

## L'amont du cycle ou la vie de l'uranium avant le réacteur...

### 1. Introduction

Après un article sur le retraitement dans les Plumes de Juin 2015, nous reprenons la logique en décrivant, succinctement, l'amont du cycle, depuis la mine d'uranium jusqu'à la fabrication des combustibles.

SGN a été impliquée dès son origine dans cette partie du cycle du combustible, et après une éclipse de quelques décennies où l'aval du cycle était omniprésent, l'amont a refait son entrée en force au début des années 2000, avec en particulier les projets « Imouraren », « Comurhex II » et « GBII » les deux derniers étant sur le point de se terminer aujourd'hui.

L'amont du cycle comprend quatre étapes principales :

- Les mines, et les usines de concentration associées
- La purification et la conversion de l'uranium en vue d'obtenir l'hexafluorure d'uranium (UF<sub>6</sub>)
- L'enrichissement
- La fabrication du combustible, qui ne sera pas traitée dans ce document, mais pourra faire l'objet d'un prochain article

AREVA est présent dans l'ensemble de ces activités.

### 2. L'uranium

Une courte introduction sur l'uranium s'impose [1], [2] :

Cet élément, 92<sup>ème</sup> sur le tableau de Mendeleïev, a été découvert en 1789 (oui c'est une révolution !) par Martin Heinrich Klaproth, chimiste prussien, et doit son nom au fait que la planète Uranus venait d'être découverte (en 1781). Ses propriétés radioactives ne seront mises en évidence qu'en 1896 par Henri Becquerel. C'est un métal gris, de masse volumique 19,05 kg/dm<sup>3</sup>.

Il existe 17 isotopes de l'uranium, tous radioactifs, mais l'uranium naturel n'en contient que trois : l'uranium 238 (<sup>238</sup>U) à 99,28 %, l'uranium 235 : 0,71 % et l'uranium 234 : 0,0054 %. La concentration de l'uranium dans la croûte terrestre est de l'ordre de 2 à 3 ppm, ce qui en fait le 50<sup>ème</sup> élément le plus abondant, similaire au zinc ou à l'étain, mais 4 fois plus abondant que l'argent.

L'Uranium 238 est fertile (indirectement fissile au contact d'un neutron ayant une énergie suffisante) tandis que l'uranium 235 est fissile (susceptible de subir une fission, quelle que soit l'énergie des neutrons qui le percutent). L'uranium est le seul nucléide naturel fissile.

Il est réparti de façon assez homogène dans le monde, ce qui le met à l'abri d'un événement type choc pétrolier ; voici un résumé de la localisation des réserves connues à ce jour (septembre 2015) [3] :

	tonnes U	Pourcentage des réserves mondiales
Australie	1 706 100	29%
Kazakhstan	679 300	12%
Russie	505 900	9%
Canada	493 900	8%

	tonnes U	Pourcentage des réserves mondiales
Niger	404 900	7%
Namibie	382 800	6%
Afrique du Sud	338 100	6%
Brésil	276 100	5%
Etats-Unis	207 400	4%
Chine	199 100	4%
Mongolie	141 500	2%
Ukraine	117 700	2%
Ouzbekistan	91 300	2%
Botswana	68 800	1%
Tanzanie	58 500	1%
Jordanie	33 800	1%
Autres	191 500	3%
<b>TOTAL</b>	<b>5 902 500</b>	

Table 1 : réserves mondiales d'uranium

### 3. Les mines

#### 3.1 Description procédé

L'exploitation minière comprend quatre étapes principales : exploration, mise en exploitation, opération et réhabilitation du site. Nous nous limitons ici à l'exploitation.

Elle se déroule en trois étapes, extraction du minerai, lixiviation et concentration.

L'extraction du minerai peut être réalisée en mine souterraine, ou à ciel ouvert, selon la configuration des dépôts. Les teneurs sont très variables, de quelques centaines de ppm (Namibie par exemple) à plus de 20 % (gisement de Cigar Lake au Canada).

La lixiviation s'effectue ensuite en cuve ou en tas, selon la teneur du minerai, en utilisant le plus souvent de l'acide sulfurique, éventuellement avec du carbonate.

L'extraction du minerai et sa lixiviation peuvent combinés par la technique « In Situ Leaching (ISL) », ou lixiviation in-situ, qui consiste à injecter de l'acide sulfurique ou du carbonate dans la zone à exploiter pour dissoudre l'uranium présent. Cette technique, utilisée en particulier au Kazakhstan, représente aujourd'hui plus de la moitié de la production mondiale. Elle présente cependant des risques de contamination des nappes phréatiques, et ne peut être utilisée que si la géologie du lieu le permet.

On procède ensuite à la concentration de la solution par extraction liquide-liquide, en utilisant une amine tertiaire comme solvant, ou par résine échangeuse d'ions.

L'uranium contenu dans la solution chargée va ensuite être précipité à l'ammoniaque, à l'eau oxygénée, à la soude caustique ou à la magnésie. Le précipité est ensuite séché et en général calciné pour obtenir de l' $U_3O_8$  souvent appelé « Yellowcake ».

Le schéma ci-dessous résume ces opérations.

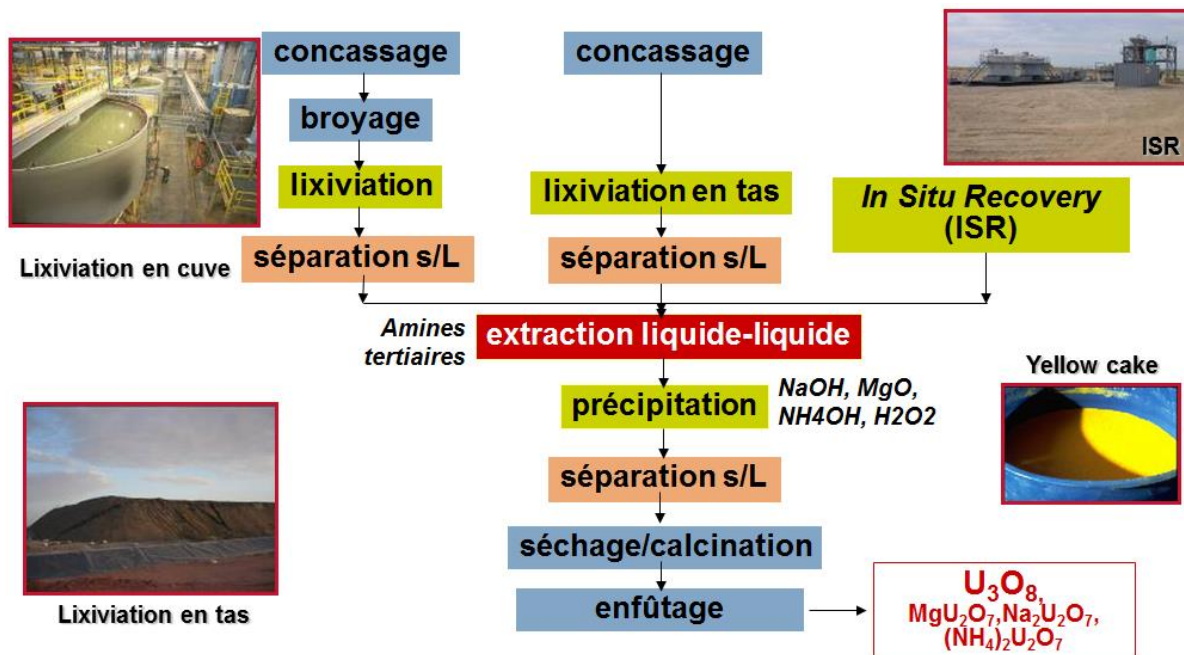


Figure 1 : traitement des minerais d'uranium

L'uranium peut être aussi un sous-produit, par exemple du cuivre ou du phosphate. Ceci représentait en 2014 7 % de la production mondiale.

### 3.2 Quelques données [3]

#### Principaux acteurs

Les principaux vendeurs mondiaux étaient les suivants en 2014 :

Compagnies	tonnes U	%
KazAtomProm	13 801	25
Cameco	8956	16
ARMZ - Uranium One	6944	12
Areva	6496	12
BHP Billiton	3351	6
CNNC & CGN	2684	5
Paladin	2316	4
Navoi	2400	4
Rio Tinto	2296	4
Autres	6973	12
<b>Total</b>	<b>56 217</b>	<b>100%</b>

Table 2 : les vendeurs d'uranium

Sur les 10 dernières années, Kazatomprom et ARMZ (Russie) ont doublé le tonnage, CAMECO et AREVA sont restés à peu près constants, tandis que Rio Tinto passait de la première à la 9<sup>ème</sup> place.

## Principaux producteurs

La production des principales mines est donnée ci-dessous :

Mine	Pays	Propriétaire principal	Type	Production (tU)	% de production mondiale
McArthur River	Canada	Cameco (69.8%)	Souterrain	7356	13
Tortkuduk & Myunkum	Kazakhstan	Katco JV/ Areva	ISL	4322	8
Olympic Dam	Australie	BHP Billiton	Sous-produit / Souterrain	3351	6
SOMAIR	Niger	Areva (63.6%)	Ciel ouvert	2331	5
Budenovskoye 2	Kazakhstan	Karatau JV/Kazatomprom - Uranium One	ISL	2084	4
South Inkai	Kazakhstan	Betpak Dala JV/ Uranium One	ISL	2002	3
Priargunsky	Russie	ARMZ	Souterrain	1970	4
Langer Heinrich	Namibie	Paladin	Ciel ouvert	1947	4
Inkai	Kazakhstan	Inkai JV/Cameco	ISL	1922	3
Central Mynkuduk	Kazakhstan	Ken Dala JSC/ Kazatomprom	ISL	1790	3
Rabbit Lake	Canada	Cameco	Souterrain	1602	3
Budenovskoye 1, 3 & 4	Kazakhstan	Akbastau JV/Kazatomprom - Uranium One	ISL	1594	3
COMINAK	Niger	Areva (34%)	Souterrain	1501	3
Rossing	Namibie	Rio Tinto (69%)	Ciel ouvert	1308	2
Southern Moinkum & Khanzhugan	Kazakhstan	Mining Co Taukent/ Kazatomprom	ISL	1174	2
<b>Total des 15 mines</b>				<b>36 250</b>	<b>64,5%</b>

Table 3 : les principales mines d'uranium

## Prix de l'uranium

Le prix spot de l'uranium est très fluctuant, il a atteint environ 40 \$/lb U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> en 1979, avant de redescendre progressivement à 10 \$/lb U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> de la fin des années 80 à 2003, suite au ralentissement des programmes nucléaires (à la suite de TMI et de Tchernobyl), puis à la mise sur le marché des stocks militaires d'uranium enrichi. Il s'est envolé à près de 100 \$/lb U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> en 2007 (fin des stocks militaires et programmes nucléaires ambitieux en Asie et ailleurs, couplé à la spéculation) et semble à peu stabilisé à 50 \$/lb U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> depuis le ralentissement consécutif à Fukushima.

Les prix sur les contrats à long terme suivent les mêmes tendances, mais avec des variations plus lentes et moins marquées.

### 3.3 Activité minière en France

Des mines d'uranium ont été exploitées en France : dans le Limousin (Bessines, Jouac, La Crouzille) le Languedoc (Lodève), en Bretagne et Vendée (l'Ecarpière), au total environ 200 mines, ayant permis l'extraction de 76 000 tonnes d'uranium. La dernière, Jouac, a été fermée en 2001. Tous ces sites sont réhabilités ou en voie de l'être. Voici une vue du site réaménagé du Puy de l'Age, dans le Limousin, qui a été exploité de 1977 à 1993 et a produit 421 tonnes d'uranium [4] :



### 3.4 L'implication de SGN

SGN a été impliqué ponctuellement dans quelques actions d'expertise au Canada et au Niger dans les années 90 et 2000, puis dans l'ingénierie de la mine d'Imouraren (au Niger) et dans celle de Trekoppje en Namibie, et assistance au démarrage de Katco (Kazakhstan). Cependant l'évolution du marché de l'uranium a conduit à la suspension du projet Imouraren et à l'abandon des projets en Namibie.

## 4 La conversion (et la déconversion)

### 4.1 Description

Pratiquement tous les réacteurs nucléaires utilisent de l'uranium enrichi, en général à 3 à 5 % d' $^{235}\text{U}$ . L'enrichissement (voir chapitre suivant) se fait en phase gazeuse, l'uranium étant sous la forme d'hexafluorure  $\text{UF}_6$ , très pur. L'hexafluorure a la particularité est d'être gazeux dans des conditions proches de la température et de la pression ambiantes.

La conversion consiste donc à transformer l' $\text{U}_3\text{O}_8$  provenant des mines en  $\text{UF}_6$  et à le purifier pour répondre aux spécifications des enrichisseurs.

Deux procédés co-existent : la voie sèche utilisée par Converdyn aux Etats-Unis, et la voie humide utilisée par tous les autres convertisseurs.

Voici le schéma de principe du procédé voie humide utilisé par AREVA dans ses usines de Malvési et Pierrelatte :

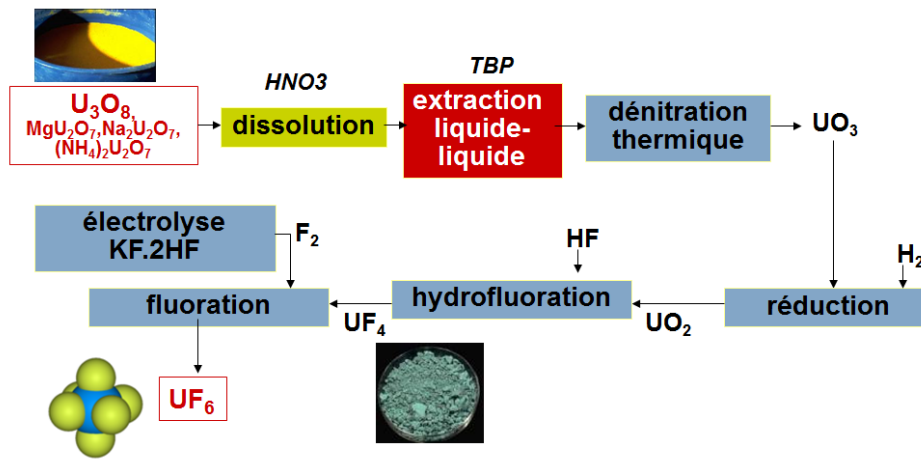


Figure 2 : le procédé de conversion AREVA

Dans la voie sèche, le concentré va directement à la réduction, et la purification est obtenue par distillation des fluorures. C'est un procédé meilleur marché, mais adapté seulement à des concentrés miniers assez purs, et produisant des déchets fluorés en quantité importante.

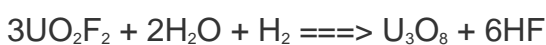
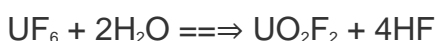
Le marché de la conversion est dominé par 4 acteurs principaux [3] :

Société / localisation	Capacité installée (tonnes U/an)	Production 2015, tU/yan
Cameco, Port Hope, Ontario, Canada	12,500	8750
TVEL Siberian Chemical Combine, Seversk, Russia	12,500	12,500 (estimation)
Comurhex (Areva), Malvesi (UF4) & Tricastin (UF6), France	15,000	10,500
Converdyn, Metropolis, USA	15,000	10,500
CNNC, Lanzhou, China	4000	4000
IPEN, Brésil	100	70
Total	59,100	46,320

Table 4 : les acteurs de la conversion

La déconversion est l'opération qui consiste à transformer l'hexafluorure d'uranium appauvri en oxyde, ou éventuellement en tétrafluorure UF<sub>4</sub> qui est sous forme solide.

Le procédé consiste à vaporiser l'UF<sub>6</sub> en autoclave, en présence de vapeur d'eau, à 700°C. Le HF peut être réutilisé pour la conversion.



AREVA possède la plus grosse et plus ancienne usine (dite « W »), à Pierrelatte, avec une capacité de 20 000 t/an, et une production cumulée de plus de 300 000 t. La Russie dispose d'une usine avec la même

technologie démarrée en 2009. Deux usines ont été démarrées récemment aux Etats-Unis à Portsmouth et Paducah avec des capacités respectives de 13 500 et 18 000 t/an.

## 4.2 L'implication de SGN

A la fin des années 50 Saint-Gobain a été impliqué dans le démarrage de certaines unités de l'usine de Malvési. Après une longue période d'inactivité dans l'amont du cycle, SGN a à nouveau été impliquée dans la R&D du procédé de dénitrification thermique « Isoflash » à partir de 1993, puis dans quelques expertises à Malvési. Enfin à partir du début des années 2000 SGN a été impliquée dans le renouvellement des usines de Malvési et Pierrelatte, appelé projet « Comurhex II ». On notera que la nouvelle unité de dénitrification de Malvési, utilisant le procédé « Isoflash » a démarré en 2015.

SGN a été aussi impliquée dans le choix de procédé de traitement des « lagunes » de Malvési, qui contiennent les impuretés éliminées lors du procédé de purifications et d'importantes quantités de nitrates. A l'heure actuelle les études se poursuivent, mais la date de réalisation n'est pas encore fixée.

Dans le domaine de la déconversion SGN a effectué l'ingénierie de l'usine TENEX à Zelenogorsk à partir de 2005, ainsi que celle de l'usine URENCO en Grande-Bretagne.

## 5 L'enrichissement

### 5.1 Introduction

Comme nous l'avons vu au chapitre 2, seul 0,7 % de l'uranium naturel est fissile. Cela peut suffire pour faire fonctionner un réacteur, ce fut le cas des premiers réacteurs en France (graphite-gaz) qui fonctionnaient à l'uranium naturel. Cependant les taux de combustion (l'énergie produite par tonne de combustible) sont faibles) et il est nécessaire de renouveler fréquemment le combustible. De plus l'emploi d'eau ordinaire comme modérateur n'est pas possible, il faut employer par exemple du graphite, très encombrant, ou de l'eau lourde (cas des réacteurs « Candu »), très onéreuse.

A ce jour l'immense majorité des réacteurs nucléaires utilisent l'eau ordinaire comme modérateur et caloporteur et de l'uranium faiblement enrichi (3 à 5 % en général) comme combustible.

L'enrichissement est l'opération permettant d'augmenter la teneur en isotope fissile : le produit entrant est de l'uranium naturel, et les deux produits sortant sont d'une part de l'uranium enrichi en isotope 235, et d'autre part de l'uranium appauvri dans ce même isotope 235. Il a été développé à l'origine, pendant la seconde guerre mondiale, pour produire de l'uranium très enrichi (plus de 90 %) destiné à la fabrication de bombes nucléaires « A ».

L'efficacité du procédé, dont une des composantes importantes est la teneur en isotope 235 de l'uranium appauvri est un facteur très important comme le montre le tableau ci-dessous :

Kg U enrichi	% 235 U enrichi	% 235 appauvri	Kg U naturel initial	Kg U appauvri
100	4	0,2	760	660
100	4	0,3	925	825
100	4	0,4	1200	1100
100	5	0,3	1175	1075

Table 5 : efficacité de l'enrichissement



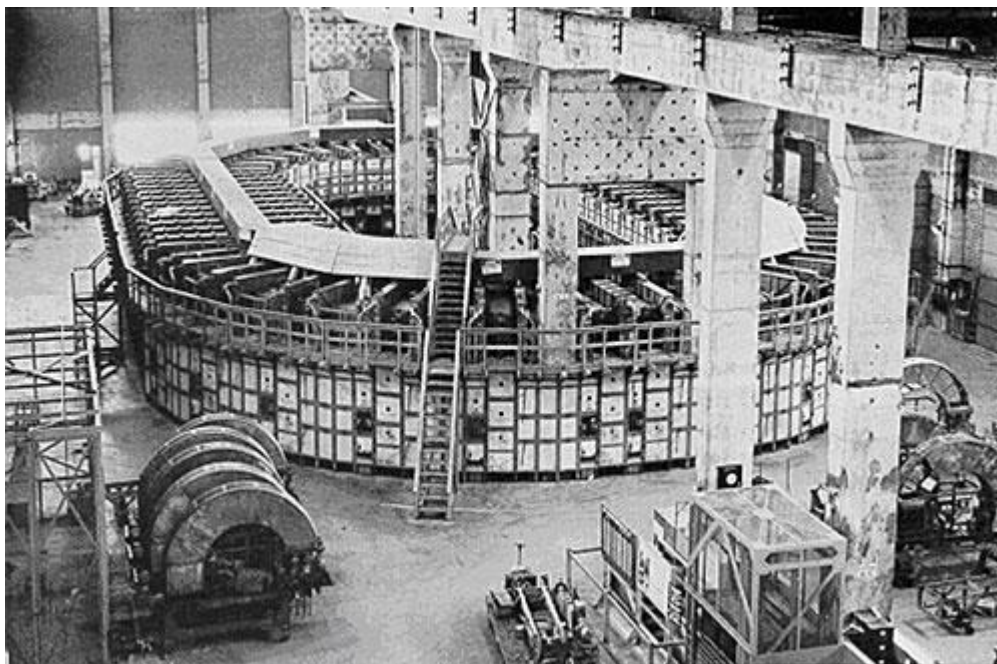
Pour produire une tonne d'uranium enrichi à 4 % il suffit de 760 kg d'uranium naturel si la teneur en appauvri est de 0,2 % alors qu'il en faudra 1200 kg si la teneur en appauvri est de 0,4 %.

Le « travail » d'enrichissement s'exprime en UTS (Unité de Travail de Séparation). Il dépend à la fois du taux d'enrichissement visé et de la teneur de l'uranium et de la teneur de l'U appauvri. Par exemple pour obtenir 1 kg d'uranium enrichi à 5 %, il faut 7,9 UTS si la teneur en appauvri est de 0,25%, et 8,9 UTS si elle est de 0,2 %.

## 5.2 Les procédés d'enrichissement

Nous ne décrivons ici, très succinctement, que les principaux procédés [5]:

- **Séparation électromagnétique** : il présente un intérêt essentiellement historique puisqu'il a servi à enrichir l'uranium de la première bombe atomique « Little Boy » larguée sur Hiroshima. Dans ce procédé l'uranium métallique est vaporisé, puis ionisé. Les cations ainsi produits sont accélérés par un champ électrique, puis déviés par un champ magnétique. La différence de masse entre les isotopes 235 et 238 crée une différence dans le rapport de la charge électrique sur la masse  $e/m$ . Celle-ci conduit à une déviation différentielle qui permet d'enrichir l'uranium. L'opération est réalisée dans un spectromètre de masse de taille industrielle, le calutron. Ce procédé, inefficace et couteux a été abandonné.



Les Calutrons de l'usine Y-12 à Oak Ridge [6]

- **Diffusion gazeuse** : Ce procédé est basé sur la différence de masse, très faible, existant entre les molécules d'hexafluorure d'uranium 235, plus légères que celles d'hexafluorure d'uranium 238. En les faisant filtrer à travers des membranes adaptées, on arrive en multipliant suffisamment le nombre de cycles à obtenir de l'uranium enrichi. C'est un procédé gourmand en énergie.
- **Centrifugation** : Le gaz  $UF_6$  est introduit dans un cylindre tournant à très haute vitesse, sous vide, dans un carter étanche. Les molécules les plus lourdes, sous l'effet de la force centrifuge, sont envoyées à la périphérie du tube tandis que les plus légères ( $U235$ ) migrent vers le centre. Le gaz enrichi en isotope léger uranium 235, au centre du tube, monte. Le gaz enrichi en uranium 238, plus lourd descend.



- **Chemex** : ce procédé, chimique, basé sur des échanges entre l'uranium trivalent en phase aqueuse et l'uranium tétravalent en phase organique. Ce procédé a été étudié par le CEA dans les années 80, le pilote de Pierrelatte a été arrêté en 1989.
- **Enrichissement laser** : basé sur la légère différence de spectre électromagnétique entre les isotopes de l'uranium. Il peut être appliqué à l'uranium métallique vaporisé (procédé SILVA) ou à l'hexafluorure d'uranium (procédé SILEX). Le premier procédé a fait l'objet de développement tant aux Etats-Unis qu'en France, mais a été abandonné, le second a été développé en Australie à partir des années 90 ; une usine est en projet à Paducah aux Etats-Unis.

### 5.3 Les usines

Seuls deux procédés ont atteint la maturité industrielle. La diffusion gazeuse a représenté l'essentiel de la production jusque à la fin des années 90, en particulier aux Etats-Unis et en France (usine Eurodif, renommée Georges Besse I). Mais toutes ces usines de diffusion sont aujourd'hui arrêtées et la production est maintenant entièrement assurée par le procédé de centrifugation, beaucoup moins gourmand en énergie et dont l'efficacité et la fiabilité a été considérablement améliorée avec l'utilisation de nouveaux matériaux.

A ce jour les principaux enrichisseurs mondiaux sont :

URENCO avec les usines de Capenhurst en Grande Bretagne, Gronau en Allemagne, Almelo aux Pays-Bas et du Nouveau Mexique aux Etats-Unis, dont la capacité cumulée est de 18 MUTS.

AREVA avec l'usine Georges Besse II (basée sur la technologie URENCO) à Pierrelatte, d'une capacité de 7,5 MUTS.

TENEX avec plusieurs usines en Russie, et une capacité cumulée supérieure à 20 MUTS.

A côté de ces trois « majors », JNFL dispose au Japon à Rokkasho d'une usine de 1 MUTS, et CNNC en Chine a un programme ambitieux pour augmenter sa capacité d'environ 2 à 3 MUTS aujourd'hui à près de 10 MUTS en 2020 [7].

### 5.4 L'implication de SGN

L'ingénierie de l'usine Eurodif, mise en service en 1979, a été réalisée par USSI, absorbée par SGN au début des années 90.

SGN a ensuite assuré l'ingénierie de l'usine Georges Besse II (GBII) à partir de 2004, puis celle du projet EREF, usine sœur de GBII aux Etats-Unis, projet suspendu à ce jour.

SGN est également impliquée dans le démantèlement de l'usine Georges Besse I.

#### Références :

[1] Propriétés de l'uranium : <http://www.techno-science.net/?onglet=glossaire&definition=3572>

[2] Fiche IRSN : [http://www.irsn.fr/FR/professionnels\\_sante/documentation/Documents/IRSN-fiche\\_uranium-naturel.pdf](http://www.irsn.fr/FR/professionnels_sante/documentation/Documents/IRSN-fiche_uranium-naturel.pdf)

[3] Site de World Nuclear Association : <http://www.world-nuclear.org/information-library/nuclear-fuel-cycle.aspx>

[4] Restaurer le milieu naturel <http://www.areva.com/FR/groupe-2207/restaurer-le-milieu-naturel.html>

[5] Procédé d'enrichissement de l'uranium [https://fr.wikipedia.org/wiki/Enrichissement\\_de\\_l%27uranium](https://fr.wikipedia.org/wiki/Enrichissement_de_l%27uranium)  
<http://www.aveva.com/FR/activites-822/centrifugation-et-diffusion-gazeuse-2-procde-pour-sparer-u235-et-u238.html>

[6] Energie et sécurité - Uranium enrichi <http://www.ieer.org/ensec/no-31/no31fnc/uraninum.html>

[7] China's uranium enrichment capacity  
<http://belfercenter.ksg.harvard.edu/files/chinasuraniumenrichmentcapacity.pdf>