

Fontenay-aux-Roses, le 12 avril 2024

Monsieur le Président de l'Autorité de sûreté nucléaire

AVIS IRSN N° 2024-00054

Objet : Etude PNGMDR 2016-2018 Orano Mining – site de Bellezane
Modélisation de la mobilité à long terme de l'uranium et du radium 226 dans les
résidus de traitement d'uranium

Réf. : Lettre ASN CODEP-DRC-2023-036352 du 23 juin 2023

Le Plan national de gestion des matières et des déchets radioactifs (PNGMDR) prévoit, dans ses éditions successives, diverses études relatives à l'impact environnemental et sanitaire à long terme de la gestion des anciennes mines d'uranium. A ce titre, Orano étudie la réactivité à long terme, et en particulier la mobilité de l'uranium et du radium, des résidus de traitement minier stockés sur quatre sites de stockage qui présentent des contextes géologiques et hydrogéologiques différents (Lavaugrasse, Bellezane, La Ribière et Le Cellier), afin d'améliorer la description de ces résidus qui constituent le terme source considéré dans l'évaluation d'impact.

L'article 68 de l'arrêté du 23 février 2017 relatif aux prescriptions du PNGMDR demande notamment à Orano de poursuivre et de compléter ses travaux de modélisation du transport de l'uranium et du radium contenus dans les résidus, puis de vérifier et le cas échéant de compléter son étude pour assurer la représentativité de son modèle pour l'ensemble des stockages de résidus miniers. En réponse à cette demande, Orano a transmis deux notes techniques le 17 janvier 2018 et le 6 février 2020, qui traitent respectivement de la modélisation géochimique des résidus stockés sur le site de Bellezane et de la modélisation de la mobilité à long terme de l'uranium et du radium dans ces résidus.

Par la lettre citée en référence, vous sollicitez l'avis de l'IRSN sur les résultats présentés dans la note technique transmise le 6 février 2020 relatifs au modèle géochimique des résidus de traitement miniers de Bellezane et au modèle de transport associé. Vous demandez en particulier à l'IRSN d'examiner la pertinence des méthodologies et des hypothèses présentées par Orano, au regard notamment de la mobilité de l'uranium et du radium au sein des résidus ainsi que de la distribution de ces radionucléides entre la phase solide et l'eau interstitielle. Vous demandez en outre d'indiquer les éventuels sujets susceptibles d'améliorer la modélisation du transfert de l'uranium et du radium, en vue de l'évaluation de l'impact à long terme des stockages de résidus miniers.

De l'évaluation des documents transmis, l'IRSN retient les principaux éléments suivants.

1. MODELISATION GEOCHIMIQUE DES RESIDUS

Le stockage de Bellezane, situé dans le département de la Haute-Vienne, est caractérisé par deux anciennes mines à ciel ouvert (MCO 68 et MCO 105) séparées par une digue de stériles dans lesquelles ont été stockées 1,5 millions de tonnes de résidus de traitement de minerai d'uranium. L'ensemble a été recouvert d'une couverture constituée d'une couche de stériles d'une épaisseur de 2 à 15 m et d'une couche de terre végétale. La couverture a notamment pour fonction de limiter les infiltrations d'eau et de protéger mécaniquement les résidus de l'érosion et d'une éventuelle intrusion.

La construction par Orano du modèle géochimique des résidus stockés sur le site de Bellezane, appelé également modèle « eau-roche », se base sur l'identification des minéraux composant les résidus et sur la caractérisation des eaux interstitielles au sein de la MCO 105. Ces analyses avaient fait l'objet d'une première étude remise par Orano en 2013 dans le cadre du PNGMDR 2010-2012, relative à la caractérisation des résidus de traitement stockés sur les quatre sites précédemment cités, et de l'avis de l'IRSN 2015-00222, puis d'un rapport plus détaillé remis par Orano en 2014. Les principales conclusions de l'IRSN relatives à cette étude sont rappelées au chapitre 1.1 ci-après. L'examen du modèle « eau-roche » retenu par Orano dans le cadre du présent dossier, décrit dans la note technique transmise le 17 janvier 2018, est présenté au chapitre 1.2.

1.1 CARACTERISATION DES MINERAUX ET DES EAUX INTERSTITIELLES

La caractérisation de la phase solide des résidus de Bellezane réalisée par Orano consiste en des analyses géochimiques, minéralogiques et radiologiques d'échantillons prélevés par un carottage effectué en 2011 et traversant l'intégralité des résidus sur 39 m de profondeur. Orano indique que, d'après les analyses, les résidus sont composés de minéraux hérités du minerai (quartz, feldspaths potassiques, micas et argiles) et de phases néoformées durant la diagenèse¹ (gypse, ferrihydrite et barytine). Les résidus présentent, selon Orano, des teneurs moyennes en uranium et en radium 226 respectivement de 169 ppm (soit environ 2 Bq/g) et de 25 Bq/g, et sont relativement homogènes sur les plans minéralogique, chimique et granulométrique.

Les eaux interstitielles, prélevées en 2013 dans un piézomètre localisé au cœur des résidus et crépiné entre 17,0 m et 25,3 m de profondeur, ont également été analysées par Orano. Elles présentent un pH proche de la neutralité (pH = 6,35), sont très faiblement minéralisées et oxydantes (Eh = 138 mV), et riches en calcium, magnésium, sulfates et carbonates. Sur la base de la composition mesurée, une pression partielle de CO₂ élevée est calculée par Orano ($10^{-1,0}$ à $10^{-0,4}$ atm)². L'IRSN rappelle les réserves émises dans son avis 2015-00222 portant sur la représentativité des échantillons d'eaux prélevés, qui l'avaient amené à conclure que le prélèvement à différentes profondeurs représentatives des conditions géochimiques prévalant au sein du stockage était nécessaire pour améliorer la représentativité de l'eau interstitielle. Le présent dossier n'apporte pas de nouvel élément sur ce point.

1.2 CONSTRUCTION DU MODELE EAU-ROCHE

La construction du modèle eau-roche présenté par Orano comprend les trois étapes suivantes :

- la détermination des principaux mécanismes géochimiques impliqués dans la distribution de l'uranium et du radium au sein des résidus, sur la base des résultats expérimentaux et de la littérature,

¹ Processus géologique de solidification des sédiments.

² La présence de CO₂ est liée à la réaction de l'acide sulfurique résiduel avec le carbonate de calcium.

- l'étude des indices de saturation³, afin d'identifier les phases minérales en équilibre avec les eaux interstitielles ainsi que les processus de contrôle de la distribution de l'uranium et du radium,
- la définition d'un assemblage minéralogique représentatif des résidus, sur la base d'une modélisation à l'équilibre thermodynamique entre l'eau interstitielle et l'assemblage minéralogique, visant à reproduire au mieux les concentrations des espèces dissoutes observées en phase aqueuse.

Pour ce qui concerne les mécanismes géochimiques au sein des résidus, Orano a observé expérimentalement que les phases porteuses de l'uranium sont principalement sous forme de minéraux réfractaires hérités du minerai, ainsi que sous forme de phases argileuses de type smectite. L'adsorption de l'uranium sur la ferrihydrite n'a pas été mise en évidence pour des raisons techniques, mais reste un mécanisme de contrôle très probable selon Orano. S'agissant du radium, les expériences montrent un quasi-équilibre avec la barytine, connue pour constituer un piège efficace pour le radium, ce qui conduit Orano à considérer la formation de ce minéral comme le processus principal pilotant la concentration en radium dans l'eau interstitielle. En outre, la sorption du radium sur la ferrihydrite et les smectites est prise en compte par Orano, en accord avec la littérature. **L'IRSN estime que les mécanismes retenus par Orano pour construire le modèle géochimique des résidus de Bellemeuse sont cohérents avec les résultats de caractérisation de la phase solide de ces résidus et la littérature relative aux phases porteuses de l'uranium et du radium.**

S'agissant de l'analyse des indices de saturation, Orano montre que les phases constituant les produits de diagenèse des résidus sont bien en équilibre avec les eaux interstitielles. Cette analyse conduit Orano, au regard des résultats expérimentaux de caractérisation de la phase solide, à considérer des mécanismes de réaction de surface pour le contrôle de la concentration en uranium et un mécanisme de coprécipitation avec la barytine pour le contrôle de la concentration en radium. **Ceci est satisfaisant.**

Pour ce qui concerne l'assemblage minéralogique représentatif des résidus retenu pour modéliser, à l'équilibre thermodynamique, les concentrations des différents éléments chimiques mesurés dans les eaux interstitielles, Orano retient sept minéraux, chacun d'eux pilotant la concentration d'une espèce en solution aqueuse : la calcédoine, le feldspath potassique, la montmorillonite calcique, la ferrihydrite, le gypse, la calcite ainsi que la barytine⁴. Une estimation semi-quantitative des principaux minéraux composant les résidus, issue des résultats expérimentaux, permet à Orano de définir une fraction massique pour chaque minéral composant les résidus. En outre, Orano retient l'adsorption de carbonates d'uranium sur la ferrihydrite, en accord avec la spéciation de l'uranium dans l'eau interstitielle. Concernant l'interaction de l'uranium avec la montmorillonite, Orano considère l'uranium sous la forme uranyle, espèce stable en milieu acide. L'IRSN confirme, sur la base de ses propres calculs effectués avec plusieurs assemblages minéralogiques, que le choix d'Orano est le plus adapté dans la mesure où il conduit à une très bonne reproduction des concentrations des différents éléments chimiques en phase aqueuse. De plus, l'IRSN observe que la proportion calculée d'uranium et de radium piégée par la phase solide (> 99 %) avec cet assemblage est en accord avec les observations expérimentales d'Orano. S'agissant de la sorption, l'IRSN estime que la prise en compte de l'uranium sous forme de carbonates adsorbés sur la montmorillonite pourrait augmenter la concentration de l'uranium dans l'eau si le pH de l'eau interstitielle évoluait vers un pH basique (voir §

³ L'indice de saturation permet de déterminer si l'eau est saturée, insaturée ou sursaturée par rapport à un minéral donné.

⁴ La calcédoine fixe $[Si]_{aq}$, le feldspath potassique fixe $[K]_{aq}$, la montmorillonite-Ca fixe $[Mg]_{aq}$, la ferrihydrite fixe $[Fe]_{aq}$, le gypse fixe $[S]_{aq}$, la calcite fixe $[C]_{aq}$ et la barytine fixe $[Ba]_{aq}$

2.2 ci-après). Toutefois, le fort pouvoir d'adsorption de la ferrihydrite est de nature à compenser cet effet, qui resterait donc *a priori* limité. **En conséquence, l'IRSN estime que le choix effectué par Orano en termes d'assemblage minéralogique est globalement bien justifié.**

Aussi, l'IRSN estime que la méthodologie et les hypothèses retenues par Orano pour la construction du modèle eau-roche des résidus de Bellemeuse sont pertinents et considère que le modèle géochimique résultant est approprié pour l'évaluation de la mobilité de l'uranium et du radium qu'ils contiennent.

2. TRANSPORT DE L'URANIUM ET DU RADIUM DANS LES RESIDUS

2.1 MODELE CONCEPTUEL ET HYPOTHESES

Afin d'évaluer la mobilité de l'uranium et du radium, Orano simule la percolation d'une eau de type granitique au sommet des résidus avec un modèle de transport réactif, qui couple le modèle eau-roche présenté au chapitre 1 ci-avant avec un modèle de transport des solutés. Le modèle de transport retenu est purement advectif et en une dimension. Le système simulé est représenté par une colonne verticale de 25 mètres saturée en eau, qui correspond à la profondeur du stockage. Le caractère monodimensionnel du modèle permet à Orano d'évaluer de manière conservative le transport des radioéléments vers le bas du stockage de résidus. La composition de l'eau granitique correspond aux caractéristiques des échantillons prélevés par Orano dans le piézomètre E60 localisé en amont hydraulique du stockage dans l'encaissant granitique et captant l'aquifère granitique superficiel. Cette eau présente une faible force ionique, un potentiel oxydant et un pH faiblement acide. La durée de simulation de l'évolution des résidus est de l'ordre de 200 000 ans. Orano présente les résultats en termes de variations de composition chimique de l'eau interstitielle, des minéraux et de leur surface dans la dernière cellule de la colonne, qui représente les concentrations relâchées depuis le bas du stockage vers l'environnement.

L'IRSN considère que le choix d'un régime hydraulique purement advectif (sans diffusion), associé à une représentation en une dimension des résidus ainsi qu'à un flux d'eau constant imposé au sommet de la colonne **est acceptable pour une première évaluation des concentrations en uranium et en radium relâchées par le stockage**, compte tenu du caractère *a priori* conservatif d'un tel modèle.

Cependant, l'IRSN estime que l'hypothèse d'une seule composition chimique d'eau de percolation mériterait d'être consolidée par la prise en compte d'autres compositions chimiques. A titre d'exemple, la prise en compte d'une eau météorique qui percolerait au travers des stériles de couverture avant d'atteindre les résidus pourrait être considérée. En outre, le stockage a accueilli des sédiments faiblement marqués et des boues issues de stations de traitement des eaux en surface, qui pourraient être lixiviés par les eaux d'infiltration et conduire à l'entraînement d'espèces chimiques dont il conviendrait d'évaluer l'influence sur la spéciation et donc sur la mobilité des radionucléides. Par ailleurs, le choix des valeurs des paramètres hydrodynamiques du modèle (porosité, conductivité hydraulique et gradient de charge vertical), qui ne repose pas à ce stade sur des mesures, génère des incertitudes significatives sur l'évolution temporelle des concentrations des radioéléments en sortie du système modélisé. **Aussi, l'IRSN estime qu'une étude de sensibilité des concentrations des radioéléments relâchés vers l'environnement à la composition physico-chimique de l'eau de percolation et aux paramètres hydrodynamiques de modèle consoliderait le caractère enveloppe du modèle.**

2.2 EVALUATION DU TRANSPORT DES RADIOELEMENTS ET DE L'EVOLUTION DES RESIDUS

Orano présente les résultats de la simulation de transport-réactif dans la colonne, basée sur le modèle conceptuel et les hypothèses examinées ci-avant, en particulier l'évolution des phases minérales, des propriétés physico-chimiques de l'eau (pH et force ionique), ainsi que l'évolution des concentrations en uranium et en radium dans l'eau interstitielle et dans les phases minérales. Ces résultats indiquent que le pH augmente jusque 8,5 à 23 000 ans puis se stabilise à 6,6 à 150 000 ans. Ils montrent par ailleurs que les résidus limitent fortement la mobilité de l'uranium et du radium. En effet, l'uranium est efficacement piégé sur la phase solide, principalement sur la ferrihydrite mais également sur la montmorillonite. La concentration en uranium dans la phase solide reste constante, de l'ordre de 160 ppm, pendant toute la durée de la simulation, et elle se stabilise en phase aqueuse vers 150 000 ans à une concentration proche de celle de l'uranium dans l'eau granitique. En outre, le radium est efficacement fixé sur la phase solide (initialement dominée par la barytine, puis par la montmorillonite qui devient le piège dominant au bout de quelques milliers d'années), mais l'évolution de sa concentration est pilotée *in fine* par sa demi-vie. Finalement, Orano montre que les concentrations de l'uranium et du radium dans l'eau interstitielle de la dernière cellule de la colonne, soit 2,9 mg/L et 0,68 Bq/L respectivement, demeurent inférieures à leurs concentrations initiales sur le long terme.

Sur la base de ces résultats, **l'IRSN relève qu'Orano dispose désormais d'éléments relatifs à l'évolution du terme source que constitue le stockage de résidus de Bellefleur globalement appropriés pour poursuivre ses travaux d'évaluation d'impact.** L'IRSN constate cependant que ces calculs sont effectués à l'équilibre thermodynamique et n'incluent donc pas de processus cinétiques susceptibles de retarder la précipitation ou la dissolution des phases minérales. Or, les résultats de la modélisation d'Orano montrent que deux minéraux sont totalement dissous au cours de la simulation :

- la calcite, qui pilote le pH sur quelques dizaines de milliers d'années jusqu'à sa dissolution complète,
- le gypse, qui entraîne la libération de sulfates et contribue à maintenir leur teneur suffisamment élevée dans la phase aqueuse pour éviter la dissolution de barytine et, par conséquent, la libération de radium dans l'eau porale.

L'IRSN estime donc que des processus cinétiques associés au gypse et à la calcite pourrait impacter l'évolution géochimique des résidus miniers et, par conséquent, la mobilité des radionucléides. **Aussi, au titre des pistes d'amélioration, l'IRSN considère qu'une évaluation de l'influence des processus cinétiques permettrait d'asseoir la pertinence du modèle thermodynamique retenu vis-à-vis de la mobilité de l'uranium et du radium.**

Enfin, l'IRSN rappelle que, comme le mentionne Orano, l'évaluation d'impact d'un stockage de résidus à l'échelle du site nécessite de le replacer dans son environnement, et par conséquent de définir le modèle hydrogéologique du site incluant ses exutoires, afin d'y intégrer, dans un second temps, le modèle géochimique du terme source constitué par ce stockage. Par ailleurs, en perspective de l'élargissement de cette étude aux autres stockages de résidus, l'IRSN rappelle qu'il appartiendra à Orano, au regard de la variabilité minéralogique et hydrogéochimique des résidus stockés, de réaliser les caractérisations de la phase solide et de l'eau interstitielle des résidus adéquates, en vue de l'adaptation des modèles d'évolution géochimique des résidus et de transport au stockage considéré.

CONCLUSION

Sur la base des documents examinés, l'IRSN estime que l'étude présentée par Orano relative à l'évolution géochimique des résidus du stockage de Bellefleur et au transport de l'uranium et du radium au sein de ce stockage constitue une avancée en vue de l'évaluation de son impact à long terme. Des pistes d'amélioration, identifiées dans le présent avis, pourront à l'avenir consolider ces travaux. Conformément aux recommandations du PNGMDR, il appartient désormais à Orano d'élargir cette étude aux autres stockages de résidus miniers.

Pour le Directeur général et par délégation,
Delphine PELLEGRINI
Adjointe au Directeur de l'Environnement