





# Relation entre le transfert de l'uranium et du radium depuis les sites miniers vers les sédiments

**Michael Descostes** (AREVA Mines, R&D Dpt)

A. Wattinne, V. Phrommavanh, J. Nos, H. de Boissezon, B. Reile, P.C. Guiollard

PNGMDR - GT plénier du 02/02/2018

# Objectif PNGMDR

## Cadre

Amélioration des connaissances relatives au marquage des étangs, des cours d'eau ou de zones humides liées aux quantités d'uranium et de radium rejetées dans le réseau hydrographique après traitement et aux rejets diffus.

- + 16 Stations de traitement des eaux
- + Marquage des sédiments en aval de sites miniers systématique?

## Demande (Art. 65)

« AREVA devra préciser la relation entre les flux rejetés et l'accumulation de sédiments marqués dans les rivières et surtout les lacs, notamment au travers d'une étude de la spéciation de l'uranium dans les eaux et de la caractérisation radiologique fine des sédiments en fonction de leur granulométrie et en fonction du régime hydraulique des cours d'eau. »

AREVA Mines a lancé une étude R&D pluridisciplinaire en collaboration avec de nombreux partenariats académiques\* nationaux et internationaux depuis 2010. A ce jour, deux rapports d'avancement ont été remis aux autorités en accord avec les demandes du PNGMDR.

\*: Université de Bruxelles, CREGU, Université de Granada, Université de Poitiers, CEA

**RAPPORT TECHNIQUE**

BO Mines AREVA  
DEXPORDINA

Ref: AMS-DEXP-DRD-RT-0044 (voir sous-échantillon)

**Titre :** Relation entre les flux rejetés par le site de Bois Noirs-Limouzatz et les sédiments marqués à Saint-Clément

Nom	
Rédacteur	PHROMMAVANH Vannasha, DESCOSTES Michael, NGS Jeremy, DE BOISSEZON Helene, SIEGEL Bastien
Vérificateur	CROCHON Philippe, ANDRIS Christian, GREHAUX Audrey
Approbateur	PHACQUET Eric

Revision n°	Date	Nature des modifications
01	03/11/2014	

AREVA MINES

**NOTE TECHNIQUE**

BO Mines AREVA  
DOPORDINA

Ref: AMS-DOP-DRD-NT-0101

**Titre :** Relation entre les flux rejetés par le site de Bois Noirs-Limouzatz et l'accumulation de sédiments marqués dans le lac de Saint-Clément. Second rapport d'avancement.  
Mots clés : Rejets, Sédiments, Bois Noirs-Limouzatz, D-Cément, Mines, Uranium, Radium, Cu, Zn, Cadmium, chlorure, Plan National de Gestion des Matières et Déchets Radioactifs, PRODIGE.

	Nom	Signature
Rédacteurs	M. DESCOSTES	
	A. WATTIANE	
	P. C. GUILLARD	
	P. PATRIER (Dir. de Poitiers)	
Vérificateurs	P. CROCHON	
	V. LIQUET DE SAINT-GERMAIN	
Approbateur	H. TOUBON	

Revision n°	Date	Nature des modifications
01	04/01/2017	Première émission

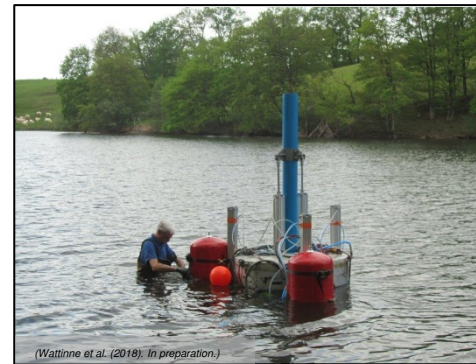
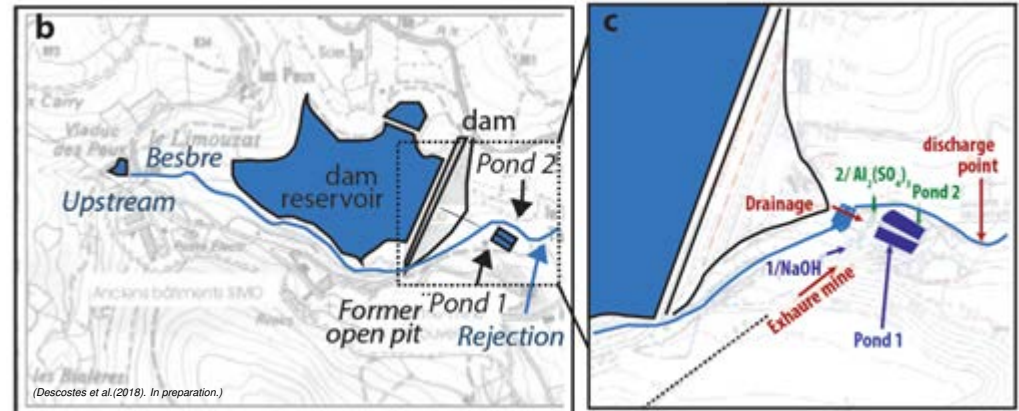
- + Phrommavanh *et al.* (2014). Relation entre les flux rejetés par le site de Bois Noirs-Limouzatz et l'accumulation de sédiments marqués à Saint-Clément. Rapport AREVA Mines AMS-DEXP-DRD-RT-0044.
- + Descostes *et al.* (2017). Relation entre les flux rejetés par le site de Bois Noirs-Limouzatz et l'accumulation de sédiments marqués dans le lac de Saint-Clément. Second rapport d'avancement . Rapport AREVA Mines AMS-DOP-DRD-NT-0101.

# Site de Bois Noirs Limouzat

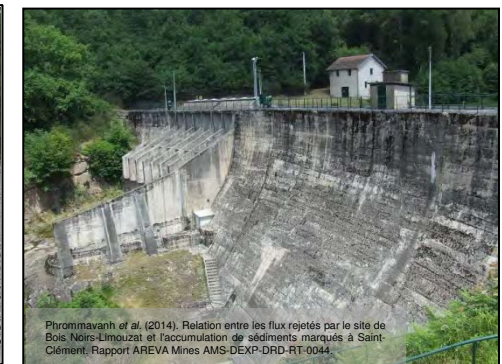
## Choix du site

- **Lac de Saint-Pardoux** construit en 1976 (330 ha, apport d'U par plusieurs mines et bruit de fond naturel significatif).
- **Mine en fonctionnement de 1959 à 1980**
- **Production 6919 tU**
- **Aujourd'hui réaménagée** et faisant l'objet d'une surveillance environnementale en accord avec les différents arrêtés préfectoraux
- **Seule mine d'Uranium** sur le bassin versant de la Besbre
- **Lac de Saint-Clément** en aval, retenue EDF construite en **1931** (27 ha)

La mine de Bois Noirs Limouzat (BNL) constitue un site d'étude adéquat pour évaluer la relation entre les flux rejetés et l'accumulation d'uranium au sein des sédiments en aval des sites miniers.



(Wattinne et al. (2018). In preparation.)



Phrommavanh et al. (2014). Relation entre les flux rejetés par le site de Bois Noirs-Limouzat et l'accumulation de sédiments marqués à Saint-Clément. Rapport AREVA Mines AMS-DEXP-DRD-RT-0044.

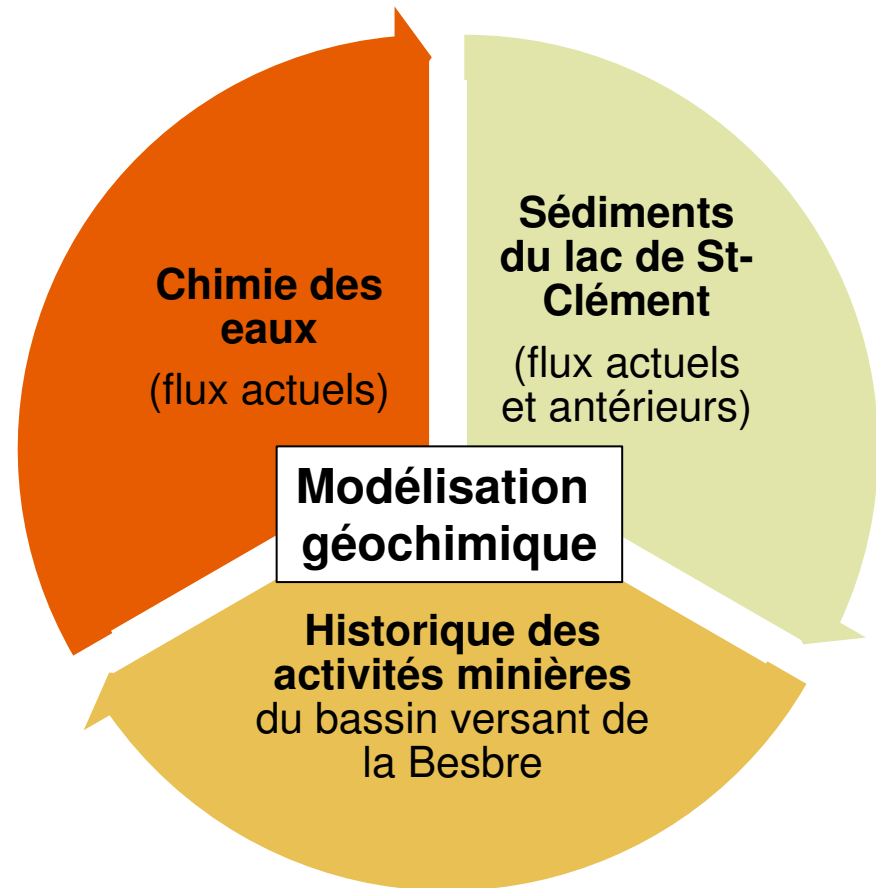
- + **Evaluer et comprendre les marquages sédimentaires en aval minier**
- + **Apporter des éléments sur les valeurs de bruit de fond naturel en U (et  $^{226}\text{Ra}$ )**

## Stratégie d'étude

Trois axes complémentaires pour comprendre et prédire l'accumulation d'uranium et de radium en aval des sites miniers

- Chimie des eaux
- Sédiments
- Historique de fonctionnement

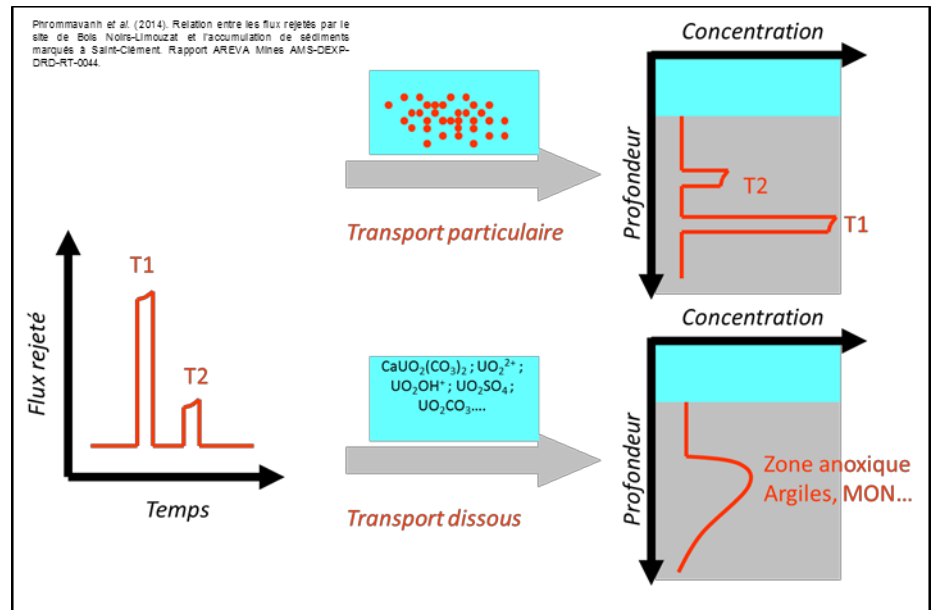
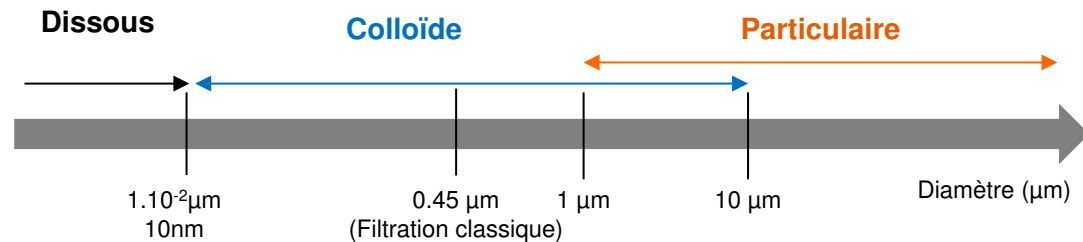
Cette stratégie d'étude permet de comprendre la mobilité de l'U et du  $^{226}\text{Ra}$ , éléments à l'échelle des traces ultra-traces en milieu naturel. Elle nécessite l'acquisition de données spécifiques afin de discerner la contribution anthropique de la composante naturelle. Elle s'accompagne le cas échéant de développements méthodologiques.



# Stratégie développée

## Discriminer le transport particulaire, colloïdal et dissous

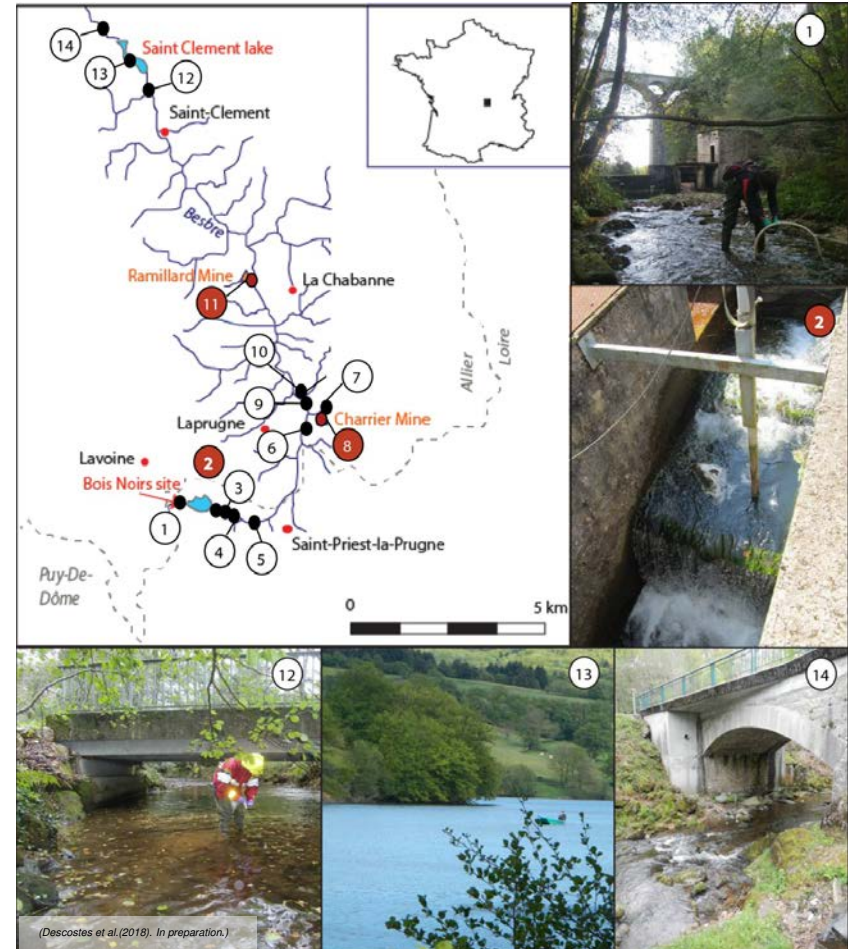
- Le mode de transport de l'U et du  $^{226}\text{Ra}$  détermine leur mode d'accumulation en aval



## Discriminer le transport particulaire, colloïdal et dissous

- Le mode de transport de l'U et du  $^{226}\text{Ra}$  détermine leur mode d'accumulation en aval
- Détermination des fractions dissoutes, colloïdales et particulaires en U et  $^{226}\text{Ra}$  dans les eaux au travers de plusieurs campagnes de prélèvements
- Analyses couplées à la chimie des eaux pour modélisation géochimique (majeurs et traces)

Le premier volet de l'étude consiste à déterminer le mode de transport de l'Uranium et du  $^{226}\text{Ra}$  au sein de la Besbre depuis la mine de Bois Noirs Limouzat jusqu'au lac de Saint-Clément.



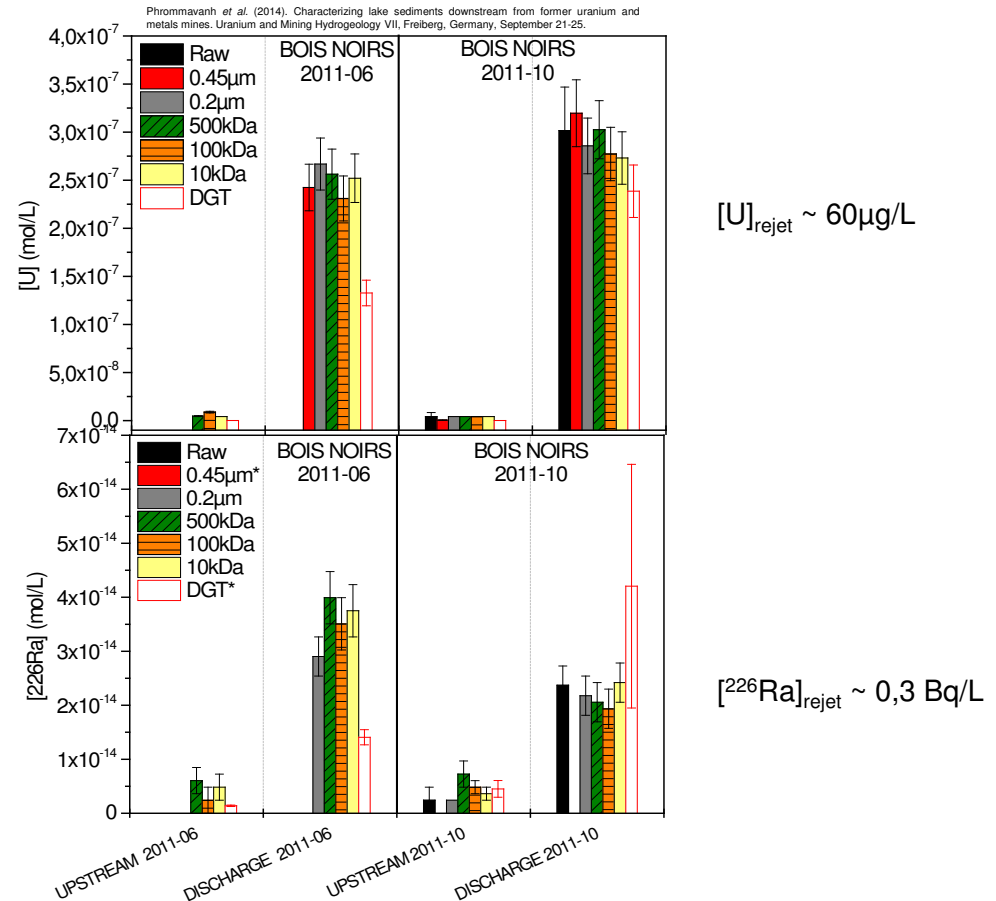


## Discriminer le transport particulaire, colloïdal et dissous

- Les mesures effectuées par ultrafiltrations (10 kDa – 100 kDa – 500 kDa) et à 0,45 µm indiquent que l'U et le <sup>226</sup>Ra sont 100% sous forme dissoutes

### Plusieurs seuils de filtration

10 kDa ~ 0,0025 µm  
 500 kDa ~ 0,02 µm  
 0,2 µm  
 0,45 µm  
 Brut



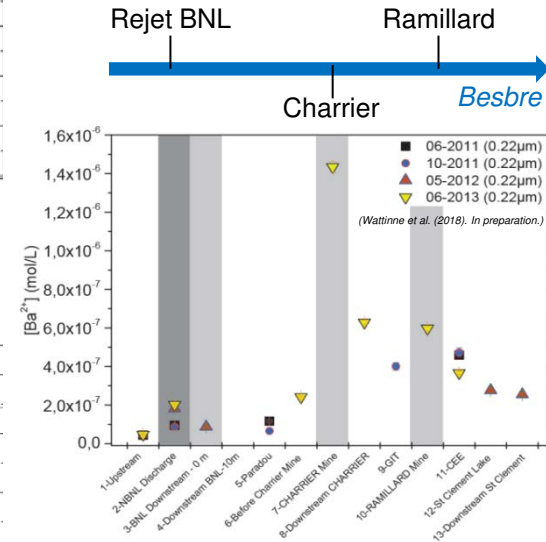
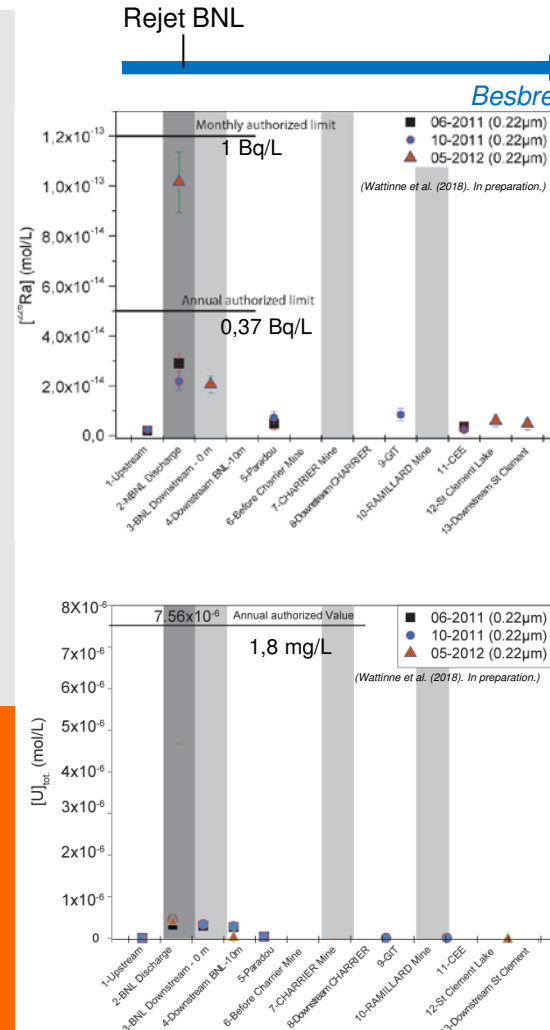
$$[C]_{10 \text{ kDa}} = [C]_{500 \text{ kDa}} = [C]_{0,2 \mu\text{m}} = [C]_{0,45 \mu\text{m}} = [C]_{\text{Brut}}$$



## Discriminer le transport particulaire, colloïdal et dissous

- Les mesures effectuées par ultrafiltrations (10 kDa – 100 kDa – 500 kDa) et à 0,45 µm indiquent que l'U et le  $^{226}\text{Ra}$  sont 100% sous forme dissoutes
- Les concentrations dissoutes en U et  $^{226}\text{Ra}$  depuis le site jusqu'au niveau du lac Saint-Clément sont très faibles  
 $[\text{U}]_{\text{tot}} < 0,1 \text{ mg/L}$  ;  $[\text{Ra}] < 1 \text{ Bq/L}$
- Anomalies en Ba et Cd en aval de BNL liées à la présence d'autres mines polymétalliques (Ramillard et Charrier)

La mine de BNL constitue actuellement un terme source en U et  $^{226}\text{Ra}$ . Les concentrations mesurées sont de l'ordre des traces à ultra-traces et diminuent depuis le site jusqu'au niveau du lac de Saint-Clément. L'uranium est principalement sous forme  $\text{CaUO}_2(\text{CO}_3)_3^{2-}$ .



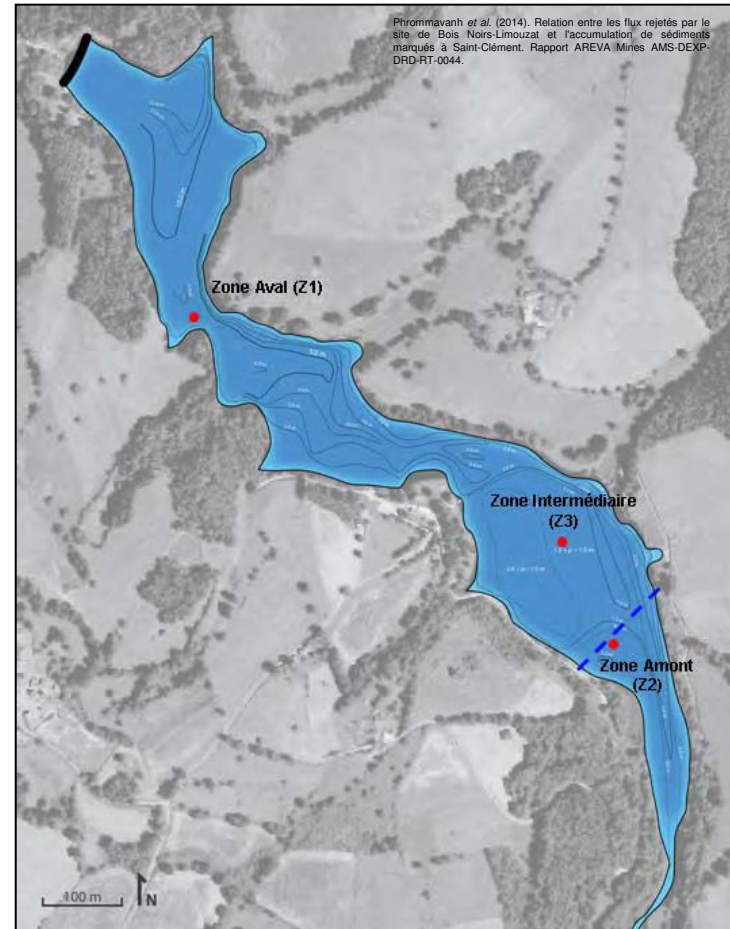
## Prélèvements de sédiments peu consolidés

- Trois zones investiguées après relevés bathymétriques

- Caractérisations complémentaires

- + Lithologique
- + Chimique
- + Radiologique (chaines de l' $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  et  $^{232}\text{Th}$ )
- + Minéralogique
- + Biogéochimique
- + Datation ( $^{137}\text{Cs}$ )
- + Eaux interstitielles

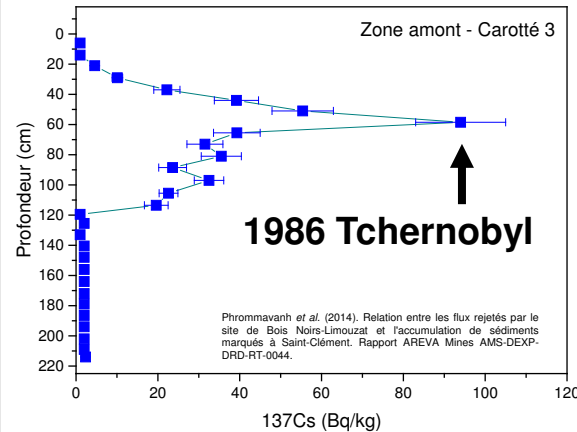
Les prélèvements de sédiments ont fait l'objet de nombreux développements méthodologiques pour garantir des caractérisations pertinentes et nécessaires dans le but de comprendre puis modéliser le marquage radiologique dans les sédiments.



# Marquage des sédiments du lac de Saint-Clément

## Prélèvements de sédiments peu consolidés

- **Puissance sédimentaire maximale de 2m**
- **~ 100 échantillons**
- **3 faciès lithologiques observés**  
sableux, argileux et riche en matière organique
- **Détermination possible**
  - + vitesse moyenne de sédimentation: 2-2,5 cm/an
  - + valeurs du bruit de fond naturel avant mise en exploitation de la mine de BNL
  - + valeur de bruit de fond naturel en  $^{238}\text{U}$  légèrement supérieure à celle considérée pour la Division minière de la Crouzille ( $^{238}\text{U}$  : 180 et 1100 Bq/kg ;  $^{226}\text{Ra}$ : 150 et 800 Bq/kg)



	<b>BDF<sub>moy.</sub></b> (Bq/kg)	<b>BDF<sub>min.</sub></b> (Bq/kg)	<b>BDF<sub>max.</sub></b> (Bq/kg)
<b><math>^{238}\text{U}</math></b>	832 (~67 ppm)	103 (~8 ppm)	1848 (~149 ppm)
<b><math>^{226}\text{Ra}</math></b>	368 (~10 ppt)	91 (~2,5 ppt)	785 (~22 ppt)



# Marquage des sédiments du lac de Saint-Clément

## Prélèvements de sédiments peu consolidés

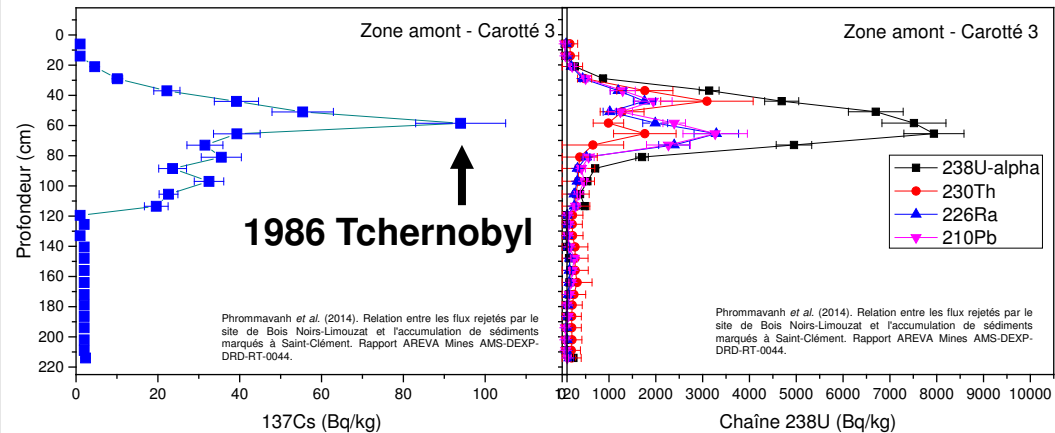
- Puissance sédimentaire maximale de 2m
- ~ 100 échantillons
- 3 faciès lithologiques observés

sableux, argileux et riche en matière organique

### ■ Détermination possible

- + vitesse moyenne de sédimentation: 2-2,5 cm/an
- + valeurs du bruit de fond naturel avant mise en exploitation de la mine de BNL
- + valeur de bruit de fond naturel en  $^{238}\text{U}$  légèrement supérieure à celle considérée pour la Division minière de la Crouzille ( $^{238}\text{U}$  : 180 et 1100 Bq/kg ;  $^{226}\text{Ra}$ : 150 et 800 Bq/kg)

Les caractérisations radiologiques des sédiments ont permis d'identifier le bruit de fond naturel ainsi qu'un marquage radiologique ponctuel observé dans la partie amont du lac vers 50 cm de profondeur.



	BDF <sub>moy.</sub> (Bq/kg)	BDF <sub>min.</sub> (Bq/kg)	BDF <sub>max.</sub> (Bq/kg)	Moy. (Bq/kg)	Min. (Bq/kg)	Max. (Bq/kg)
$^{238}\text{U}$	832 (~67 ppt)	103 (~8 ppt)	1848 (~149 ppt)	1500 (~ 120 ppt)	72 (~6 ppt)	8593 (~690 ppt)
$^{226}\text{Ra}$	368 (~10 ppt)	91 (~2,5 ppt)	785 (~22 ppt)	600 (~ 16 ppt)	74 (~2 ppt)	3292 (~ 90 ppt)

# Marquage des sédiments du lac de Saint-Clément

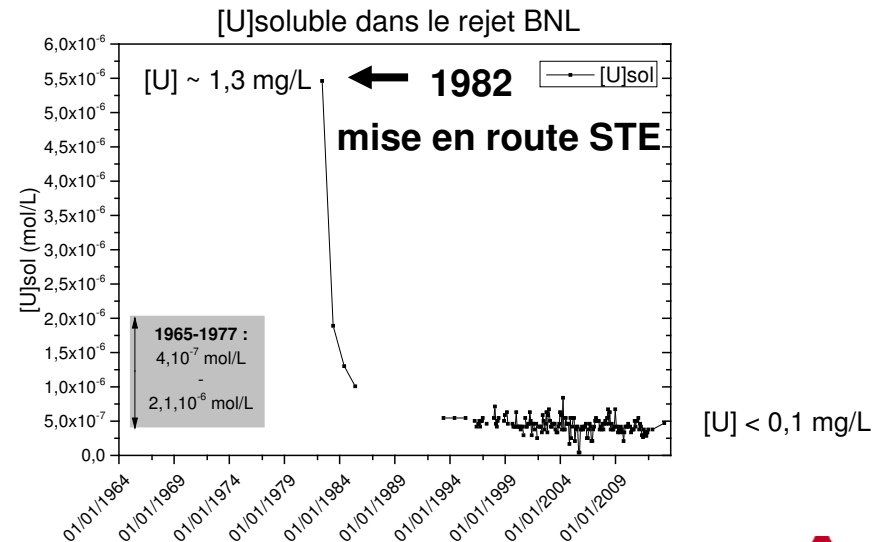
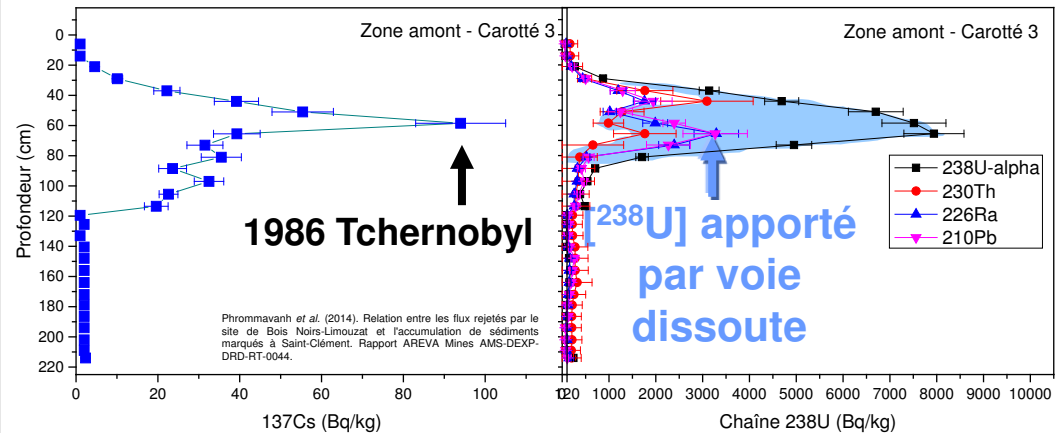
## Contraintes sur les mécanismes d'accumulation en $^{238}\text{U}$ et $^{226}\text{Ra}$

- Marquage radiologique daté vers 1980-1981, au moment de la fermeture et réaménagement du site

- Utilisation des déséquilibres radioactifs des chaînes de l' $^{238}\text{U}$  et du  $^{232}\text{Th}$  pour discriminer les apports particuliers et dissous de l' $^{238}\text{U}$  et du  $^{226}\text{Ra}$  en fonction du temps

- + Marquage radiologique (1980) : détritique et dissous
- + Bruit de fond naturel (<1955) : détritique et dissous

Les apports en  $^{238}\text{U}$  (et  $^{226}\text{Ra}$ ) sont sous deux formes : détritiques et dissoutes. Afin de comprendre les mécanismes d'immobilisation, il est nécessaire d'identifier les phases porteuses au travers de caractérisations chimiques et minéralogiques complémentaires.



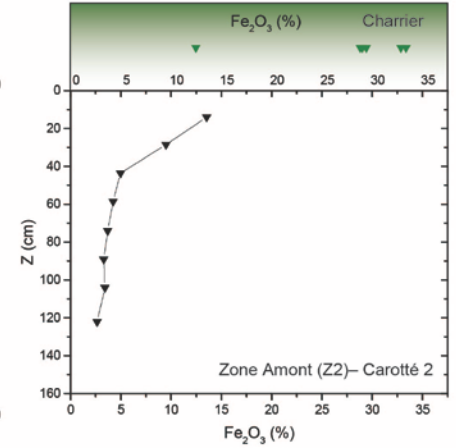
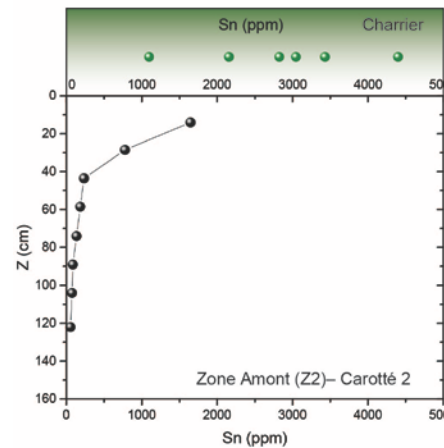
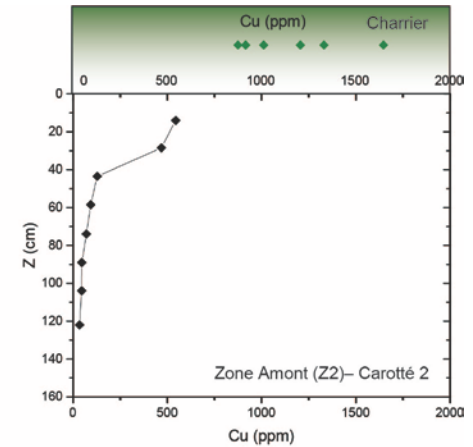
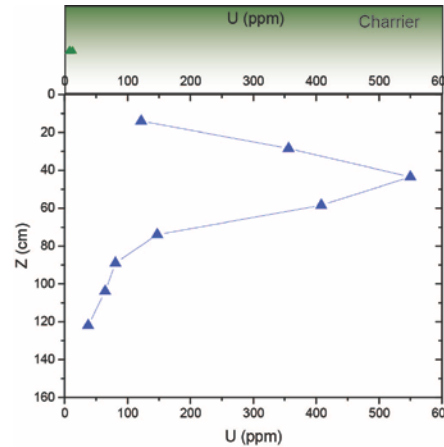
# Caractérisation chimique des sédiments du lac de Saint-Clément

Les caractérisations chimiques confirment la distribution verticale en U observées dans les sédiments

Un marquage polymétallique est systématiquement observé dans la partie supérieure des sédiments (ainsi qu'à plus fortes profondeurs)

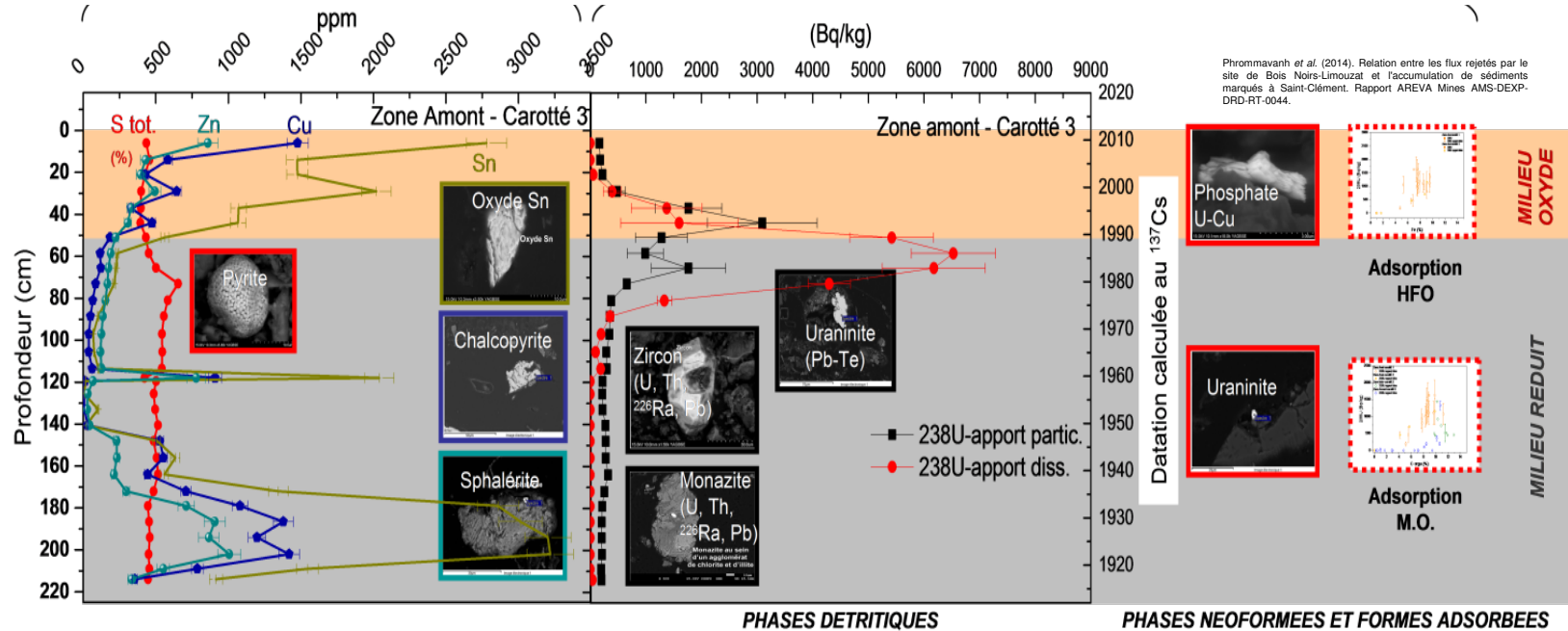
- + Fer : 15-20%
- + Cu : > 500 ppm
- + Sn : > 1500 ppm

Les datations, études historiques ainsi que les caractérisations chimiques et minéralogiques confirment l'origine de ces marquages polymétalliques : les résidus de traitement de la mine de Charrier (Cu, Sn) localisée sur le bassin versant de la Besbre en aval de la mine de BNL.



Descostes et al. (2017). Relation entre les flux rejetés par le site de Bois Noirs-Limouzat et l'accumulation de sédiments marqués dans le lac de Saint-Clément. Second rapport d'avancement - Rapport AREVA Mines AMS-DOP-DRD-NT-0101.

# Caractérisation minéralogique des sédiments du lac de Saint-Clément



Les caractérisations minéralogiques indiquent que les apports détritiques en  $^{238}\text{U}$  (et  $^{226}\text{Ra}$ ) correspondent à des minéraux peu réactifs (zircons, monazites et accessoirement uraninites). L'uranium apporté par voie dissoute est quant à lui immobilisé dans la partie oxydée des sédiments (sous forme de phosphates d'uranyle insolubles et sorbé sur les oxy-hydroxydes ferriques). En conditions réductrices, c'est-à-dire plus en profondeur, l'uranium apporté par voie dissoute est également immobilisé (par bioréduction sous forme d'uraninite et piégé par la matière organique naturelle).



# Conclusions

- **Approche pluri-disciplinaire développée depuis 2010 grâce à des partenariats académiques**
- **A ce jour, deux rapports d'avancement ont été remis aux autorités en accord avec les demandes du PNGMDR**
- **Cette étude a permis d'apporter des éléments sur les valeurs de bruit de fond naturel** ( $^{238}\text{U}$  : ~4 ppm ( $\approx$  50 Bq/kg) dans les sables, ~65 ppm ( $\approx$  800 Bq/kg) dans les boues, ~156 ppm ( $\approx$  2000 Bq/kg) dans les argiles ;  $^{226}\text{Ra}$  : 91-785 Bq/kg)
- **Aucun marquage radiologique n'est observé dans les eaux du lac de St-Clément, indiquant que les rejets actuels de BNL n'ont pas d'influence sur ces eaux. Les rejets actuels en U et  $^{226}\text{Ra}$  de BNL sont 100% sous forme dissoute**
- **Dans les sédiments du lac, un marquage radiologique localisé a été confirmé dans les parties amont et intermédiaire, avec un pic en  $^{238}\text{U}$  et descendants vers 50-60 cm de profondeur** ( $^{238}\text{U}$  max. = 8348 Bq/kg soit 671 ppm ;  $^{226}\text{Ra}$  max. = 3268 Bq/kg soit 90 ppt)
- **La datation au  $^{137}\text{Cs}$  a permis de montrer que le marquage radiologique était corrélé à l'historique de rejet de BNL** (maximum de rejets en U vers 1981, au moment de la fermeture et réaménagement du site et du noyage naturel consécutif des travaux miniers souterrains)

# Conclusions et perspectives

- **Aucun lien n'a été démontré entre le marquage radiologique et le régime hydraulique de la Besbre**
- **Deux apports d'U ont pu être distingués : les rejets d'U par voie détritique et par voie dissoute (ayant ensuite précipité ou ayant été adsorbé dans les sédiments) – mettant ainsi en évidence ces deux types de rejets au moment des travaux de réaménagement du site et du noyage naturel des travaux miniers souterrains**
- **Les phases minérales porteuses d'U sont stables, aussi bien en conditions réductrices qu'oxydantes**
- **Au cours de cette étude, l'influence de la mine polymétallique (Cu, Sn, Pb) de Charrier (localisée entre BNL et le lac) a été détectée par un marquage polymétallique (Fe, Sn, Cu, Zn)**
- **Ces travaux seront complétés par des interprétations en cours et des modélisations géochimiques qui feront l'objet du prochain rapport PNGMDR**
- **Les résultats font/feront l'objet de communications scientifiques dans des revues et congrès internationaux à comité de lecture afin de garantir la qualité des résultats**