpha activity)

UF₄ natural



Factory Ph Coste (Tricastin)

Specific activity 15 kBq/g

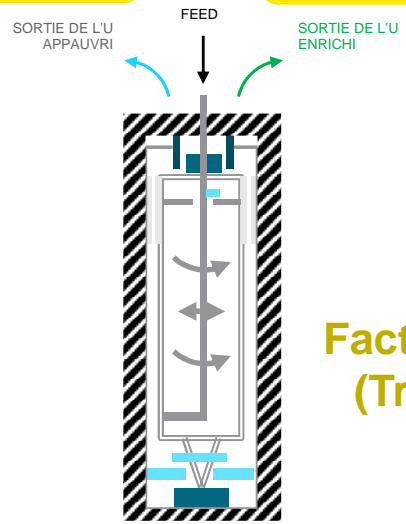
$^{235}\text{U}/^{238}\text{U} \sim 0,2\%$

UF₆ depleted

Specific activity de 80 à 130 kBq/g

$^{235}\text{U}/^{238}\text{U} = 3 \text{ à } 5\%$

UF₆ enriched



Factory GB II (Tricastin)

UF₆ naturel



03



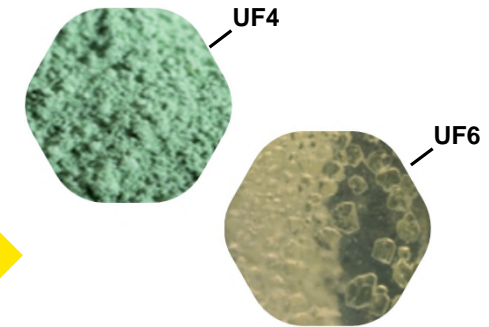
Etats de l'Uranium

Conversion et Enrichissement

 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$

= de 0,2% à 5%

Installations du cycle	Formes physico-chimiques de l'uranium
Mines (y/c Bessines)	U_3O_8 , $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$, $\text{U}_2\text{O}_7(\text{NH}_4)_2$
Orano Malvési	$\text{U}_2\text{O}_7(\text{NH}_4)_2$, U_3O_8 , UO_2 , UF_4
Orano Tricastin	UF_4 , UF_6 (naturel et enrichi), U_3O_8
Framatome Romans	UF_6 , UO_2 (e<5%)
MELOX	UO_2 , PuO_2
Orano La Hague	UO_2 , $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$, $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$, PuO_2



The natural uranium (isotopy 0.72%) at the Conversion will be purified and then associated with fluorine (chemical transformation to UF_6). The chemical risk (decomposition of UF_6 into UO_2F_2 and HF) is added to the radiological risk

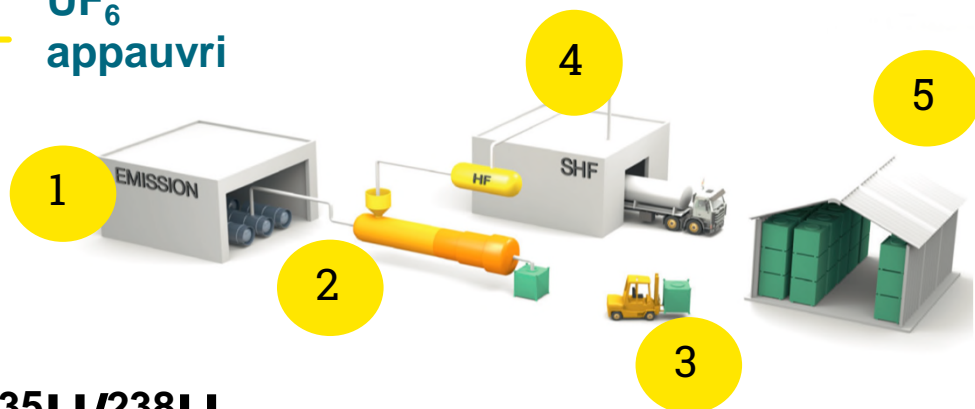
Uranium is enriched with ^{235}U (up to 5%) in the gas phase (UF_6), which will then be defluorinated for fuel manufacture. The depleted UF_6 stream requires a stable form (U_3O_8) to be stored for future recovery. Note the «absence» at this stage of artificial radionuclides, within the limits of the ASTM standard (standard for the marketing of enriched uranium).



Défluoruration de l'UF₆ appauvri

Usine W

UF₆
appauvri



²³⁵U/²³⁸U
~ 0,2%

U₃O₈
appauvri

Uranium naturel entreposé à Bessines sous forme stable U₃O₈, en tant que matières valorisables suivant les conditions technico-économiques.



1

Introduction de l'UF₆

Un cylindre d'UF₆ appauvri est mis en chauffe dans une étuve afin de sublimer l'UF₆*.

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

2

Hydrolyse

L'UF₆ 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 (UO₂F₂).

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'UO₂F₂ 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 U₃O₈).

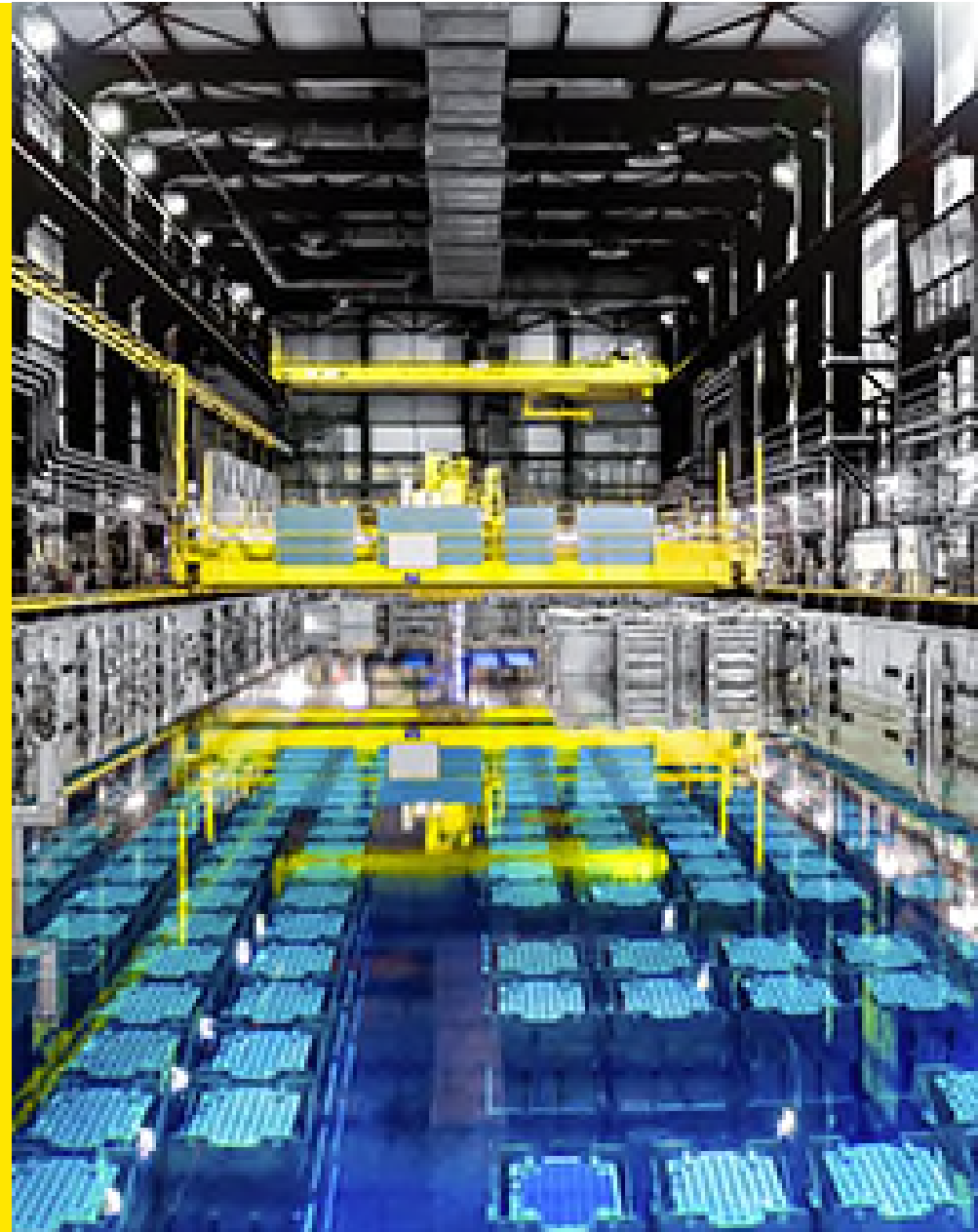
5

Conditionnement U₃O₈

L'U₃O₈ 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'U₃O₈.

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

04 • Uranium in Reprocessing and Recycling



04

Orano La Hague

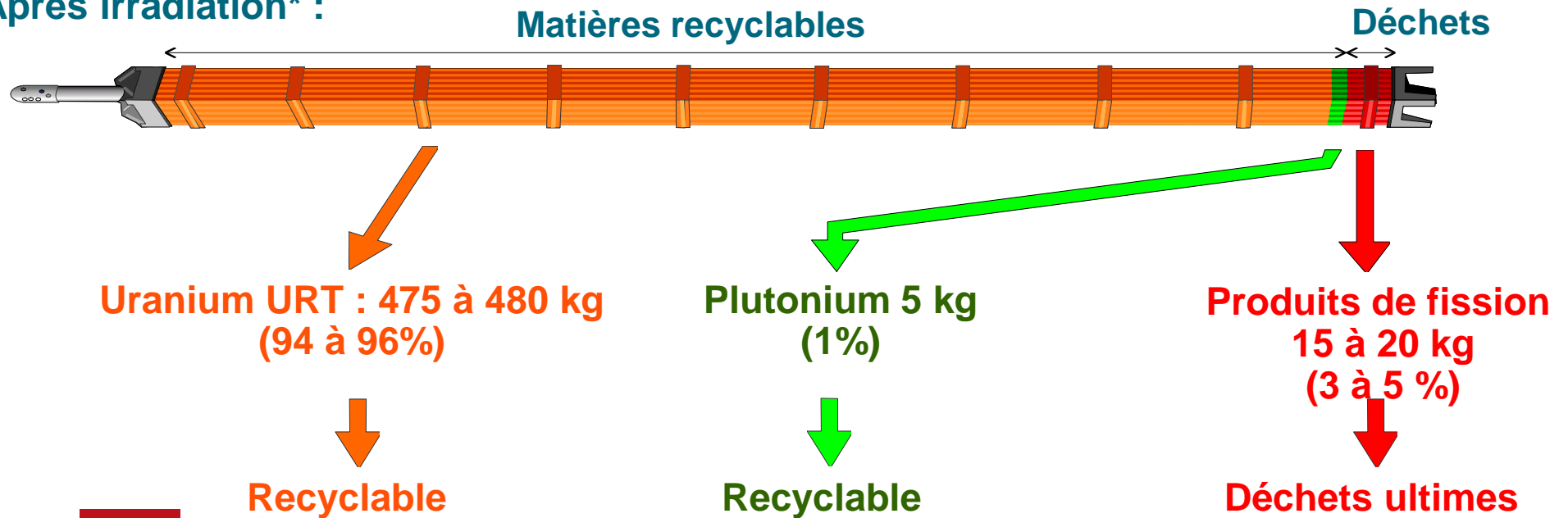
Traitement et recyclage des combustibles usés



Structure du combustible eau légère usé

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

Après irradiation* :



* Pourcentage variable en fonction du taux de combustion

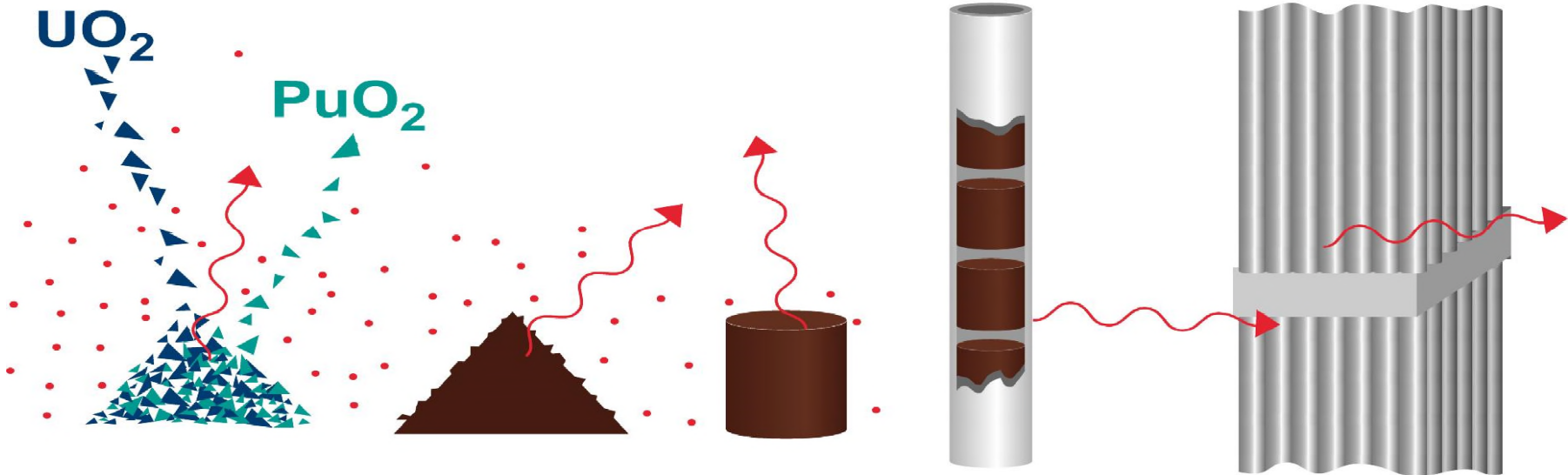
04

Orano MELOX

Fabrication de combustible MOX

MELOX

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



Procédé céramique
Travail en boîte à gants

mélange primaire
(jarre)

homogénéisation

pastille

crayon

assemblage

Contamination, exposition externe
(α , β , γ , X, neutrons)

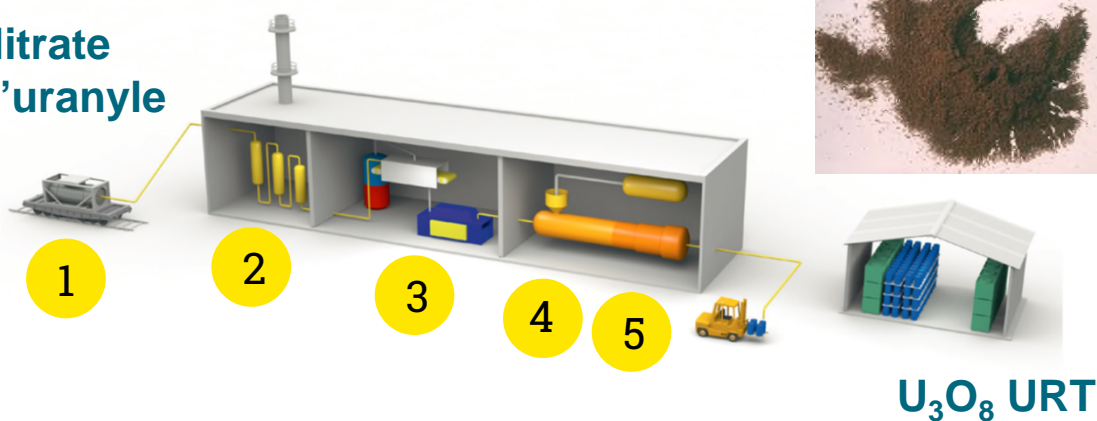
exposition externe
(γ , X, neutrons)



Dénitration de l'URT

Usine TU5 (Tricastin)

Nitrate d'uranyle



Uranium de retraitement entreposé sous une forme stable (U₃O₈), 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 UO₃.

4

Séchage

La pâte d'uranium est séchée jusqu'à obtenir une poudre UO₄.

5

Calcination

La poudre UO₄ (et l'UO₃ issu de l'étape filtration) alimentent un four de calcination pour être convertis en U₃O₈ (Oxyde d'Uranium)



Orano – JT SFRP "au cœur de l'uranium" - 1 & 2 février 2023

Etats de l'URANIUM au Retraitement

$^{234}\text{U}/^{238}\text{U} : 10^{-4}$	239
$^{235}\text{U}/^{238}\text{U} : 0,9 \text{ à } 1\%$	240
$^{236}\text{U}/^{238}\text{U} : 4 \cdot 10^{-3}$	tra

Installations du cycle	Formes physico-chimiques de l'uranium
Mines	U_3O_8 , $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$, $\text{U}_2\text{O}_7(\text{NH}_4)_2$
Orano Malvési	$\text{U}_2\text{O}_7(\text{NH}_4)_2$, U_3O_8 , UO_2 , UF_4
Orano Tricastin	UF_4 , UF_6 (naturel et enrichi); $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$, U_3O_8
Framatome Romans	UF_6 , UO_2 (e<5%)
MELOX	UO_2 , PuO_2
Orano La Hague	$\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$, $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$, PuO_2



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_3O_8 .

$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$

~ 0,9 à 1%

Cet Uranium URT présente une isotopie en ^{235}U proche de 1%, et des traces de radionucléides artificiels : ^{236}U , ^{239}Pu , produits de fission ...

L'Uranium de ReTraitement (URT)

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

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

L'²³⁶U, 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'U₃O₈, 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' U₃O₈ en UF₆ pour enrichissement.

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



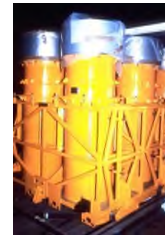
05 • French Logistics Services



French Logistics Services

For each material, there is a specific packaging which is approved by ASN

MX8 Packaging
Fresh MOX



FS47 Packaging
PuO₂



TN12/2 Packaging
Spent Fuel



FCC3 Packaging
Fresh Fuel

TRANSPORTS associés au cycle du combustible en France



TN112 Packaging
Spent MOX



TN GEMINI™ Packaging
Alpha Waste



Petrol Cask
Yellow Cake



Tank UF₄



LR65 Tank NU



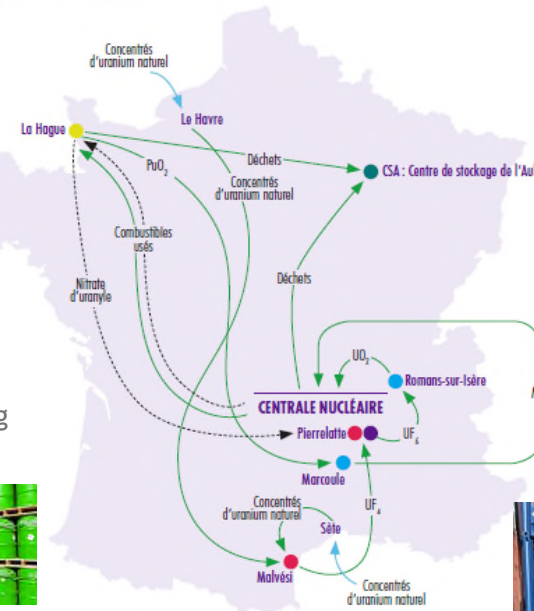
48Y Cylinder
UF₆



30B Cylinder 30B in a
shell COG-OP-30B
UF₆



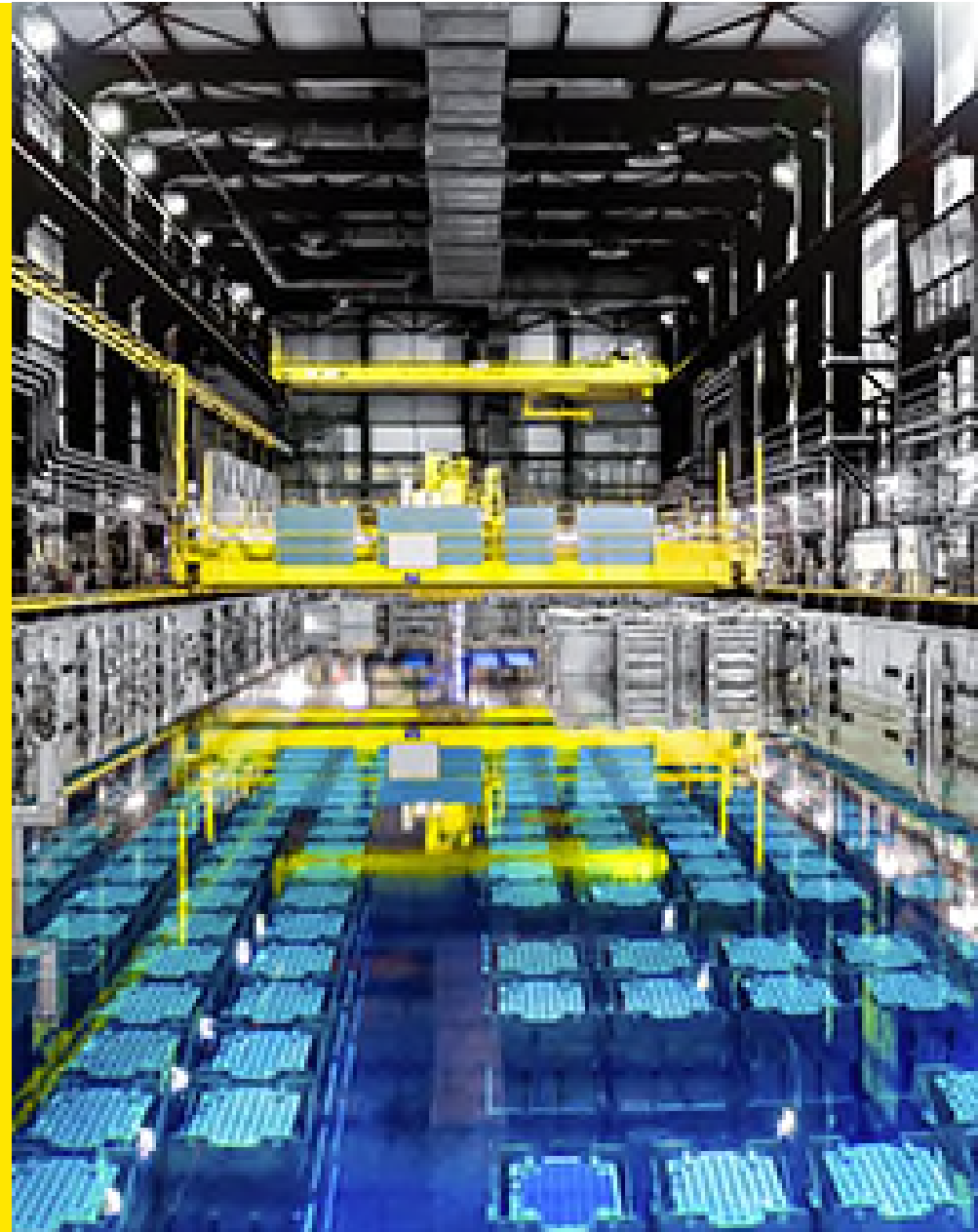
DV 70 Packaging
Depleted Uranium



- Conversion
 - Enrichissement
 - Fabrication
 - Retraitement
 - Stockage de surface
- Par mer
→ Par route
→ Par rail



06 Uranium Toxicity and Radiotoxicity



06

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).

06 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

Données toxicologiques sur l'uranium

OMS eaux de consommation

BadoiT

Rivière, brassage Rhône

Couvre largement la radiotox pour l'uranium



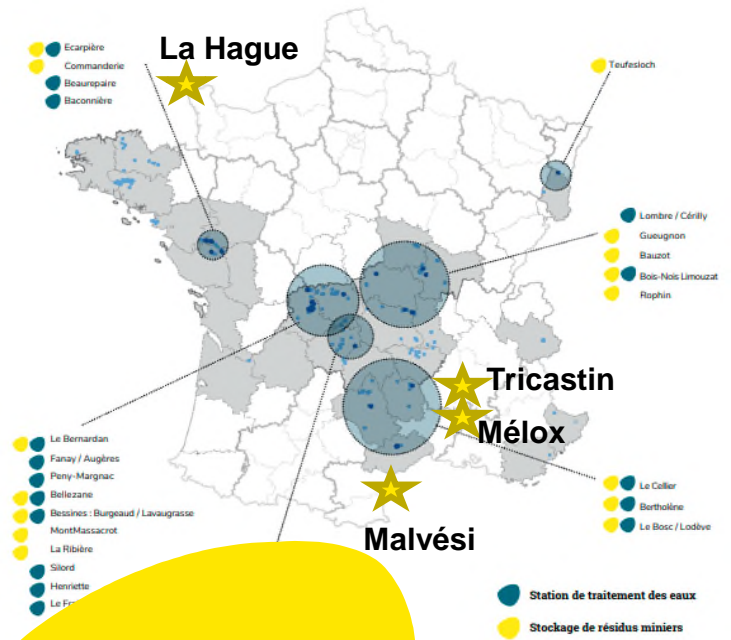
07 • Environmental Survey and Dosimetric Impact on the Local Population

La Hague environmental survey



07 The mining and nuclear sites of Orano are concerned by the monitoring of radioactivity in the environment: the analyses are carried out by the Orano laboratories approved by the ASN

All operators' environmental laboratories are accredited by the ASN



After-Mines France:
6,500 samples
35,000 analyses per year



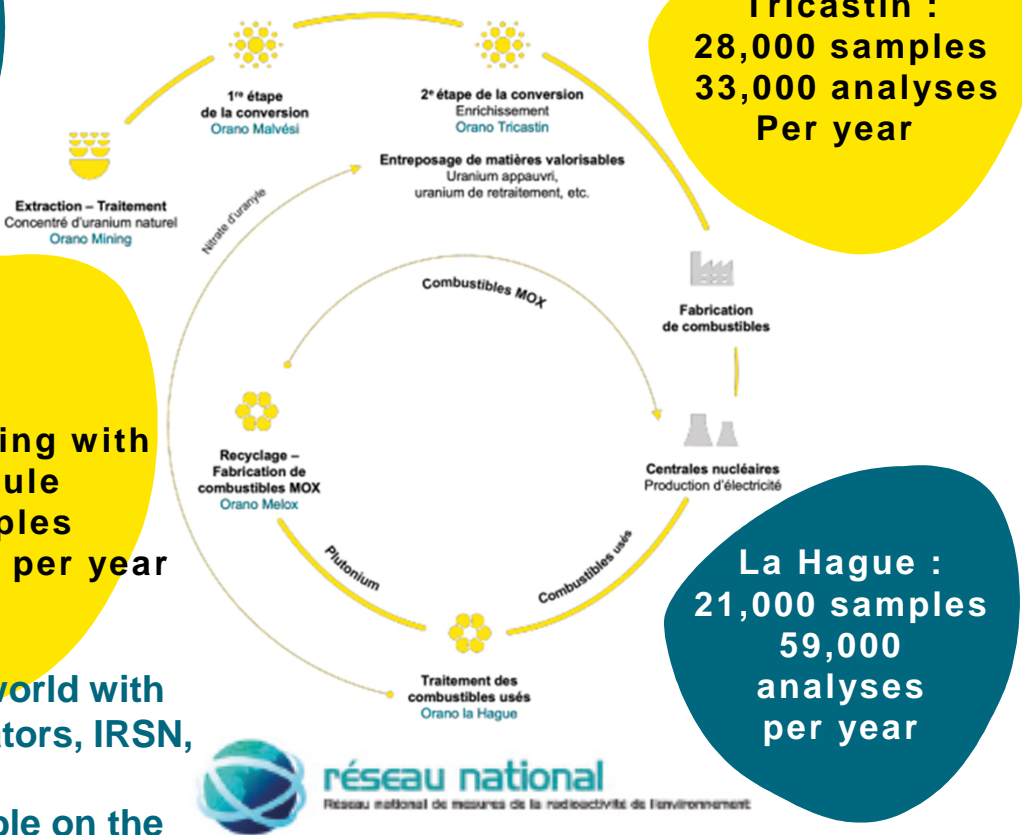
Malvés :
5 000 samples
23 000 analyses per year

Melox :
Shared monitoring with CEA Marcoule
30,000 samples
13,000 analyses per year

A unique organization in the world with monitoring carried out by operators, IRSN, associations, ...

All these measures are available on the Internet:
www.mesure-radioactivite.fr

The same goes for the laboratories of other operators: CEA, EDF and Andra



Tricastin :
28,000 samples
33,000 analyses Per year

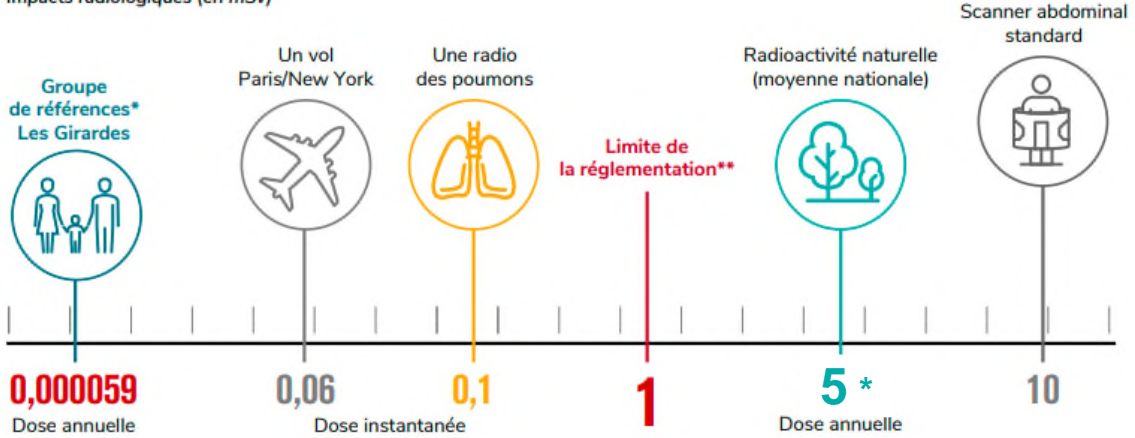
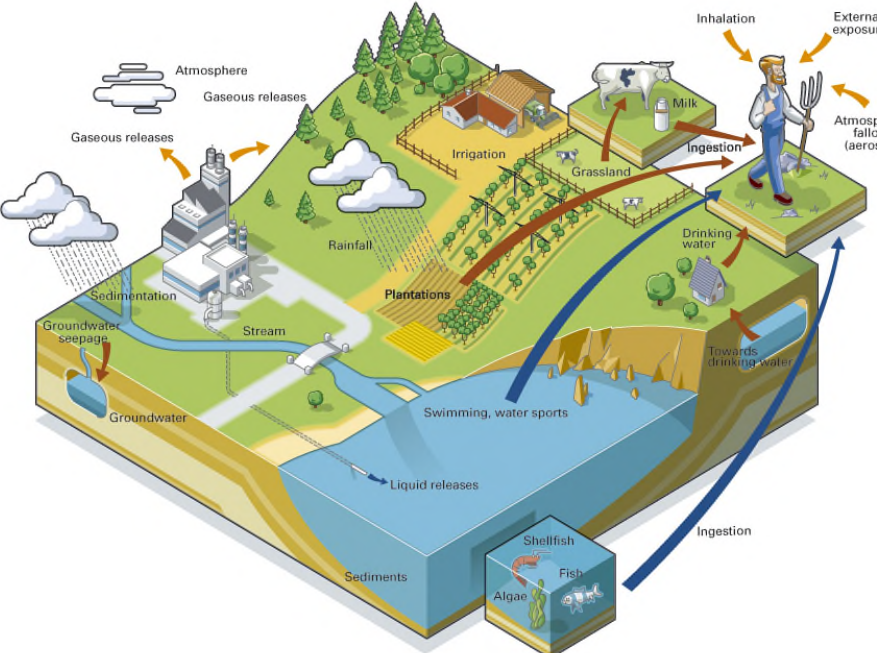
La Hague :
21,000 samples
59,000 analyses per year



07 Dosimetric impact of our facilities reassessed regularly on the basis of actual releases

Illustration with the value of the site Orano Tricastin

Impacts radiologiques (en mSv)



* Source IRSN/2015-00001 Review 2014-2019: Exposure of the French population to ionizing radiation taking into account the new radon dose coefficient of the decree of 16 November 2023

For the Orano La Hague site: 0.0114 mSv in 2021 for the Digulleville farmers reference group and 0.0053 mSv in 2021 for the Goury fishermen reference group.

For the Orano Melox site: the impact in 2021 is < 0.0000001 mSv for the reference group of the inhabitants of Codolet.

For the Orano Malvési site: the impact of the INB Ecrin is 0.00003 mSv and 0.025 mSv for the ICPE.



07 **Review of the radiological state of the French environment from 2018 to 2020 (BR 2018-2020): dosimetric synthesis**

The report concludes that:

The doses likely to be received by the population living around French nuclear installations and estimated from the results of measurements, are very low

The same combination of exposure routes would lead, around La Hague, to a dose of about 10 $\mu\text{Sv}/\text{year}$ (the highest estimated in this balance sheet), but which is 300 times lower than the average dose received annually by the French population outside any influence of a nuclear installation, because of the radiological background noise existing in the french territory

These doses are in good agreement with those estimated by calculation (dispersion and transfer modelling) by the operators of nuclear sites, based on the activities actually released

The knowledge of radioactivity in the environment, based on the various environmental monitoring programs of French nuclear sites, makes it possible to estimate most of the doses likely to be received by the local population

It also provides an element of validation of the calculations made by operators from the releases and the models of dosimetric impact calculations



07 Synthèse dosimétrique du BR 2018 -2020

Sites	BR 2011-2014	BR 2015-2017	BR 2018-2020	Radionucléide et voie d'atteinte
	Dose ($\mu\text{Sv}/\text{an}$)			
La Hague	0,6 à 3,5	1,6 à 5,4 ⁽¹⁾ ; 3,3 ⁽²⁾	1,7 à 4,6 ⁽¹⁾ ; 5,0 ⁽²⁾	⁸⁵ Kr – exposition externe
	0,7	0,4 à 2,9	0,7 à 3,6	¹⁴ C – inhalation et ingestion de denrées
	1,1	0,25 – 2,7	0,3 à 2,6	¹²⁹ I – inhalation et ingestion de denrées
	–	0,02 à 0,2	0,05 à 0,2	⁹⁰ Sr – ingestion de lait
	0,62	0,02 à 0,14 ⁽³⁾	0,04 à 0,25 ⁽³⁾	⁶⁰ Co, plutonium et ²⁴¹ Am – ingestion de denrées marines
	-	< 0,03	0,01 à 0,02	³ H – inhalation et ingestion de denrées
Malvésii	2	–	0,8	Uranium – inhalation
	0,4	–	–	Uranium – ingestion de légumes
	–	0,002	0,003	Uranium – ingestion ponctuelle de 1 litre d'eau
	–	0,01	–	Uranium – ingestion ponctuelle de 1 kg de blé
			3,5 ⁽⁴⁾	Dose externe à proximité immédiate du site
Tricastin	0,05	0,06	0,03	Uranium – inhalation
	0,003	0,003	0,003	Uranium – ingestion ponctuelle de 1 litre d'eau

08 • To conclude



TO CONCLUDE

Uranium is extracted, concentrated, processed, purified and processed in different states in the fuel cycle.

Nearly a dozen forms are identified, with several different «signatures» (from uranium ores in secular equilibrium to uranium U_3O_8 from spent fuel, through natural UF_6 , enriched or depleted in ^{235}U).

Each form meets an industrial need and a specific stage, and each is implemented specific management modalities and adapted to the risks, chemical and/ or radiological.

If you are a member of the SFRP, all the presentations and abstracts (in French) of the uranium technical days of 1&2 February 2023 “At the heart of Uranium” organized by the SFRP are available on the SFRP website :

<https://sfrp.asso.fr/blog/les-manifestations/luranium-dans-tous-ses-etats/>





orano

Donnons toute sa valeur au nucléaire