

Récupération de l'uranium à partir des minerais uranifères

par D.C. Seidel*

Le développement de l'industrie de l'extraction de l'uranium et du traitement du minerai d'uranium a un caractère exceptionnel. En l'espace d'un peu moins de dix ans, cette activité qui était pratiquement inexistante est devenue une grande industrie hydrométallurgique; aucune autre branche du traitement des minerais n'a connu un développement aussi rapide. Non seulement cette industrie a grandi très vite, mais encore elle a joué un rôle de pionnier dans la mise au point d'opérations hydrométallurgiques telles que la lixiviation, la séparation solide-liquide, l'échange d'ions et l'extraction par solvants.

Jusqu'au début des années 1940, l'uranium n'était qu'un sous-produit des industries du vanadium et du radium et la consommation mondiale totale ne dépassait pas quelques tonnes d'uranium par an. Au début des années 1950, la production mondiale avait atteint plus de 800 tonnes par an, et elle a continué à augmenter depuis. En 1979, plus de 50 usines de traitement du minerai d'uranium étaient en service et ont produit environ 38 000 tonnes d'uranium. Elles ont traité plus de 65 millions de tonnes de matériau composé, pour moitié environ de minerai nouveau, et pour le reste de résidus provenant d'opérations telles que l'extraction de l'or en Afrique du Sud.

Jusqu'au début des années 1950, le minerai d'uranium provenait presque entièrement de mines souterraines. Au cours des années qui ont suivi, la quantité produite à partir de mines à ciel ouvert a augmenté sans cesse et à l'heure actuelle ces mines produisent davantage de minerai que les mines souterraines. Néanmoins, la production d'uranium des mines souterraines dépasse encore celle des exploitations à ciel ouvert parce que la teneur du minerai provenant des mines souterraines est plus élevée.

Le choix d'un système optimal d'extraction pour un gisement donné peut être très complexe. Il faut tenir compte de nombreux facteurs, profondeur du minerai, dimensions du gisement, teneur du minerai, nature du sol, topographie de la surface, etc. Il faut étudier individuellement le cas de chaque gisement avant de pouvoir mettre au point un plan d'extraction. Certaines mines souterraines sont situées à moins de 30 m de la surface et inversement certaines mines à ciel ouvert sont exploitées à des profondeurs de près de 150 m. A l'heure actuelle, une mine souterraine, celle du Mount Taylor aux Etats-Unis, est exploitée à une profondeur de 1000 m et les mines d'or d'Afrique du Sud, qui produisent de l'uranium en tant que sous-produit, sont encore plus profondes.

* Membre de la Section des matières nucléaires et du cycle du combustible nucléaire.

La dimension des mines d'uranium varie aussi considérablement. Certaines petites mines qui sont propriété privée produisent moins de 50 tonnes de minerai par jour, tandis que la mine à ciel ouvert de Rossing en Namibie produit 40 000 tonnes de minerai par jour.

L'uranium est présent dans des formations géologiques très diverses et presque tous les types de techniques d'extraction ont été utilisés. L'industrie de l'uranium a également mis au point de nouvelles techniques pour répondre à des besoins particuliers. La diversité des gisements de minerai d'uranium a une incidence sur les techniques de traitement.

Etant donné la rapidité du développement de l'industrie du traitement du minerai d'uranium, l'échange de renseignements sur les techniques de traitement a pris une grande importance. L'Agence et l'Organisation des Nations Unies ont joué un rôle important dans ce domaine. Les conférences internationales des Nations Unies sur l'application de l'énergie atomique à des fins pacifiques, qui ont eu lieu à Genève en 1955 et en 1958, ont donné lieu aux premières publications importantes sur le traitement du minerai d'uranium. Avant ces conférences, ce qui touchait au traitement de l'uranium était tenu secret. L'Agence a continué à recueillir et publier des renseignements techniques sur l'évolution de l'industrie du traitement et du raffinage de l'uranium dans le monde. Les publications actuellement disponibles sont indiquées ci-après.

Opérations de traitement du minerai

Après extraction du minerai d'uranium, l'étape suivante du cycle du combustible nucléaire consiste à extraire par des procédés chimiques l'uranium du minerai de manière à obtenir un produit partiellement

Publications de l'Agence sur le traitement du minerai d'uranium

- 1980 Production de gâteau jaune et de fluorures d'uranium (comptes rendus de la réunion d'un groupe consultatif — Paris, 5-8 juin 1979).
- 1980 Importance de la minéralogie dans la mise au point de schémas pour le traitement des minerais d'uranium (Collection Rapports techniques n° 196).
- 1976 Traitement du minerai d'uranium (comptes rendus d'une réunion de groupe consultatif — Washington, D.C., 24-26 novembre 1975).
- 1970 La récupération de l'uranium (comptes rendus d'un colloque — Sao-Paulo, 17-21 août 1970).
- 1967 Traitement des minerais d'uranium à faible teneur (comptes rendus d'un groupe d'étude — Vienne, 27 juin-1er juillet 1966).

raffiné contenant au moins 65% d'uranium. Ce produit est normalement appelé *gâteau jaune*. Le traitement du minerai d'uranium repose essentiellement sur des opérations hydrométallurgiques telles que la lixiviation, l'extraction par solvants et la précipitation. La séparation fondée sur des propriétés physiques telles que la densité spécifique ou les caractéristiques magnétiques est sans intérêt pratique pour presque tous les minerais d'uranium. Le gâteau jaune est expédié à des installations de raffinage où il est à nouveau transformé de manière à produire des composés d'uranium de pureté nucléaire.

Lixiviation avec attaque acide: Les minerais d'uranium varient sensiblement suivant les gisements et chaque installation de traitement doit être conçue en fonction des caractéristiques spécifiques du minerai traité. Néanmoins, dans ses grandes lignes le procédé utilisé est le même pour de nombreux minerais: des variantes du procédé par attaque acide reproduit à la figure 1 ont été utilisées dans plus de vingt usines de traitement. Les stades essentiels de ce procédé sont les suivants:

- Concassage et broyage;
- Lixiviation;
- Séparation solide/liquide et lavage;
- Extraction par solvants ou échange des ions;
- Précipitation et séchage du gâteau jaune.

Le minerai sortant de la mine, dont les fragments peuvent dans certains cas mesurer 25 cm ou plus de diamètre, est concassé puis broyé jusqu'à atteindre la consistance du sable fin. Etant donné que la plupart des minerais actuellement traités contiennent environ 0,02% à 0,2% d'uranium récupérable, il est nécessaire de traiter de 500 à 5000 kilogrammes de minerai pour chaque kilogramme d'uranium récupéré. Pour produire la même quantité d'uranium, la dimension des usines de traitement peut donc varier d'un facteur de 10.

La plupart des usines de traitement du minerai d'uranium utilisent le broyage humide, et les boues obtenues sont dirigées sur un circuit de lixiviation où elles reçoivent une addition d'acide sulfurique. La consommation d'acide ne dépend pas de la teneur du minerai en uranium, mais des constituants de la gangue: les minéraux carbonatés sont souvent les principaux consommateurs d'acide. La consommation totale d'acide peut aller de 10 kg de H_2SO_4 par tonne de minerai à plus de 100 kg/tonne. Les temps de lixiviation varient de quelques heures à plus de 24. Pour certains minerais, le temps de lixiviation peut être considérablement réduit par chauffage de la pulpe: dans plusieurs usines de traitement, on utilise des températures comprises entre 40°C et 60°C. Avec de nombreux minerais, il est nécessaire d'ajouter un oxydant, bioxyde de manganèse ou chlorate de sodium par exemple, pour extraire l'uranium de façon satisfaisante. L'oxydant est nécessaire car la plupart des minerais contiennent de l'uranium sous la forme réduite ou quadrivalente. L'uranium réduit est peu soluble dans les solutions acides. L'oxydant est l'agent qui permet de faire passer l'uranium à l'état hexavalent, où il est facilement soluble. Les rendements sont normalement compris entre 85% et 95% et les solutions obtenues sont des solutions de sulfates acides relativement diluées mais complexes contenant une grande variété d'ions. Les ions métalliques généralement présents sont les suivants: uranium, fer, aluminium,

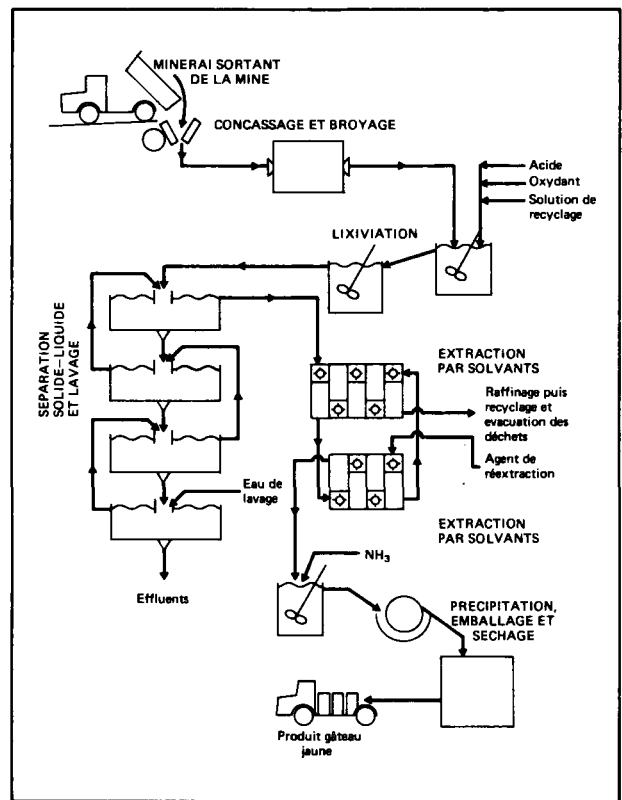


Figure 1. Schéma du traitement du minerai d'uranium.

magnésium, vanadium, calcium, molybdène, cuivre et parfois sélénium. La concentration de l'uranium est normalement de 1 à 2g/l; les concentrations des autres ions peuvent varier considérablement suivant la composition du minerai traité.

Après lixiviation, les solides et les liquides sont séparés, et les solides sont lavés pour permettre la récupération de la solution de lixiviation adhérente. Dans la plupart des usines de traitement, les opérations de lavage se font dans des circuits épaisseurs à contre courant. Les techniques d'épaississement et les floculants mis au point pour les usines de traitement du minerai d'uranium sont maintenant largement utilisés dans d'autres industries hydrométallurgiques. Les floculants sont des agents chimiques qui peuvent agglomérer les particules en suspension en agrégats qui se déposent beaucoup plus rapidement que les particules séparées. L'emploi de floculants réduit donc la dimension des épaisseurs nécessaires pour le circuit de lavage. Le floculant permet aussi de prélever en surface des produits plus épurés.

Pour séparer l'uranium des solutions de lixiviation, on a recours à l'extraction par solvants ou échange d'ions. L'industrie de l'uranium a été la première industrie hydrométallurgique à faire largement appel à ces deux opérations. Dans le procédé d'extraction par solvants, l'agent actif est généralement un sel aminé organique dilué dans du kérosène, qui peut extraire sélectivement les ions d'uranium en formant un complexe organique qui est insoluble dans l'eau. La phase organique est séparée de la phase aqueuse par des techniques de dépôt et de décantation continues. L'uranium est alors ré-extrait du complexe organique par mise en contact avec

Le cycle du combustible nucléaire

une solution de sel inorganique, comme le chlorure de sodium ou le sulfate d'ammonium. Le gâteau jaune est précipité à partir de la solution de réextraction et le produit solide obtenu est séché et emballé pour expédition à une installation de raffinage.

Ce schéma général a fait l'objet de nombreuses modifications. Le procédé spécifique choisi dépend d'une combinaison de facteurs tels que les caractéristiques du minerai, la rentabilité et les considérations liées à l'environnement.

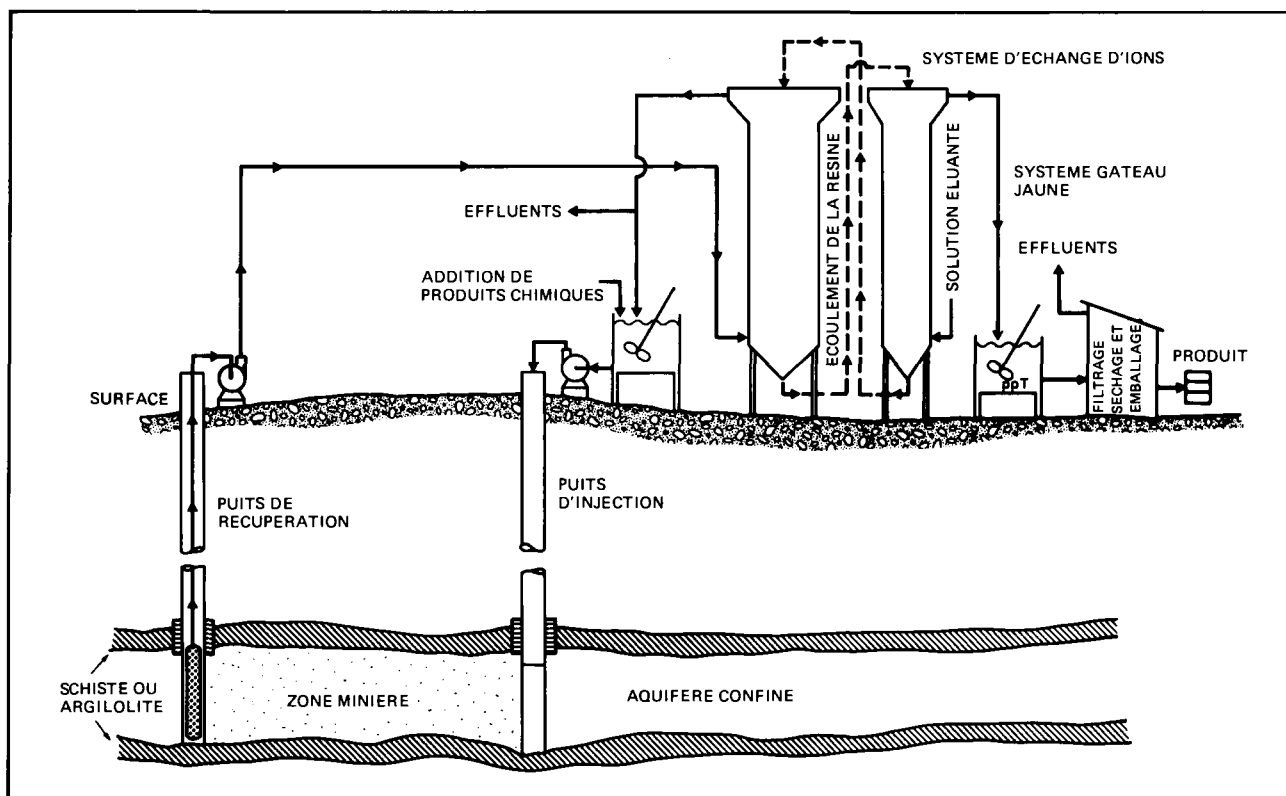
Lixiviation avec attaque alcaline: Un certain nombre d'usines de traitement du minerai d'uranium utilisent des circuits de lixiviation avec attaque alcaline. Ce procédé est utilisé lorsque le minerai a une forte teneur en argile et que l'attaque acide n'est donc pas économique. L'attaque alcaline des minerais d'uranium est possible parce que, dans des conditions d'oxydation, des complexes de carbonates d'uranium anioniques solubles peuvent se former. Les solutions de lixiviation alcaline les plus courantes sont des mélanges de carbonate de sodium et de bicarbonate de sodium. Pour obtenir des rendements raisonnables, il faut des températures élevées et des systèmes sous pression sont utilisés dans presque toutes les installations de ce type de manière qu'il soit possible d'atteindre des températures supérieures à 100°C. L'uranium est récupéré dans les solutions de lixiviation par addition d'hydroxyde de sodium pour élever le pH. Ceci détruit le complexe anionique et l'uranium précipite sous forme de gâteau jaune de diuranate de sodium, qui est lavé, séché et emballé pour l'expédition.

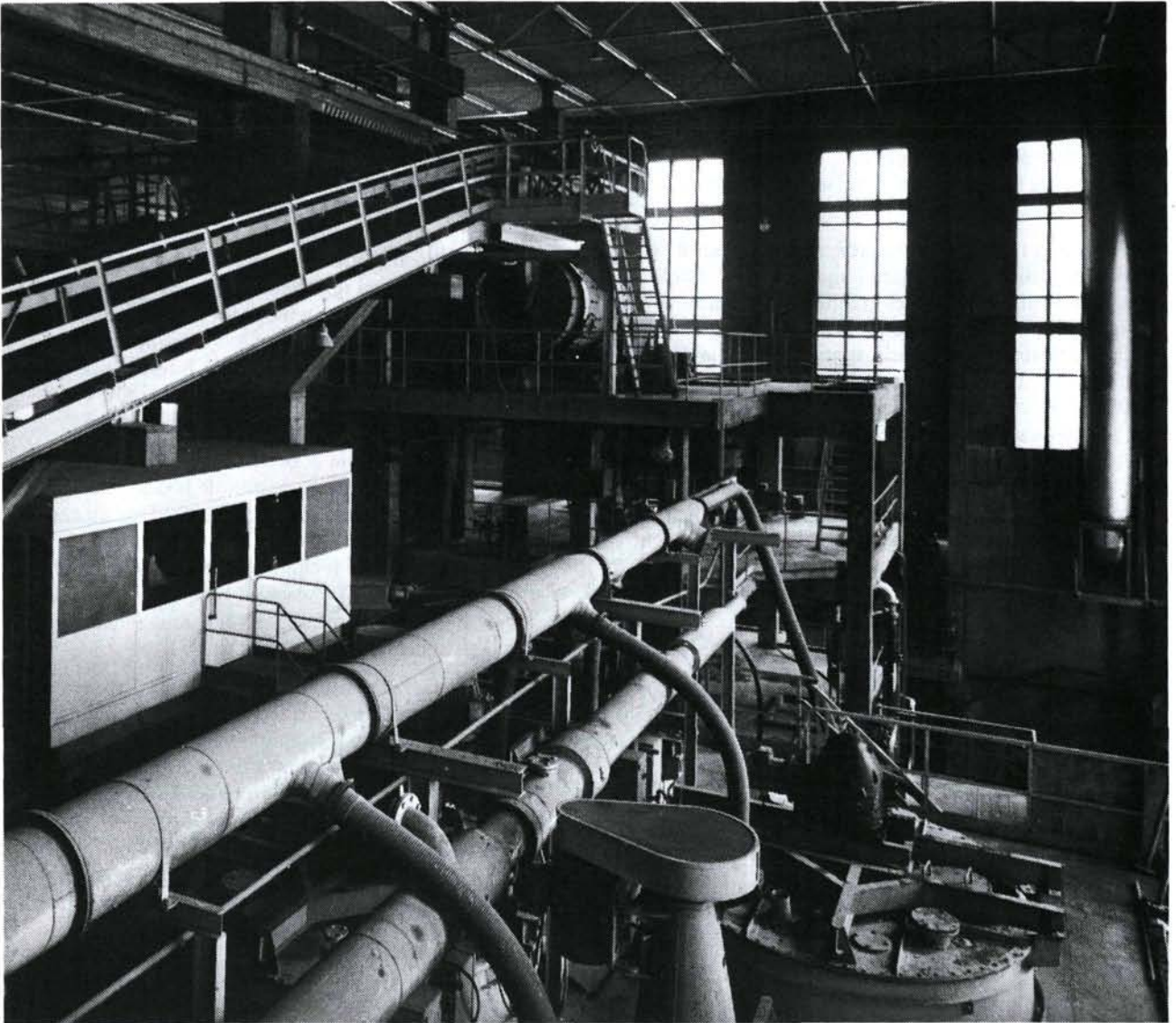
Lixiviation *in situ*: C'est l'une des plus récentes techniques d'extraction de l'uranium. Son application à l'échelle industrielle s'est faite en grande partie au cours des cinq dernières années dans la partie sud du Texas, aux Etats-Unis. Tel qu'il est pratiqué aux Etats-Unis, le procédé *in situ* consiste à injecter une solution adéquate dans une zone minière située au dessous de la table d'eau. La solution contient un oxydant ainsi que des produits chimiques qui peuvent former des complexes d'uranium et mobiliser ainsi ce métal. Les solutions sont pompées jusqu'à la surface où l'uranium est récupéré par échange d'ions. La figure 2 présente un schéma général de ce procédé.

Presque toutes les opérations de lixiviation *in situ* à l'échelle industrielle ont été associées à des aquifères gréseux peu profonds (moins de 200 mètres au dessous de la surface) confinés par des schistes ou argilolites peu perméables. Souvent, le rapport entre les dimensions, la teneur et la profondeur du gisement était tel que les techniques d'extraction en découverte ou souterraine n'étaient pas économiques.

On a utilisé aussi bien des solutions carbonatées que des solutions acides. Le choix de la solution dépend à la fois des caractéristiques chimiques et physiques de l'horizon du minerai. Ainsi, un agent de lixiviation donné peut mobiliser l'uranium de manière satisfaisante, mais il ne peut être utilisé car il risque d'avoir des effets contraires sur la perméabilité de l'horizon du minerai. On utilise des solutions d'acide sulfurique diluées pour l'attaque acide, et dans la plupart des cas d'attaque alcaline des solutions d'ammonium, de sodium ou de bicarbonate de potassium diluées (1 à 3 g/l). La

Figure 2. Schéma général de la lixiviation *in situ*.





L'intérieur de l'usine de traitement de minerai de l'Ecarpière en Vendée (France).

composante cation est importante car elle peut modifier sérieusement la perméabilité de la couche de minerai. Dans certains gisements contenant des argiles du type montmorillonite, la présence d'ions sodium a provoqué un gonflement de l'argile et réduit la perméabilité pratiquement à zéro.

Dans presque toutes les opérations de lixiviation *in situ*, il a fallu une addition d'oxydants pour mobiliser l'uranium. Le peroxyde d'hydrogène et l'oxygène sont les plus fréquemment employés car ni l'un ni l'autre n'introduit de contaminants durables dans le circuit.

Les solutions sont introduites et récupérées par une série de puits d'injection et de récupération. Pour obtenir de bons rendements, il est nécessaire de répartir et de faire circuler la solution de manière uniforme dans toute la couche de minerai. Pour la disposition des puits, il faut tenir compte de nombreux facteurs propres au gisement: caractéristiques hydrologiques de la roche mère, dimensions et forme du filon, taux de production souhaités, etc. Les puits sont couramment situés à des intervalles de cinq à quinze mètres, et une

unité de production peut comporter plus de cent puits. Dans la plupart des opérations, le débit d'écoulement vers chaque puits d'injection est contrôlé et on utilise des pompes submersibles pour pomper les solutions chargées dans les puits de récupération.

Dans toutes les opérations courantes de ce type, on utilise l'échange d'ions pour récupérer l'uranium dans les solutions chargées. On emploie à la fois des systèmes classiques à lit fixe et des systèmes d'échange d'ions continu, spécialement mis au point pour la récupération de l'uranium. Dans de nombreux cas, l'uranium est extrait par élution de la résine chargée, par mise en contact avec une solution de chlorure de sodium acidifiée et le gâteau jaune est précipité à partir de l'éluat obtenu. On utilise alors les méthodes classiques pour filtrer, sécher et emballer le gâteau jaune.

Les principales considérations relatives à l'environnement dont il y a lieu de tenir compte pour la lixiviation *in situ* sont les suivantes:

Prévention et contrôle des fuites de la solution de lixiviation pendant l'extraction;

Rétablissement de l'état des eaux souterraines dans la zone d'extraction, l'opération terminée.

De manière générale, l'industrie a pu mettre au point des méthodes satisfaisantes pour contrôler et réduire au minimum les fuites de solution. Lorsque les solutions de lixiviation ont dévié du circuit prévu, il a été possible de corriger les fuites en modifiant les méthodes de pompage pour l'injection et la récupération.

Une fois la lixiviation terminée, il est nécessaire de rétablir la qualité de l'eau dans l'aquifère affecté pour la rendre conforme aux normes établies par l'organisme de réglementation responsable. Etant donné que la qualité de l'eau et la composition minéralogique de l'aquifère avant extraction peuvent varier considérablement suivant les gisements, les méthodes de restauration sont adaptées aux besoins spécifiques d'un emplacement donné. Une opération de lavage relativement simple peut suffire pour certains gisements, tandis qu'à d'autres endroits, il est nécessaire de recourir à des combinaisons sensiblement plus complexes de lavage et de traitement chimique.

Recherche et développement

En même temps que l'industrie de l'uranium se développait, les efforts de recherche se sont orientés vers l'optimisation des techniques et l'amélioration de la compatibilité avec l'environnement. Depuis quelques années, de nouvelles recherches ont également porté sur la récupération de l'uranium à partir de ressources non classiques, notamment l'acide phosphorique, les produits de lixiviation du cuivre, les minerais à faible teneur, les minerais complexes à teneur élevée et de l'eau de mer. Parmi les opérations qui ont été commercialisées au cours des dernières années, outre celles dont il a déjà été fait mention, on peut citer:

- L'échange d'ions continu — Plusieurs systèmes d'échange d'ions continus fonctionnent maintenant dans diverses parties du monde. La plupart des systèmes sont généralement fondés sur la circulation à contre-courant de la solution mère et de la résine dans un système fluidisé. Ces systèmes fonctionnent avec des quantités relativement faibles de résine et peuvent traiter des liqueurs de lixiviation non clarifiées.

- Le broyage semi-autogène — Dans ce système, le minerai devient son propre agent de broyage. Le

minerai sortant de la mine et l'eau sont directement introduits dans le broyeur semi-autogène et les boues obtenues sont pompées pour alimenter l'opération de lixiviation. Ce système peut réduire sensiblement les problèmes de manipulation des matériaux.

- Tri du minerai — Bien que la plupart des minerais d'uranium ne soient pas susceptibles d'une amélioration par des moyens physiques, on utilise avec succès du matériel de tri radiométrique du minerai pour rejeter les roches stériles au cours de plusieurs opérations. On fait passer le minerai relativement grossier provenant de la mine à travers les appareils, et les fragments non radioactifs sont dirigés sur des aires d'épandage. Cette technique peut être particulièrement intéressante dans les cas où la distance de transport entre la mine et l'usine de traitement est appréciable.

- Filtrage sur courroie — Des filtres à courroie continue sont utilisés avec succès pour le lavage et la déshydratation des résidus de lixiviation dans un certain nombre d'installations de traitement du minerai. L'application de cette technique dépend des caractéristiques du minerai. De manière générale, les filtres à courroie sont surtout utilisables lorsque la teneur du minerai en argile est relativement faible.

L'industrie de l'uranium a mis au point cette grande variété de techniques d'extraction et de traitement parce que les minerais d'uranium sont d'une extrême diversité. Les opérations de traitement doivent être conçues de manière à tenir compte de la composition et des caractéristiques minéralogiques spécifiques du minerai à traiter. Même dans une seule mine les caractéristiques de traitement du minerai provenant de différents endroits de la mine peuvent varier sensiblement. Pour les études de séquences relatives à toute opération donnée, il faut s'efforcer de comprendre et de quantifier ces irrégularités et choisir ensuite une combinaison d'opérations unitaires qui tiendront compte de cette variabilité dans des conditions économiques.

Les problèmes à résoudre pour l'avenir comprennent la récupération de l'uranium à partir de ressources plus complexes qui peuvent souvent avoir une teneur moins élevée et se trouver à plus grande profondeur que les gisements actuellement traités. Dans le monde entier, les chercheurs s'efforcent de mettre au point des techniques de traitement qui combinent la rentabilité et la compatibilité avec l'environnement.

