

Point d'avancement sur les études après-mines

DESCOSTES Michael
ORANO Mining, Département R&D Environnement

16/10/2020



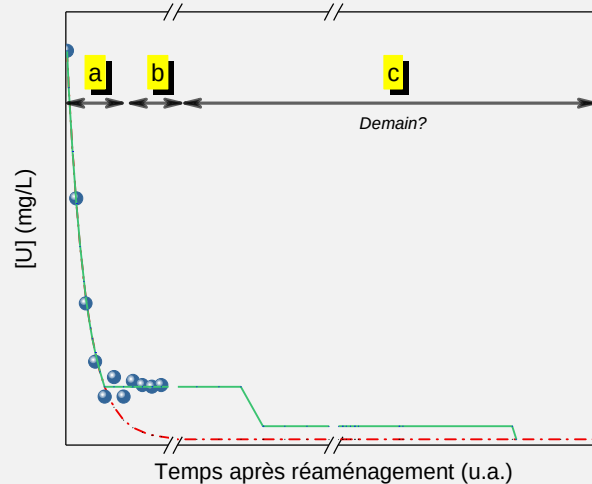
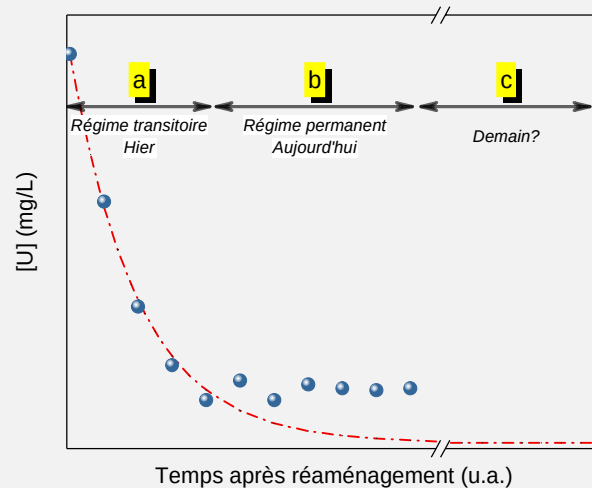
IDF-PPT-000485

Plan de cette présentation

- 1. Modélisation de l'évolution temporelle de la chimie des eaux d'exhaure** *(article 64 de l'arrêté du 23 février 2017)*
- 2. Evolution à long terme des stériles** *(article 67)*
- 3. Evolution à long terme des résidus de traitement** *(article 68)*
- 4. Stabilité des digues des stockages de résidus** *(article 69)*

*Exposé dédié qui sera assuré par
Ph. CROCHON*

Modélisation de l'évolution temporelle de la chimie des eaux d'exhaure



Détails de la demande PNGMDR

- Article 64 de l'arrêté du 23 février 2017
 - « Areva étend à l'ensemble des stations de traitement des eaux issues des anciens sites miniers uranifères la démarche qu'elle a engagée pour quelques stations, de manière à définir et justifier la stratégie retenue pour l'évolution du traitement des eaux collectées sur les anciens sites miniers relevant de sa responsabilité. »
- Mauroux, S. (2019). Réunion bilan sur les études réalisées dans le cadre du PNGMDR sur le thème spécifique de la gestion des résidus de traitement miniers et des stériles. Compte-rendu ASN CODEP-DRC-2019-003434.
 - ORANO devra « réaliser une modélisation de l'évolution naturelle des eaux d'un site minier sans stockage de résidus avec l'étude des chroniques de suivi de la qualité des eaux et leur modélisation associée. Le choix d'un site avec stockage de résidus a été écarté au motif de ne pas complexifier l'étude par la prise en compte de plusieurs termes sources et de débits faibles. »
- Alimente les travaux du GT eau du PNGMDR (analyse multi-critères)

Livrable ORANO

■ Rapport ORANO

- *Beaucaire, C.; Descostes, M. (2020) Modélisation de l'évolution temporelle de la chimie des eaux d'exhaure (France). Rapport ORANO Mining IDF-DT-008968.*

■ Questions

- *Est il possible d'**évaluer** l'évolution temporelle des concentrations aqueuses en U au sein des eaux d'exhaure des anciennes mines d'uranium?*
- *Est il possible de **comprendre** et **prédire** l'évolution temporelle des concentrations aqueuses en U au sein des eaux d'exhaure des anciennes mines d'uranium?*



NOTE TECHNIQUE

Orano – BU Mines
DOP/DRD/NA

Réf : IDF-DT-008968

Titre : Modélisation de l'évolution temporelle de la chimie des eaux d'exhaure (France)

Mots clés : Uranium, Exhaure, Fanay-Augères, Hyvernes, Le Fraisse, Traitement des eaux, modélisation, PNGMDR

Diffusion Limitée Orano

	Nom	Signature
Rédacteurs	C. BEAUCAIRE ^(*)	 orano DESCOSTES Michael 2020.02.08 09:21:30 +0100
	M. DESCOSTES	 orano DESCOSTES Michael 2020.02.08 09:12:02 +0100
Vérificateurs	G. KERN	 orano KERN Guillaume 2020.02.10 08:55:14 +0100
	P. CROCHON	 orano CROCHON Philippe 2020.02.10 09:10:29 +0100
Approbateur	H. TOUBON	 orano Toubon Hervé 2020.02.09 17:28:33 +0100

(*) : Coauteur externe

Révision n°	Date	Nature des modifications
01	05/02/2020	Première diffusion

Méthodologie retenue

■ Contraintes

- *Eaux d'exhaure issues de sites miniers ne présentant qu'un terme source unique (≠ sites de stockage de résidus de traitement; voir études dédiées)*
- *Données disponibles*
 - *Chronique temporelle de surveillance avant traitement*
 - *Composition chimique des eaux*
 - *Contexte géologique*
 - *Historique de fonctionnement et réaménagement (Déclarations d'Arrêt Définitif des Travaux miniers - DADT)*

■ 3 Sites retenus

- **Fanay-Augères** (Haute-Vienne) : importance en termes de volume d'eau traitée (80-300 m³/h) et concentrations en U relativement faibles (0,12-0,24 mg/L)
 - **Fraisse** (Haute-Vienne) : concentrations en U très faibles (0,025 mg/L) et site retenu dans le cadre des travaux du GT eau PNGMDR
 - **Hyverneresse** (Creuse) : concentrations en U faibles (0,7 mg/L ; sans traitement)
 - Sites en contexte granitique extrapolables à d'autres sites
-
- **Rappel : Teneurs maximales de rejet sans traitement: 1,8 mg/L**

Evolution des eaux d'exhaure du site de Fanay-Augères

■ Données d'entrée

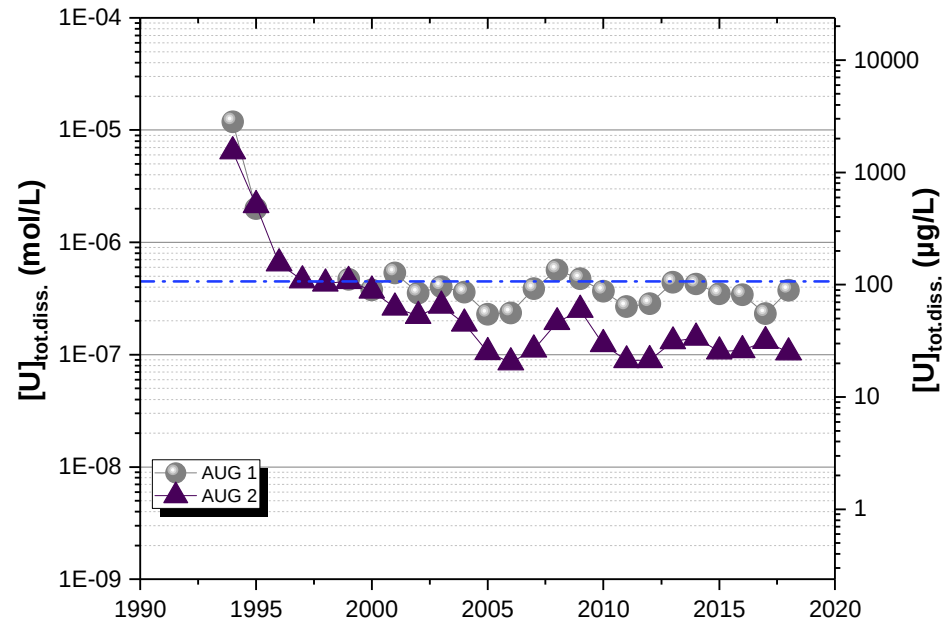
- *Chronique depuis 1994*
- *Ennoyage des mines : 1994*

■ Points de mesure

- *Avant traitement : AUG1 (eaux d'ennoyage de Fanay et des quartiers satellites)*
- *Après traitement : AUG2*

■ Evolution temporelle

- *Décroissance des concentrations mesurées (2,8 mg/L, 1994)*
- *Jusqu'à **stabilisation** vers **0,120 mg/L** depuis le début des années 2000*



Evolution des eaux d'exhaure du site du Fraisse

■ Données d'entrée

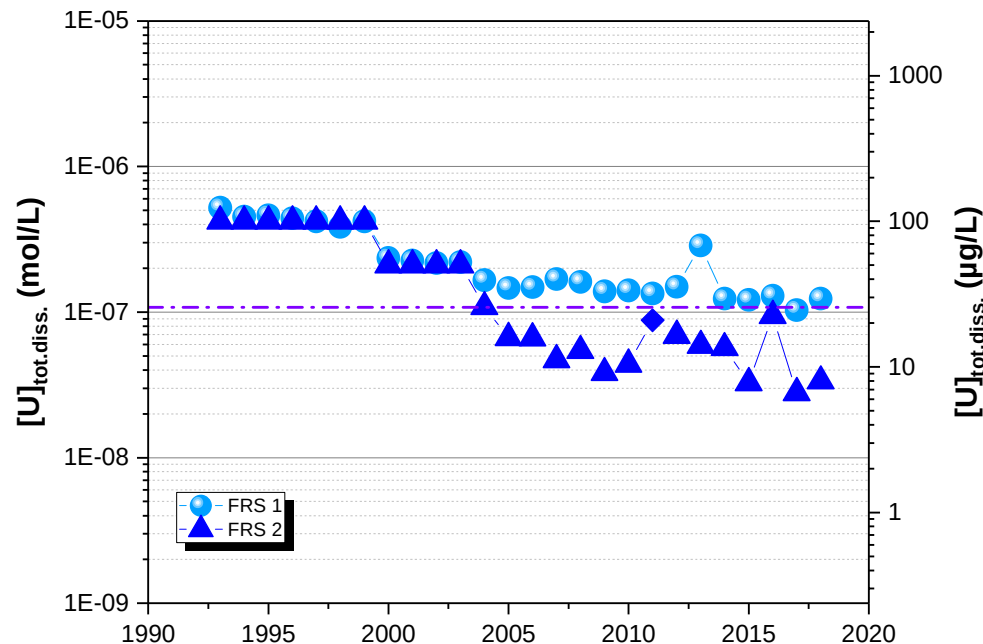
- Chronique depuis 1993
- Ennoyage des mines : à partir de 1991

■ Points de mesure

- Avant traitement : FRS1
- Après traitement (^{226}Ra et non U) : FRS2

■ Evolution temporelle

- Décroissance des concentrations mesurées (0,125 mg/L, 1993; parfois < ldd)
- Jusqu'à **stabilisation** vers **0,025 mg/L** depuis le début des années 2000



Evolution des eaux d'exhaure du site d'Hyvernesse

■ Données d'entrée

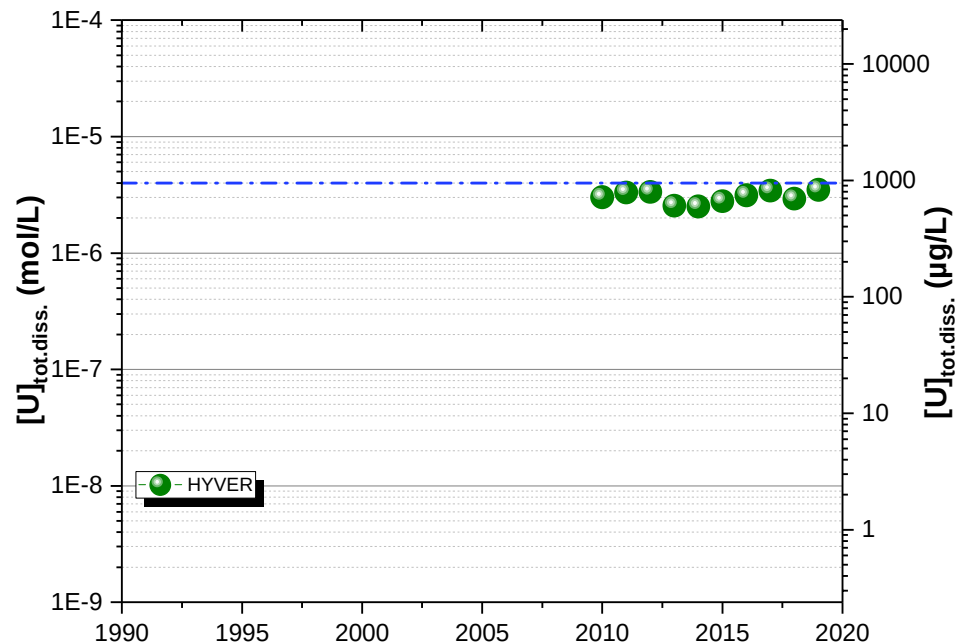
- *Chronique depuis 2010*
- *Ennuyage des mines : à partir de 1995*

■ Points de mesure

- *Sans traitement : HYVER*

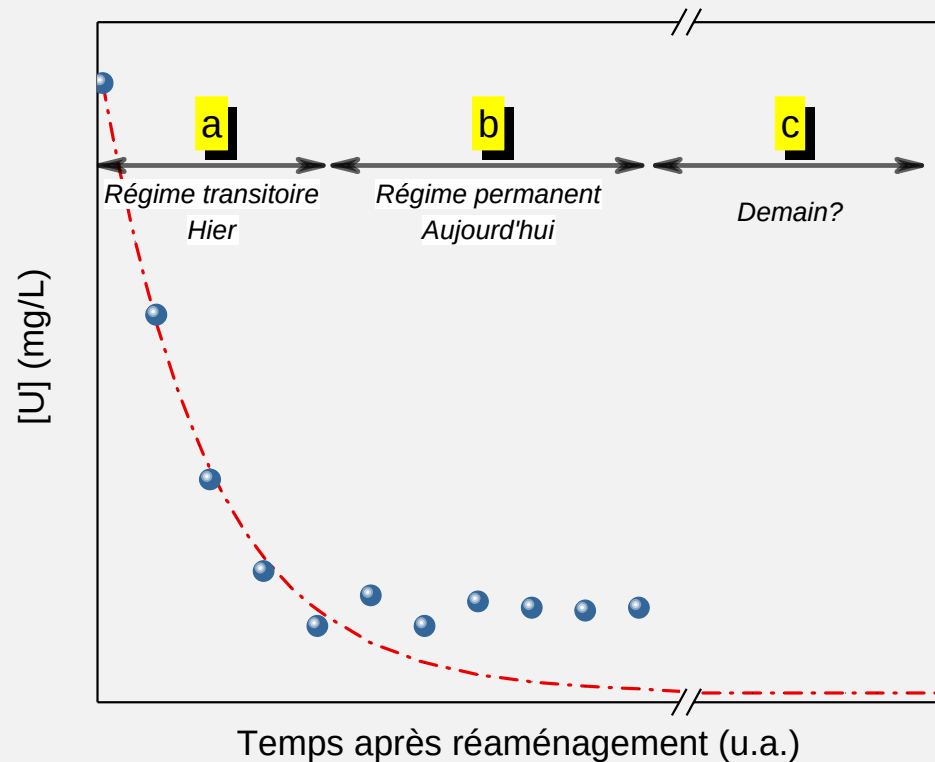
■ Evolution temporelle

- *Stabilisation* vers **0,710 mg/L** depuis le début du suivi



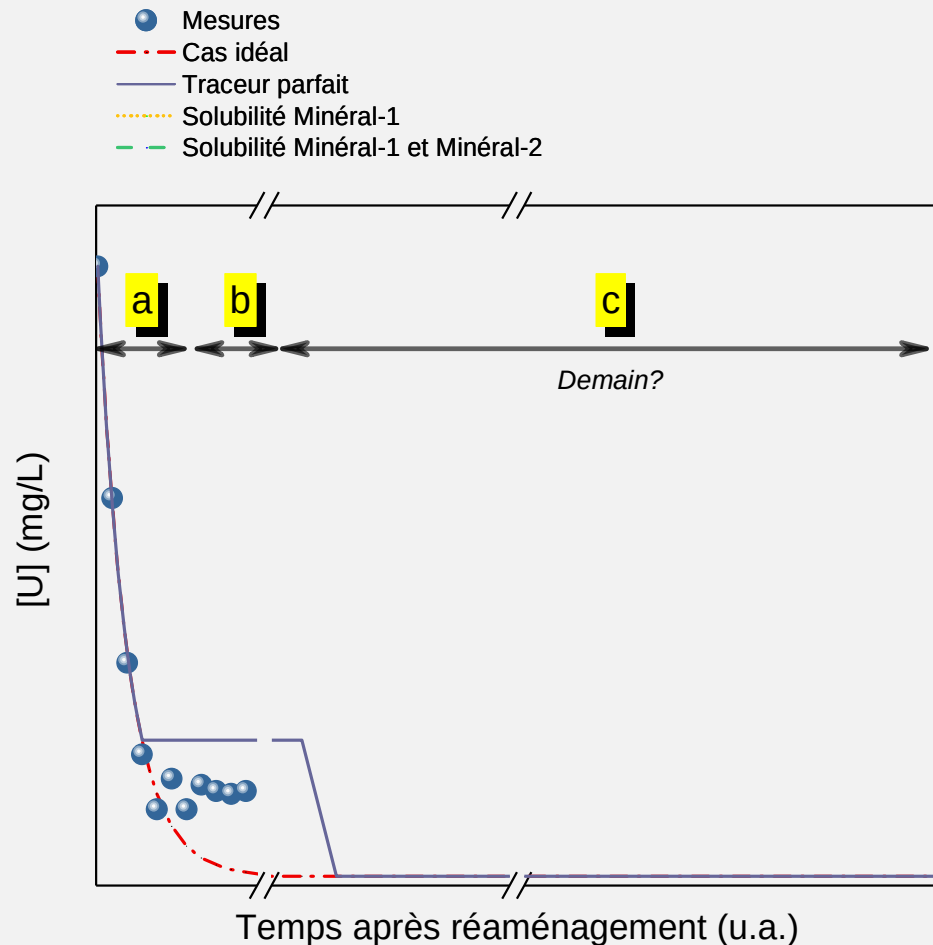
Peut-on comprendre et prédire cette évolution temporelle?

- Mesures
- - - Cas idéal
- Traceur parfait
- Solubilité Minéral-1
- - - Solubilité Minéral-1 et Minéral-2



Peut-on comprendre et prédire cette évolution temporelle?

- **Appauvrissement uranium par simple dilution**
 - Cas idéal : Uranium non réactif = traceur parfait
 - Durée d'épuisement contrôlée par le stock en U et le débit



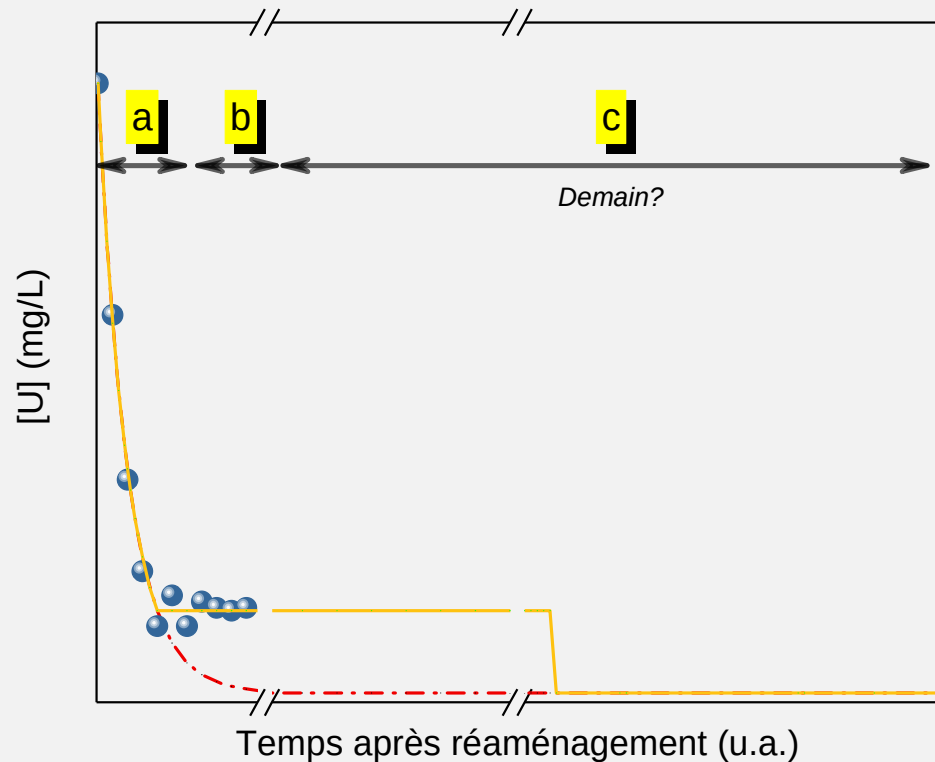
Peut-on comprendre et prédire cette évolution temporelle?

▪ Appauvrissement Uranium contrôlée par solubilité

→ Cas pénalisant (réel) : Uranium réactif = quantité libérée constante

→ Durée d'épuisement contrôlée par le stock en U, la solubilité du minéral-U et le débit

- Mesures
- - - Cas idéal
- Traceur parfait
- Solubilité Minéral-1
- Solubilité Minéral-1 et Minéral-2

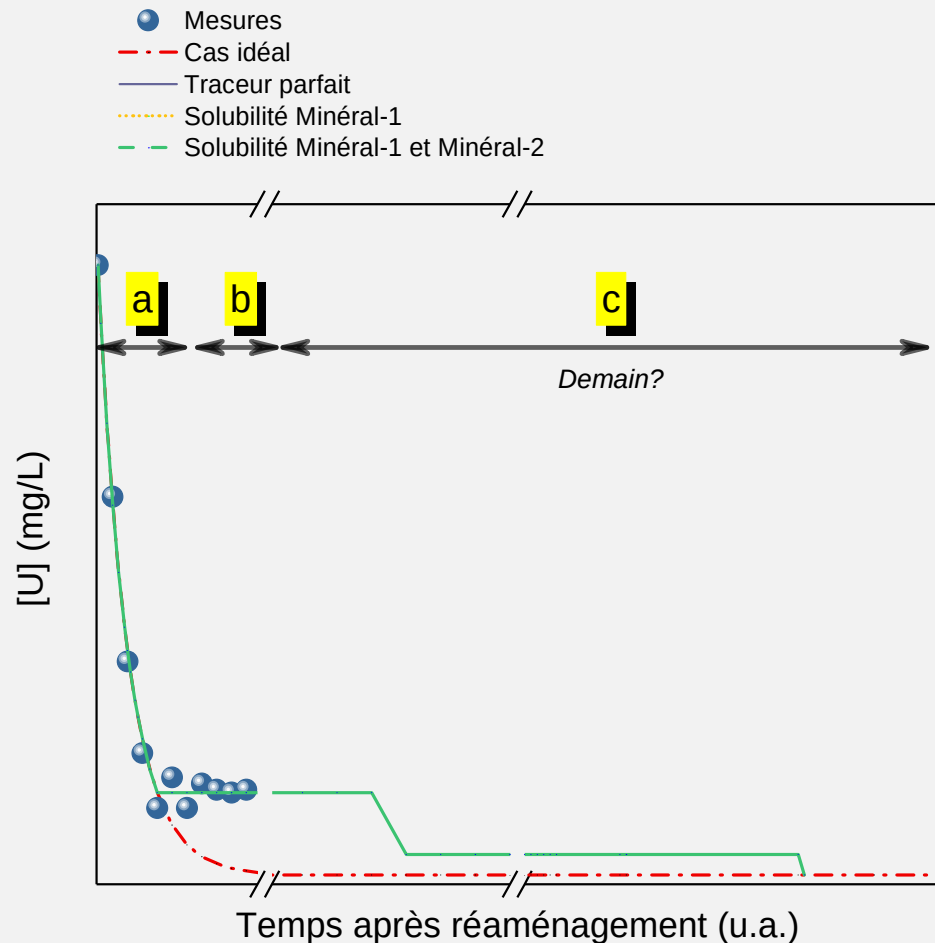


Peut-on comprendre et prédire cette évolution temporelle?

▪ Appauvrissement uranium contrôlée par solubilité

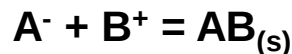
→ Cas pénalisant (réel) : Uranium réactif = quantité libérée constante

→ Durée d'épuisement contrôlée par le stock en U, la solubilité de minéral-U 1 puis minéral-U 2 et le débit



Approche scientifique

■ Chimie à l'équilibre thermodynamique



$$K_s = (A^-) (B^+) / (AB_{(s)})$$

$$K_s = (A^-) (B^+) \quad (\text{activité d'un solide parfait} = 1) \quad K_s : \text{connu}$$

■ Implications

- Si on connaît (A^-) , on peut dès lors calculer (B^+) et vice versa: **$(B^+) = K_s / (A^-)$**
 - Si une eau est « équilibrée » avec un minéral, on peut dès lors calculer la concentration des ions en solutions constitutifs du minéral
 - Les concentrations nécessaires en A^- et B^+ pour précipiter $AB_{(s)}$ peuvent être également calculées
 - **Cette approche peut s'appliquer à l'uranium** mais doit prendre en compte la composition chimique des eaux d'exhaure
- ## ■ Modélisation PHREEQC avec base thermodynamique PRODATA (Reiller and Descostes, 2020)

Contrôles géochimiques

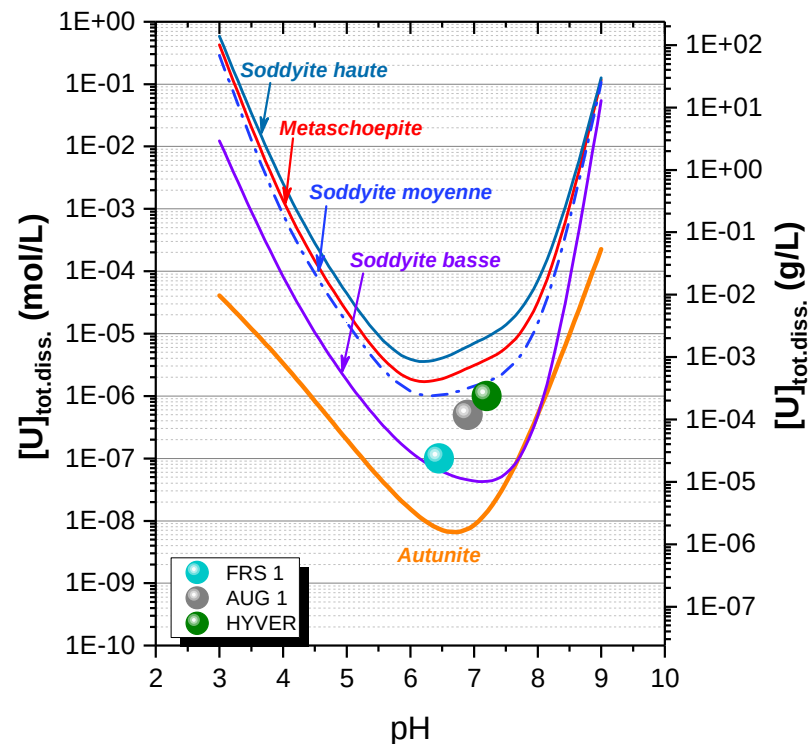
■ Résultats

- **FRS1** : solubilité de la **soddyite** basse
- **AUG1** : solubilité de la **soddyite** moyenne
- **HYVER** : solubilité de la **soddyite** moyenne (et de l'autunite)
- **Soddyite** (et autunite) : minéraux d'altération en conditions supergènes en accord avec observations (Allard *et al.*, 1999; Boekhout *et al.*, 2015; Kazari *et al.*, 2017; Tayal *et al.*, 2019)

	pH	[U] _{tot. diss.} (mol/L)	calculé (mg/L)	[U] _{tot. diss.} (mol/L)	mesuré (mg/L)
Le Fraisse	6,5	$1,0 \cdot 10^{-7}$	0,024	$1,0 \cdot 10^{-7}$	0,024
Augères	6,9	$4,5 \cdot 10^{-7}$	0,11	$5,0 \cdot 10^{-7}$	0,12
Hyverneresse	7,2	$4,0 \cdot 10^{-6}$	0,95	$3,0 \cdot 10^{-6}$	0,71

■ Implications

- Il est possible de représenter la stabilité et le niveau des concentrations en uranium dans les eaux d'exhaure par un équilibre avec des phases uranifères.



Evaluation des durées nécessaires à l'épuisement du stock U résiduel

- Concentrations en solution

$$[U]_{\text{tot.diss.}} = \text{solubilité (g/L)}$$

- Débit moyen annuel des eaux d'exhaure

$$D \text{ (m}^3/\text{an)}$$

- Calcul du flux d'U annuel

$$\text{Flux (kg U/an)} = D \times [U]_{\text{tot.diss.}}$$

- Stock résiduel d'U

$$\text{Stock U (kg)} = U_{\text{tot}}$$

- Calcul du temps nécessaire pour l'épuisement du stock:

$$\text{Durée (ans)} = \text{Stock U} / \text{Flux U}$$

$$\text{Durée} = U_{\text{tot}} / (D \times [U]_{\text{tot.diss.}})$$

Stock U résiduel et durée épuisement du stock

	Débit		[U] _{tot.diss.}	Flux d'U	Stock résiduel		Durée épuisement
	(m ³ /h)	(m ³ /an)	(mg/L)	(kg ³ /an)	Hypothèse	(tU)	(an)
FANAY-AUGÈRES	140	1 226 400	0,12	147,2	U _{tot} (HYP1)	72	> 450
					U _{tot} (HYP2)	205	> 1300
					U _{tot} (HYP3)	277	> 1800
LE FRAISSE	25	219 000	0,024	5,2	U _{tot} (HYP1)	7	> 1300
					U _{tot} (HYP2)	59	> 11000
					U _{tot} (HYP3)	66	> 12000
HYVERNERESSE	7,6	66 576	0,71	47,3	U _{tot} (HYP1)	27	> 500
					U _{tot} (HYP2)	27	> 500
					U _{tot} (HYP3)	54	> 1100

- HYP1 = matériaux de comblement (stériles la plupart du temps)
- HYP2 = 5% de la production totale
- HYP3 = HYP 1 + HYP 2

Conclusions

1. Evolution de la chimie des eaux d'exhaure après un bref transitoire, suit un régime permanent depuis **plus de 10 ans** avec des **concentrations en U constantes** pour les 3 sites étudiés.
2. Concentrations en U pouvant être modélisées selon des équilibres de **solubilité** avec des **minéraux uranifères**, dits **d'altération du minéral** (soddyite, autunite).
3. Il est prévu ainsi une **stabilité des concentrations en U à des faibles concentrations** (0,710, 0,120 et 0,024 mg/L respectivement pour les sites d'Hyverneresse, d'Augères et du Fraisse) **dans les prochaines décennies**.
4. L'absence de point 0 antérieur à l'exploitation des mines d'uranium ainsi que des limites de détection disponibles dans les années 1980 à l'heure des premiers réaménagements ne permettent pas de conclure si les valeurs mesurées aujourd'hui sont du même ordre. Une étude complémentaire sur des systèmes naturels non anthropisés permettrait d'apporter des éléments de réponse.
5. Résultats alimentant les réflexions du GT eau dans le cadre du PNGMDR (analyse multi-critères)

Evolution à long terme des stériles



Détails de la demande PNGMDR

- Article 67 de l'arrêté du 23 février 2017

- « Areva poursuit la démarche engagée sur l'étude des stériles miniers issus des anciennes mines uranifères en France, en particulier sur l'évolution des stériles miniers sur le long terme, et développe, pour les sites retenus dans son étude, des modèles géochimiques prédictifs de migration de l'uranium depuis les verses à stériles vers l'environnement en prenant en compte les scénarios d'évolution possibles des usages ainsi que des perturbations envisageables sur le long terme (perte d'intégrité de la verse, changement d'usage, événement climatique...). Areva justifie la cohérence entre sa conclusion relative à la faible mobilité de l'uranium et les marquages environnementaux observés sur les sites. »

Détails de la demande PNGMDR

- Mauroux, S. (2019). Réunion bilan sur les études réalisées dans le cadre du PNGMDR sur le thème spécifique de la gestion des résidus de traitement miniers et des stériles. Compte-rendu ASN CODEP-DRC-2019-003434.
- *Suite aux premières études remises dans le cadre du PNGMDR, l'ASN a estimé nécessaire d'améliorer la connaissance de l'impact environnemental et sanitaire des anciennes mines d'uranium et la gestion des stériles. Parmi les éléments de connaissances nécessaires, l'ASN a identifié la qualité des eaux suite au percolement dans les verses à stériles et recommande la réalisation d'une étude d'un modèle géochimique permettant de caractériser l'effet et la qualité de ses eaux. L'objectif de ses travaux est in fine d'évaluer l'impact radiologique et chimique des verses à stériles, en tenant notamment compte de leur évolution dans le temps, afin de s'assurer de la qualité des eaux et des sédiments en aval des anciens sites miniers d'uranium. Les résultats de ces études amélioreront la connaissance des rejets diffus des anciens sites miniers d'uranium. »*

Livrables ORANO

■ Rapport ORANO

- Chautard, C. (2020). Etude de la réactivité des verses à stériles du Limousin. Rapport ORANO Mining IDF-DT-009008.

■ Faisant suite aux rapports d'avancement

- Descostes, M. (2018). Etude de la réactivité des stériles miniers d'anciennes mines d'uranium du Limousin (Projet Envir@Mines). Rapport ORANO Mining AMS-DOP-DRD-NT-0142.
- Descostes, M.; Kanzari, A.; Pocquet, T.; Bonhoure, E.; Phommavanh, V.; Gérard, M. (2013). Etude de la réactivité des stériles miniers d'anciennes mines d'uranium du Limousin (projet Envir@Mines). Rapport AREVA Mines AMS-DEXP-DRD-RT-0005.
- Pocquet, T.; Bonhoure, E.; Gérard, M.; Phommavanh, V.; Descostes, M. (2012). Etude de la réactivité des stériles miniers d'anciennes mines d'uranium du Limousin (projet Envir@Mines). Rapport AREVA BGM-DEXP-DRD-RT-12/013.



NOTE TECHNIQUE

Orano – BU Mines
DPS/DRDI

Réf : IDF-DT-009008

Titre : Etude de la réactivité des verses à stériles du Limousin

Mots clés : stériles, uranium, caractérisation, modélisation, PNGMDR

Diffusion Limitée Orano

	Nom	Signature
Rédacteur	Camille CHAUTARD	 orano camille.chautard@orano.com 2020.02.07 17:50:03 +01'00'
	Michaël DESCOSTES	 orano michael.descostes@areva.com 2020.02.07 18:50:28 +01'00'
Vérificateurs	Philippe CROCHON	 orano CROCHON Philippe 2020.02.09 18:23:44 +01'00'
	Caroline BENEITEAU	 orano KERN Guillaume 2020.02.11 07:49:45 +01'00'
Approbateur	Hervé TOUBON	 orano Toubon Hervé 2020.02.09 17:21:11 +01'00'

Révision n°	Date	Nature des modifications
01	06/02/2020	Première diffusion

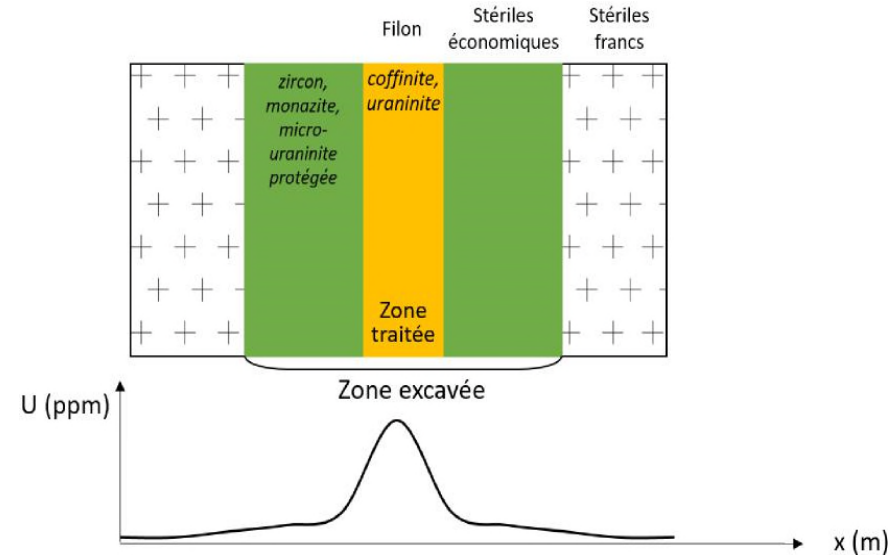
Objet d'étude : stériles miniers (économiques)

■ Chiffres clés

- 160 Mt
- 50% au niveau de la Division de Crouzille (contexte granitique)
- Majoritairement entreposés sous forme de versés

■ Stériles francs / économiques

- Stériles francs: roche excavée de l'encaissant géologique permettant d'accéder au minerai
- Stériles économiques (<200-300 ppmU au niveau de la Division de la Crouzille)
 - Caractérisés par la présence de minéraux réfractaires au traitement (zircons, monazites, uraninites piégées au sein de grains de quartz)
 - Teneur en U relativement plus élevée que le bruit de fond géochimique mais non valorisables du point de vue économique

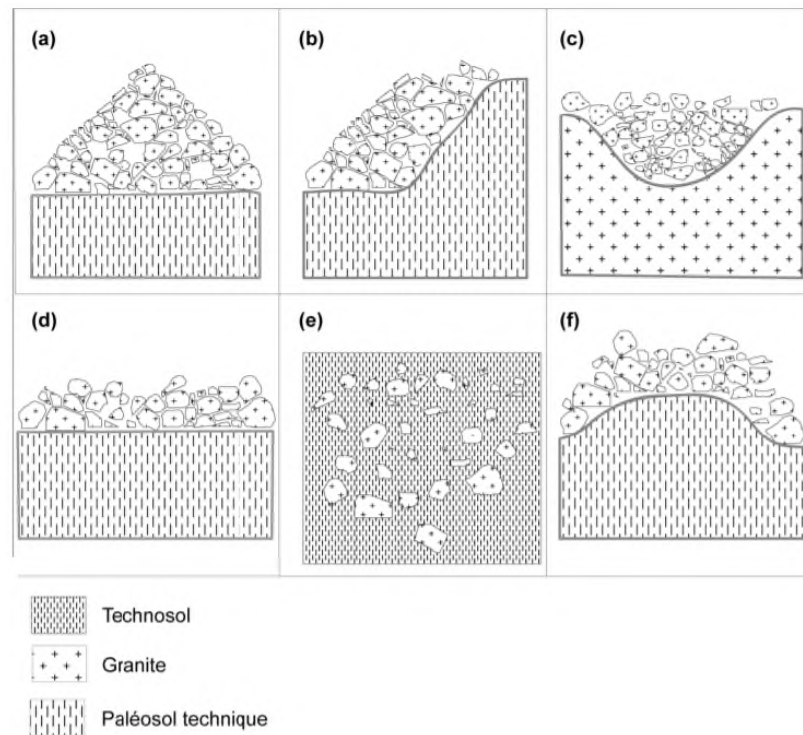


Stériles déposés en verses

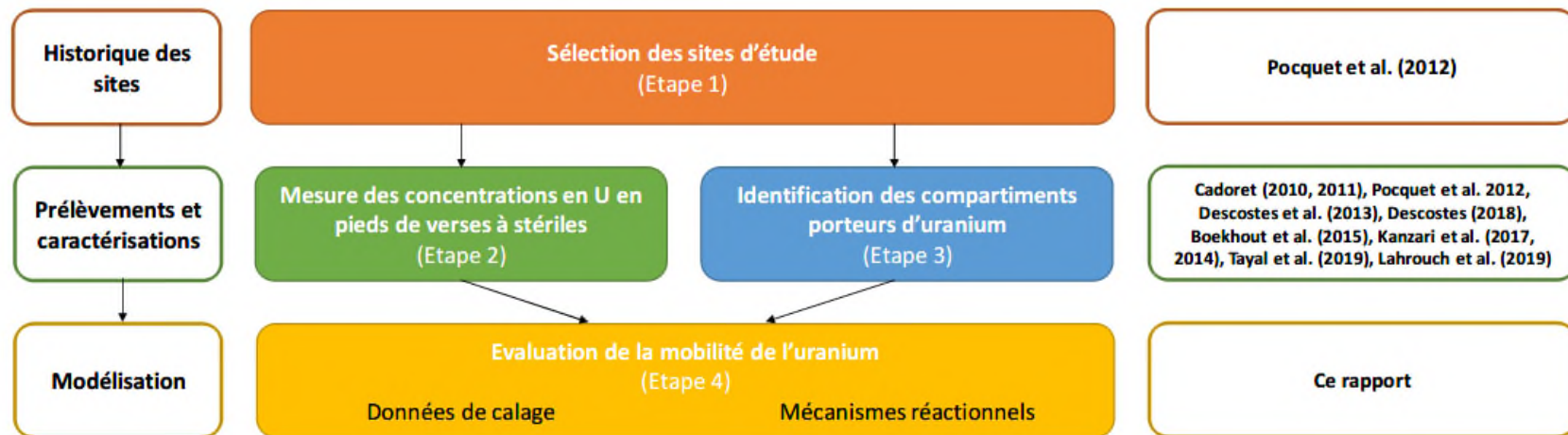
- **Morphologies variées des verses à stériles**
 - *Dépôt pyramidal de blocs*
 - *Dépôt de stériles sur flanc de relief préexistant*
 - *Dépôt de stériles en remblais d'une MCO*
 - *Dépôt horizontal d'épaisseur égale à la surface d'un régolithe naturel*
 - *Mélange de stériles et de sol naturel*
 - *Dépôt de stériles sur un relief préexistant*

- **Questions**

- *Est il possible d'évaluer si l'**U** présent au sein des verses à stériles (francs et économiques) est susceptible de migrer ?*
- *Est il possible de **comprendre** et **prédire** le marquage (rejets diffus) au niveau des eaux de percolation vers l'environnement ?*



Méthodologie générale adoptée



- Approche pluridisciplinaire et multi-échelles ayant nécessité le développement d'un programme R&D dédié

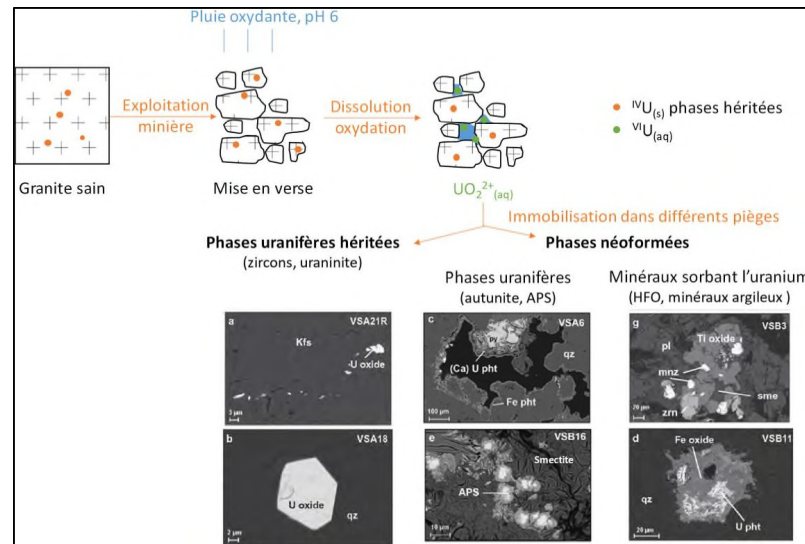
Rappels des principaux résultats

■ Concentrations en U

- Attendue si oxydation complète minéraux primaires d'U : **12 mg/L** (12000 µg/L - solubilité de la schoepite)
- Rejets diffus : **0,015 mg/L** (valeur moyenne mesurée)

■ Présence de nombreux pièges minéralogiques à l'origine de la rétention de l'uranium

- *Minéraux réfractaires résistant à l'altération météorique (zircons, monazites, uraninites non disponibles)*
- *Minéraux d'U néoformés et stables en conditions d'altération (phosphates et silicates)*
- *Minéraux argileux et oxy-hydroxydes ferriques connus pour leurs propriétés de sorption (minéraux d'altération des roches granitiques)*
- *Matière organique (en pied de versé) également connue pour ses propriétés de rétention*



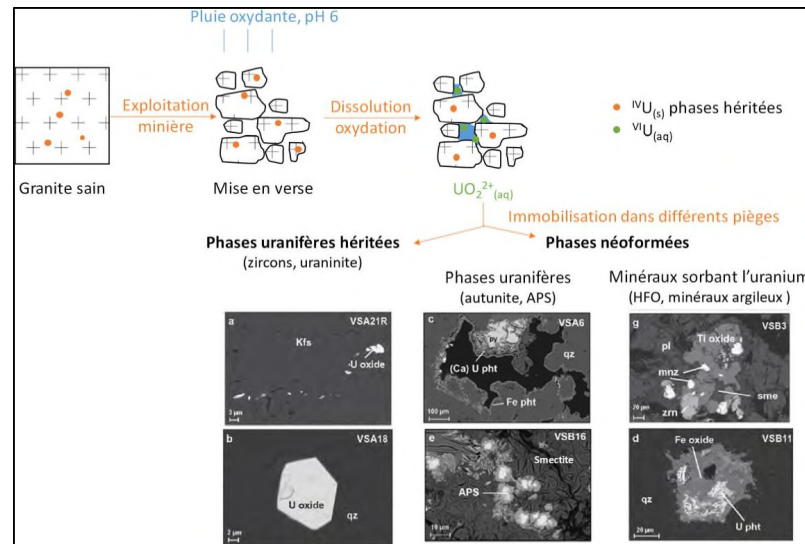
Rappels des principaux résultats

■ Concentrations en U

- Attendue si oxydation complète minéraux primaires d'U : **12 mg/L** (12000 µg/L - solubilité de la schoepite)
- Rejets diffus : **0,015 mg/L** (valeur moyenne mesurée)

■ Présence de nombreux pièges minéralogiques à l'origine de la rétention de l'uranium

- *Nombreux travaux de caractérisation allant des observations pluri-métriques à l'échelle de l'Angstrom confirmant l'occurrence souvent conjuguée de ces différents pièges minéralogiques*
- *Quantification difficile car pièges surcapacitaires*



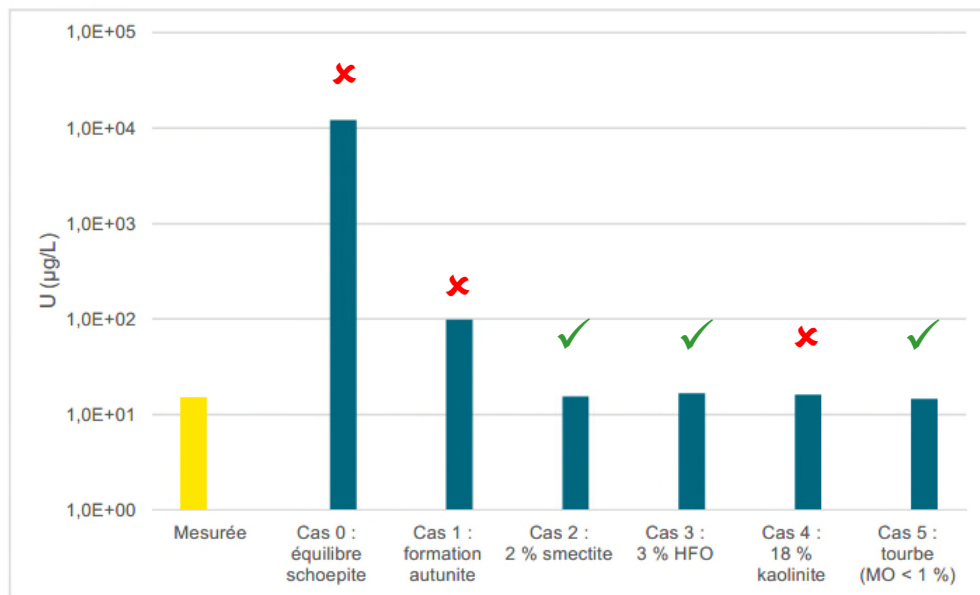
Modélisation

■ Deux étapes clés

- **Phase 1** : Modèles conceptuels visant à hiérarchiser les mécanismes réactionnels principaux gouvernant la mobilité de l'U
- Phase 2 : Modèles prédictifs calés sur des observations au niveau des versées à stériles (rejets diffus)

■ Méthodologie

- PHREEQC
- Développement base de données thermodynamiques et acquisition de constantes de solubilité et sorption *ad hoc*
- 5 Cas traitant des 5 principaux mécanismes de rétention observés



- ✗ Cas 1 : Autunite (minéral d'altération du minerai néoformé et stable en conditions supergènes) → rétention significative mais pas suffisante
- ✓ Cas 2 : Sorption sur la smectite (2%) → OK
- ✓ Cas 3 : Sorption sur les oxy-hydroxides ferriques (3%) → OK
- ✗ Cas 4 : Sorption sur la kaolinite (18%) → OK (mais teneur relativement élevée)
- ✓ Cas 5 : Sorption sur la matière organique (type tourbe, 1%) → OK

Conclusion

1. La stabilité chimique des verses à stériles est étudiée via un programme de R&D dédié ayant fait l'objet d'évaluations indépendantes au travers de publications scientifiques internationales à comité de lecture (Crétaz *et al.*, 2013; Boekhout *et al.*, 2015; Reinoso Maset and Ly, 2016; Kanzari *et al.*, 2017; Bordelet *et al.*, 2018; Tayal *et al.*, 2019; Lahrouch *et al.*, 2020).
2. Les résultats montrent que **les concentrations en U sont globalement très faibles au sein des rejets diffus** (15 µg/L en moyenne). **L'U est peu mobile au sein des verses à stériles** même si les conditions sont oxydantes et donc favorables à sa migration.
3. **L'U est soit stable** au sein de minéraux réfractaires initialement présents au sein des roches granitiques, **soit piégé** selon plusieurs mécanismes complémentaires liés à l'altération météorique des roches granitiques (reprécipitation sous forme de minéraux uranifères, sorption sur minéraux argileux, hydroxydes ferriques et/ou rétention sur la matière organique naturelle).

Conclusion

4. La quantification de ces pièges est difficile de par leur occurrence conjuguée. Les modélisations géochimiques indiquent que **les pièges sont surcapacitaires et que seulement un seul de ces pièges pris indépendamment des autres peut expliquer la rétention de l'U au sein de la verse**, en accord avec les faibles concentrations en U mesurées en pieds de verse.
5. L'évolution de l'ensemble de ces pièges au cours du temps et donc l'accumulation de l'U dans la fraction solide sera évaluée par modélisation couplée géochimie transport calée sur des données de site, mais généralisable à toutes les verses à stériles en contexte granitique.

Evolution à long terme des résidus de traitement

Détails de la demande PNGMDR

- Article 68 de l'arrêté du 23 février 2017
 - « Areva poursuit et complète les travaux de modélisation du transfert à long terme d'uranium et de radium dans le cas des sites de stockage de résidus retenus dans son étude. Areva prélève notamment des échantillons de résidus à des profondeurs représentatives des conditions hydrogéochimiques prévalant au sein des stockages, caractérise les eaux interstitielles associées et justifie la cohérence entre les modèles conceptuels de mobilité de l'uranium et du radium retenus, les caractéristiques des eaux interstitielles ainsi obtenues et, d'autre part, les marquages environnementaux observés. »
- Mauroux, S. (2019). Réunion bilan sur les études réalisées dans le cadre du PNGMDR sur le thème spécifique de la gestion des résidus de traitement miniers et des stériles. Compte-rendu ASN CODEP-DRC-2019-003434.
 - Focus sur le site de Bellezane dans un premier temps en parallélisant l'acquisition des données et en capitalisant de la méthodologie développée sur le site de Bellezane.

Livrable ORANO

■ Rapport ORANO

- *Descostes, M. (2020). Caractérisation et réactivité des résidus de traitement issus de l'exploitation des minerais d'uranium en France (Lavaugrasse, Bellezane, Ribière, Cellier). Modélisation de la mobilité à long terme de l'uranium et du radium 226 dans les résidus de traitement de Bellezane. Rapport ORANO Mining IDF-DT-009035.*

■ Faisant suite aux rapports d'avancement

- *Ballini, M. (2018). Caractérisation et réactivité des résidus de traitement issus de l'exploitation des minerais d'uranium en France (Lavaugrasse, Bellezane, Ribière, Cellier). Projet Envir@mines – PNGMDR 3. Mobilité de l'uranium et du radium 226 dans les résidus de traitement de Bellezane – Construction du modèle géochimique. Rapport AREVA Mines AMS-DOP-DRD-NT-0127.*
- *Nos, J.; Boizard, A.; Peiffert, C.; Cathelineau, M.; Phrommavanh, V.; Descostes, M. (2014). Caractérisation et réactivité des résidus de traitement issus de l'exploitation des minerais d'uranium en France (Lavaugrasse, Bellezane, Ribière, Cellier). Projet Envir@Mines – PNGMDR 2. Rapport AREVA Mines AMS-DEXP-DRD-RT-0039.*
- *Descostes, M.; Boizard, A.; Nos, J.; Peiffert, C.; Cathelineau, M.; Phrommavanh, V. (2013). Caractérisation des résidus de traitement issus de l'exploitation des minerais d'uranium en France (Lavaugrasse, Bellezane, Ribière, Cellier) - Projet Envir@Mines - PNGMDR2. Rapport AREVA Mines AMS-DEXP-DRD-RT-0002.*

IDF-DT-009035

**NOTE TECHNIQUE**

Orano – BU Mines
DPS/DRDI

Réf : IDF-DT-009035

Titre : Caractérisation et réactivité des résidus de traitement issus de l'exploitation des minerais d'uranium en France (Lavaugrasse, Bellezane, Ribière, Cellier). Modélisation de la mobilité à long terme de l'uranium et du radium 226 dans les résidus de traitement de Bellezane

Mots clés : Résidus de traitement, uranium, ²²⁶Ra, modélisation, Bellezane, PNGMDR

Diffusion Limitée Orano

	Nom	Signature
Rédacteur	Michaël DESCOSTES	 orano michael.descostes@orano.com 2020.02.07 10:45:26 +01'00'
Vérificateurs	Camille CHAUTARD	 orano camille.chautard@orano.com 2020.02.10 09:35:46 +01'00'
	Guillaume KERN	 orano KERN Guillaume 2020.02.10 10:50:20 +01'00'
	Philippe CROCHON	 orano CROCHON Philippe 2020.02.10 10:59:22 +01'00'
Approbateur	Hervé TOUBON	 orano Toubon Hervé 2020.02.09 17:20:25 +01'00'

Révision n°	Date	Nature des modifications
01	06/02/2020	Première diffusion

Site de stockage de résidus de traitement

■ Plusieurs termes sources potentiels et objets à renseigner et étudier

- *Résidus de traitement sensu stricto*
- *De manière non exhaustive :*
 - *Eaux d'exhaure d'ouvrages souterrains*
 - *Stériles miniers*
 - *Sédiments de lac/étang radiomarqués (exemple sédiments de la Crouzille stockés sur le site de Bellezane)*
 - *Eaux d'exhaure d'autres sites (exemple des eaux de Montmassacrot redirigées vers la STE de Bellezane)*
 - *Station de traitement des eaux*
 - *Installations industrielles (site industriel de Bessines incluant les stockages de Lavaugrasse et du Brugeaud)*
 - ...

■ Questions

- *Est-il possible de **comprendre** et **prédire** l'évolution temporelle (long terme) des concentrations aqueuses en U et ^{226}Ra en au sein des **eaux interstitielles des résidus de traitement**?*
- ***A terme**, est-il possible de comprendre et prédire l'évolution temporelle (long terme) des concentrations aqueuses en U et ^{226}Ra à **l'exutoire des sites de stockage de résidus de traitement**?*

Méthodologie développée

■ Programme de R&D dédié

- *Ayant fait l'objet d'une présentation à la Commission Nationale d'Evaluation*

Descostes, M. (2017). La gestion des résidus miniers. Audition CNE du 15/03/2017 concernant « Les Tenorm, les résidus et stériles miniers et les déchets historiques Etat des lieux sur leur gestion ». Présentation AREVA Mines AMS-DOP-DRD-PPT-0010.

- *Selon une approche multi-échelles et pluridisciplinaires*
 - *Historique d'exploitation et de réaménagement*
 - *Caractérisation des résidus et des eaux interstitielles*
 - *Caractérisation des autres termes sources*
 - *Modélisation hydrodynamique (saturé / insaturé)*
 - *Couplage hydrogéochimique*
 - *L'ensemble de ces données permet de comprendre les concentrations mesurées actuellement et de proposer des modèles de type transport réactif afin de prédire le comportement à long terme de l'U et du ²²⁶Ra.*

■ A ce jour

- *4 sites de stockage (LVG, BZN, RIB, CEL)*
- *Résidus de traitement statique et dynamique*
- *Résidus neutralisés/non neutralisés*
- *Caractérisation minéralogique, radiologique et géochimique*
- *Caractérisation des eaux interstitielles des résidus de traitement*
- ***BZN: mise en place modélisation long terme évolution chimique et radiologique des résidus de traitement***
- *Modélisations hydrogéologiques des autres sites en cours*

Site de Bellezane

■ Résidus

- Deux stockages mis en place entre 1989 et 1993
- Contenant 1 546 000 t de résidus de traitement neutralisés
- Sous la forme de sable fin argileux de granulométrie inférieure à $450\ \mu\text{m}$.

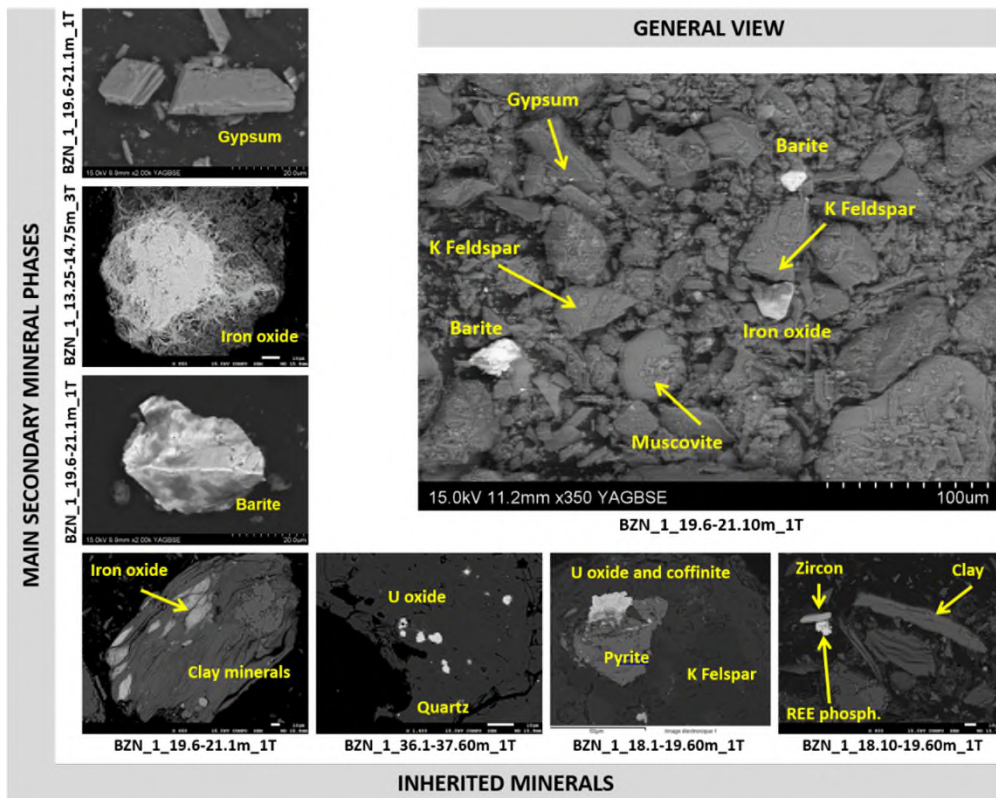
Site de Bellezane en exploitation (a), pendant le comblement des MCO 105 et 68 par les résidus de traitement (couleur rouge) (b), après le réaménagement (c) et photographie des carottes de résidus de traitement prélevées lors de cette étude en (d).



Caractérisation minéralogique

■ Plusieurs familles minéralogiques

- Minéraux hérités de l'encaissant géologique granitique (quartz, feldspath potassique, plagioclase, mica....pyrite, barytine)
- Minéraux uranifères réfractaires (zircon, uraninite/coffinite micrométrique enchâssés dans des grains de quartz)
- Minéraux d'altération ou diagénétiques (oxydes de fer, minéraux argileux - smectite, gypse, barytine)
- **Présence de nombreux minéraux connus pour leurs propriétés de rétention de U et ^{226}Ra**



Distribution actuelle de U et ^{226}Ra

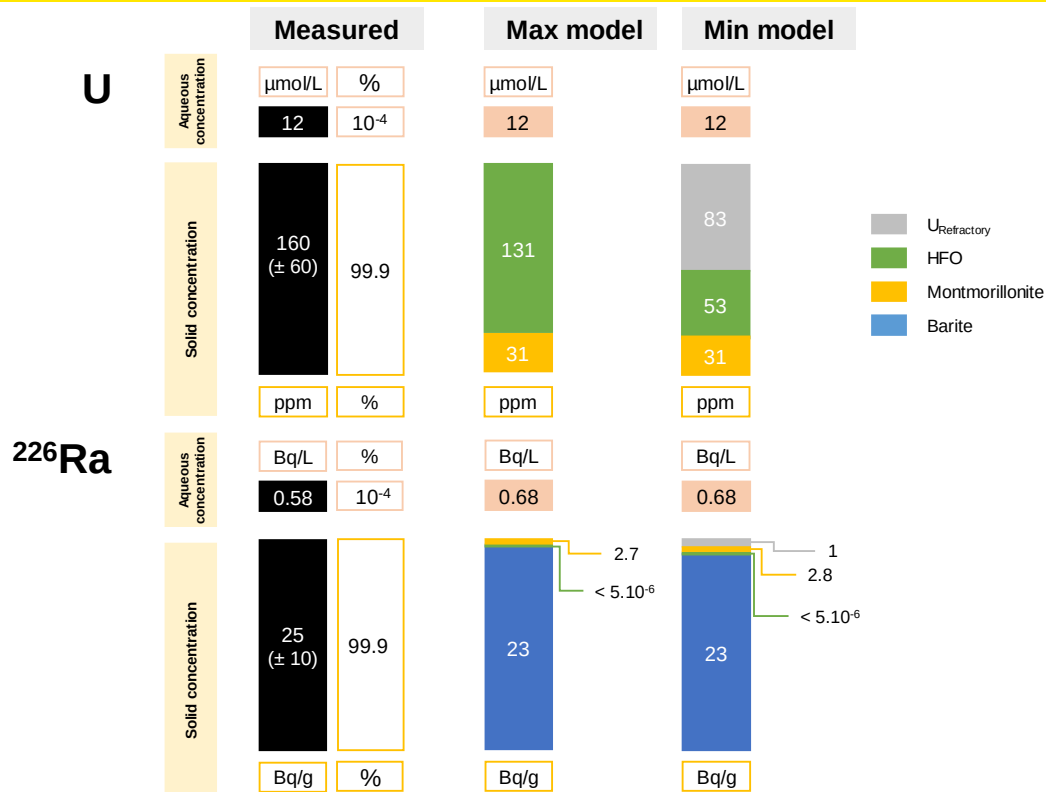
■ Méthodologie

- Composition des eaux interstitielles confrontée aux minéraux constituant les résidus de traitement
- PHREEQC
- Développement base de données thermodynamiques et acquisition de constantes de solubilité et sorption *ad hoc*
- 2 modèles développés (minorant et majorant) permettant d'expliquer les faibles concentrations observées aujourd'hui et de d'évaluer leur évolution temporelle, tant pour l'U que pour le ^{226}Ra

Distribution actuelle de U et ^{226}Ra

Résultats

- Bonne reproduction des stocks en U et ^{226}Ra observés
- Stocks U et ^{226}Ra : 99,9%
- [U] eaux interstitielles : 12 $\mu\text{mol/L}$ (soit 2,8 mg/L)
- [^{226}Ra] eaux interstitielles : 0,58 Bq/L (soit 0,016 ng/L)
- U principalement au sein de phases réfractaires et sorbés sur oxyhydroxydes ferriques et minéraux argileux de type smectite
- ^{226}Ra principalement piégé au sein de la barytine par co-précipitation



Distribution future de U et ^{226}Ra

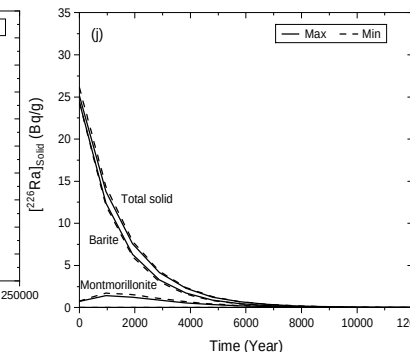
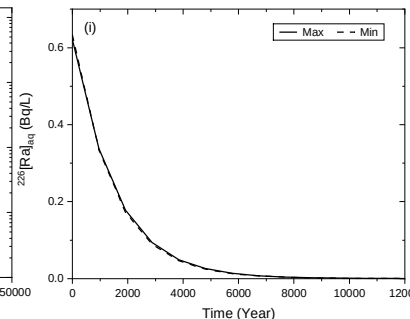
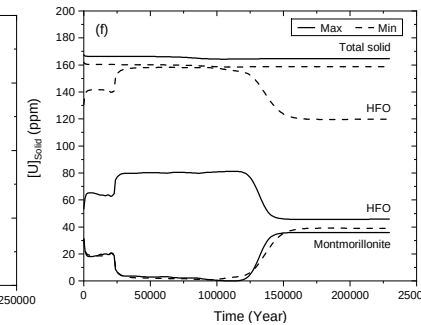
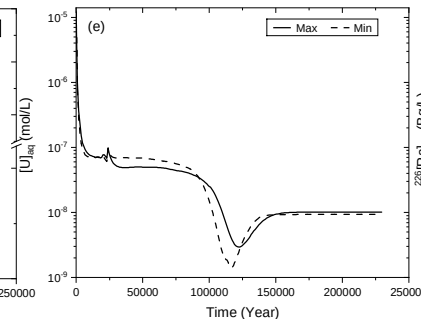
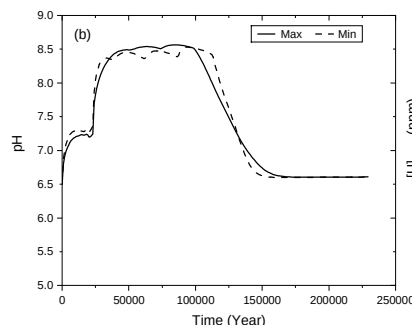
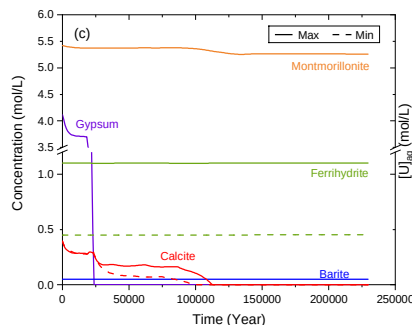
■ Méthodologie

- Modèle transport réactif 1D (PHREEQC)
- Reproduisant le lessivage des résidus de traitement par une eau granitique pendant plus de 200000 ans
- Modélisation de l'évolution de la composition des eaux avec un focus sur l'U et le ^{226}Ra
- Toujours en privilégiant deux modèles (minorant et majorant)

Distribution future de U et ^{226}Ra

Résultats

- L'évolution des résidus de traitement ne concernera principalement que la stabilité du gypse et de la calcite avec une légère variation de pH
- L'U et le ^{226}Ra en solution demeureront à des concentrations très faibles
- L'U demeure piégé par les minéraux argileux et les oxyhydroxides ferriques
- Le ^{226}Ra demeure quant à lui piégé au sein de la barytine et accessoirement par les minéraux argileux. Sa période radioactive (1600 ans) limitant dans le cas présent (faible perméabilité: 40m en 100 ans) également sa migration



Conclusion

1. La réactivité des résidus de traitement est étudiée via un programme de R&D dédié ayant fait l'objet d'évaluations indépendantes au travers de publications scientifiques internationales à comité de lecture (Déjeant *et al.*, 2014, 2016; Lestini *et al.*, 2019; Ballini *et al.*, 2020; Besançon *et al.*, 2020; Chautard *et al.*, 2020).
2. Les résultats obtenus sur le site de Bellezane montrent que **les résidus de traitement demeurent stables plus de 25 ans après leur mise en place** grâce à une diagénèse rapide.
3. **Les minéraux constitutifs des résidus de traitement**, tant hérités que néoformés, **agissent comme des pièges efficaces quant à la rétention de l'uranium et du ^{226}Ra** . En effet, l'uranium (160 ppm) et le ^{226}Ra (25 Bq/g) résiduels dans la phase solide après traitement représentent plus de 99% du stock total amenant des concentrations dans les eaux interstitielles respectivement de 12 $\mu\text{mol/L}$ (2.8 mg/L) et 0.58 Bq/L pour l'U et le ^{226}Ra .
4. **Les modélisations effectuées confirment la présence excédentaire de pièges minéralogiques** (smectite, oxy-hydroxides ferriques et barytine dans le cas spécifique du ^{226}Ra) **qui** au gré de l'évolution chimique des eaux interstitielles gouvernée par la dissolution du gypse et de la calcite, **maintiendront des concentrations en solution de l'U et du ^{226}Ra toujours faibles**, et ce même en conditions oxydantes, favorables normalement à la migration de l'U(VI).