



HAL
open science

Approche multiscalaire dans l'évaluation de la biodisponibilité de l'uranium des eaux de surface

Benoît Reilé

► **To cite this version:**

Benoît Reilé. Approche multiscalaire dans l'évaluation de la biodisponibilité de l'uranium des eaux de surface. Sciences de l'ingénieur [physics]. 2017. dumas-03549466

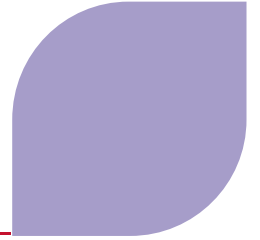
HAL Id: dumas-03549466

<https://dumas.ccsd.cnrs.fr/dumas-03549466v1>

Submitted on 31 Jan 2022

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



APPROCHE MULTISCALEAIRE DANS L'ÉVALUATION DE L'URANIUM BIODISPONIBLE DES EAUX DE SURFACE

DIRECTION OPÉRATIONS & PROJETS / DIRECTION R&D

REILÉ Benoît

Mémoire de fin d'étude pour l'obtention du diplôme :

« **Mastère Eau Potable et Assainissement (EPA)**,
*École Nationale du Génie de l'Eau et de l'Environnement
de Strasbourg (ENGEES),
années 2016-2017* »

DESCOSTES Michael, tuteur en entreprise, AREVA
PAYRAUDEAU Sylvain, tuteur académique, ENGEES

Soutenu à Strasbourg, le 14 Novembre 2017

Avant-propos

Ce mémoire constitue un Travail de Fin d'Études pour la validation du cursus 2016-2017 du Mastère Eau Potable et Assainissement (EPA) de l'École Nationale du Génie de l'Eau et de l'Environnement de Strasbourg (ENGEES).

Je tiens tout d'abord à remercier mon entreprise, AREVA, pour le financement de cette formation de reconversion dans l'exercice de mon contrat. L'ensemble des connaissances que j'ai pu acquérir depuis 2009 au sein de l'entreprise, autour du cycle du nucléaire et plus particulièrement dans l'ingénierie minière, ont été mis au profit de la problématique de cette étude qui s'articule autour de nombreuses disciplines transverses. C'est donc selon une vision pluridisciplinaire que j'ai souhaité aborder le sujet pour en comprendre toutes les nuances : alliant des notions de géologie, d'hydrogéologie, et d'exploitation minière, à des domaines nouveaux pour moi telles que l'écotoxicologie, et la géochimie.

Je tiens à remercier également l'ensemble du personnel de l'ENGEES pour la qualité des enseignements et notamment Pierre-Jean DESSEZ et Valérie FAUX, pour la direction et l'organisation de la formation.

Je remercie Michael DESCOSTES collègue et tuteur en entreprise, mais également Sylvain PAYRAUDEAU tuteur académique pour la confiance et l'aide qu'ils ont pu m'apporter.

Je remercie enfin l'ensemble des mes proches, ma femme, et mon fils Louis, né le 17 septembre 2017, à qui je dédie ce mémoire.

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 2/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

Résumé

URANIUM Ce métal de nature radioactive est mis au profit de l'industrie électronucléaire pour la production d'énergie. La répartition géologique de ce métal est principalement caractérisée par son affinité avec les roches de nature cristalline et tout particulièrement avec les roches plutoniques comme les granites. On retrouve ainsi des gisements dans le monde entier, principalement localisés en contexte cristallin mais également en contexte sédimentaire si les conditions le permettent (notamment la présence d'un fort contraste d'oxydo-réduction). En effet, à l'inverse de la plupart des métaux, l'uranium est un élément dont le comportement en solution est peu commun, avec une plus grande solubilité en milieu oxydant qu'en milieu réducteur.

L'exploitation de cette substance en France depuis les années 1940, et son arrêt il y a une vingtaine d'année implique désormais la gestion des rejets issus de ces anciennes mines. La réglementation française actuellement mise en œuvre se base uniquement sur une concentration maximale de 1.8 mg/L au rejet, sans prendre en compte le milieu récepteur. Malgré l'impulsion par l'Union Européenne, à travers la Directive Cadre sur l'Eau de 2000 imposant aux états membres d'atteindre un bon état écologique des cours d'eau à l'échéance 2021 avec l'évaluation des écosystèmes en présence, aucune réglementation (Norme de Qualité Environnementale) n'est imposée pour cette substance au niveau européen.

Pour pallier ce manque, l'état français a diligenté l'IRSN et l'INERIS pour proposer des **Valeurs Guides Environnementales (VGE)** pour l'uranium. Seulement, l'uranium en solution est constitué d'une multitude d'espèces pour lesquelles seules certaines sont toxiques, dites « **biodisponibles** », et dont la proportion en solution dépend des conditions physico-chimiques de l'eau. À partir des études écotoxicologiques disponibles et de l'extrapolation de leurs résultats, l'IRSN a pu ainsi établir une valeur seuil à 0.3 µg/L en uranium biodisponible. Par ailleurs, du fait de l'absence de dispositifs de mesure in-situ pour évaluer cette fraction, et de la nécessité d'avoir recourt à des modélisations thermodynamiques, l'IRSN propose une démarche graduée qui se base notamment sur un outil simple de détermination des Valeurs Guides Environnementales à respecter en fonction de la composition des eaux (i.e. en fonction du potentiel toxique des espèces de l'uranium en solution). Cet outil simple n'est pourtant pas représentatif des eaux en contexte minier, et peut aboutir à des résultats divergeant avec la fraction biodisponible calculée réellement sur un site en particulier.

Sans encadrement législatif, ces valeurs guides n'ont aucune valeur réglementaire. Mais pour anticiper une évolution de la réglementation vers une prise en compte de la biodisponibilité de l'uranium, AREVA s'est engagée depuis quelques années au titre du **Plan National de Gestion des Matières et des Déchets Radioactifs (PNGMDR)** à réaliser des actions concernant ce sujet, et pour lequel la présente étude s'inscrit. Dans ce cadre général, l'objectif de l'étude est d'adopter une démarche multiscalair et multidisciplinaire pour comprendre la répartition de l'uranium biodisponible dans les eaux de surface à l'échelle européenne, française et à l'échelle d'un site minier en particulier. Cette étude permet d'évaluer les enjeux pour le passif minier uranifère français dans un objectif opérationnel (vulnérabilités, adaptation des plans d'actions).

À l'échelle des cours d'eau européens, une étude conjointe AREVA/CEA a été lancée pour étudier la répartition de la biodisponibilité de l'uranium à partir des données de **l'atlas géochimique européen (FOREGS)**. Les premiers résultats de cette étude démontrent une répartition en fonction du contexte géologique en présence, et notamment une répartition préférentielle de l'uranium biodisponible en milieu cristallin avec des eaux peu minéralisées et dont l'acidité implique la constitution de complexes de nature biodisponible. Ils démontrent également la difficulté à établir un bruit de fond qui pourrait s'appliquer à une échelle locale. Ces résultats peuvent néanmoins être utilisés dans un but opérationnel, pour déterminer par analogie la vulnérabilité des différents sites miniers à l'application de ces VGE. En effet, les études lancées par l'Après Mine France ne concernent qu'une quantité limitée de sites pour lesquels une VGE a été caractérisée, mais pour lesquels la biodisponibilité n'a pas été évaluée puisqu'elle nécessite la réalisation d'analyses additionnelles. L'étude sur le site du Fraisse (Razès, 87) permet d'illustrer la réalisation d'une campagne d'évaluation de la biodisponibilité, de comparer les résultats avec la méthode graduée proposée par l'IRSN, et d'en établir ses limites.

Mots clés : uranium, eau, biodisponibilité, PNGMDR, VGE, bruit de fond, FOREGS

Approche multiscalair dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 3/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

1 Sommaire général

1	SOMMAIRE GENERAL	4
2	INTRODUCTION	5
3	L'URANIUM : GENERALITES, ECOTOXICOLOGIE, ET REGLEMENTATION	6
3.1	L'URANIUM ET SES GENERALITES	6
3.2	ÉCOTOXICOLOGIE DE L'URANIUM – ÉVALUATION DE LA TOXICITE DE L'URANIUM.....	11
3.3	REGLEMENTATION SUR LES REJETS D'URANIUM DANS LES EAUX DE SURFACE	15
4	BRUIT DE FOND HYDROGEOCHIMIQUE DE L'URANIUM	22
4.1	GENERALITES	23
4.2	BRUIT DE FOND GEOCHIMIQUE DANS LE SUBSTRAT.....	23
4.3	BRUIT DE FOND DANS LES COURS D'EAU DE SURFACE.....	26
4.4	BRUIT DE FOND GEOCHIMIQUE & ECHELLE D'ANALYSE	36
5	LE PASSIF MINIER URANIFERE FRANÇAIS : ETAT DES LIEUX ET EVALUATION DU RISQUE REGLEMENTAIRE	37
5.1	LE PASSIF MINIER URANIFERE FRANÇAIS	38
5.2	REJETS DANS LE MILIEU RECEPTEUR.....	38
5.3	BASE DE DONNEES DE SUIVI ENVIRONNEMENTAL	41
5.4	ÉVALUATION DES RISQUES POUR LES ÉCOSYSTEMES.....	42
5.5	ÉVALUATION DE LA BIODISPONIBILITE.....	43
6	APPROCHE METHODOLOGIQUE A L'ECHELLE D'UNE ANCIENNE EXPLOITATION D'URANIUM : LE FRAISSE	46
6.1	OBJECTIFS & ENJEUX	47
6.2	ÉTUDE DE SITE.....	47
6.3	GESTION DES EAUX D'EXHAURE MINIERE.....	48
6.4	SUIVI ENVIRONNEMENTAL – ÉVOLUTION DES CONCENTRATIONS EN URANIUM	51
6.5	CAMPAGNES D'ÉVALUATION DE LA BIODISPONIBILITE	52
6.6	SYNTHESE DES INDICATEURS.....	62
7	CONCLUSION ET PROSPECTIVES	64
8	ANNEXES	70

2 Introduction

Entre les années 1950 et 2001, l'industrie électronucléaire française a sollicité l'exploitation de mines d'uranium pour son approvisionnement en combustible. La mise à l'arrêt de ces mines depuis presque deux décennies implique désormais leur gestion à long terme, et notamment la responsabilité de gérer le rejet des eaux d'exhaure minière dans les milieux récepteurs.

L'uranium est un élément radioactif, dont l'écotoxicologie a été peu étudiée en comparaison d'autres substances polluantes. Il n'existe pas de réglementation européenne en la matière. En France, la réglementation sur les rejets en uranium est encadrée par le Règlement Général de l'Industrie Extractive qui a modernisé le cadre réglementaire du code minier. Son cortège réglementaire impose uniquement une valeur de concentration seuil au rejet et ne prend pas en compte la sensibilité du milieu récepteur.

Depuis 2000, la Directive Cadre sur l'Eau a impulsé une dynamique communautaire en imposant aux états membres d'améliorer l'état écologique des cours d'eau pour atteindre un bon état à l'échéance de 2021. Cette directive transposée dans le droit français, implique la prise en compte du milieu récepteur, avec notamment l'évaluation de l'état des écosystèmes le constituant. Seulement, au niveau européen l'uranium n'est toujours pas considéré comme une « substance prioritaire » et ne fait pas l'objet d'une Norme de Qualité Environnementale imposant une concentration à respecter. Pour pallier ce manque, les pouvoirs publics français ont classés l'uranium en tant que « substance pertinente » à étudier, et ont lancé par le biais de l'INERIS et de l'IRSN un programme d'étude et détermination de Valeurs Guides Environnementales. L'approche développée est délicate à mettre en œuvre du fait de niveaux de toxicité différents entre les espèces d'uranium, d'un faible jeu de données écotoxicologiques, et d'une méconnaissance du bruit de fond naturel environnant, aboutissant ainsi à des valeurs guides très contraignantes.

Afin de bien comprendre cette problématique qui s'établit à travers de nombreuses disciplines transverses, il est nécessaire d'adopter une approche didactique et à l'échelle systémique. L'étude se développe donc selon une approche mutiscale et pluridisciplinaire pour donner toutes les clés de lecture de ce sujet aux multiples facettes, et de cerner tous les enjeux engageant un opérateur minier comme AREVA.



Qu'est-ce que l'uranium ?

Qu'elle est sa forme ?

À quoi sert-il ?

Où le trouve-t-on en France et en Europe?

**Quel est le passif minier
uranifère en France?**

**Quel est l'impact de l'uranium
sur les écosystèmes?**

**Quelle réglementation pour
les rejets en uranium ?**

**Comment évaluer l'impact
des rejets miniers ?**

Approche multiscalair dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 5/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

3 L'uranium : généralités, écotoxicologie, et réglementation

3.1 L'uranium et ses généralités



POINTS CLÉS

- De symbole « U », ce métal de la famille des actinides est l'élément le plus lourd présent sur terre à l'état naturel. Avec une abondance d'environ 2.7 ppm dans les roches terrestres, l'uranium est constitué de trois isotopes ^{238}U , ^{235}U , et ^{234}U , dominé à 99% par ^{238}U . De nature radioactive, l'uranium se désintègre progressivement en élément fils moins lourds tout en émettant des particules d'énergie. La nature fissile de l'un de ses isotopes ^{235}U , qui se caractérise par sa capacité à émettre un neutron et de l'énergie par l'éclatement de son noyau et ainsi entretenir une réaction en chaîne, est à l'origine de son utilisation dans l'industrie électronucléaire pour générer de l'énergie au sein des centrales nucléaires.
- L'uranium se retrouve naturellement dans les formations géologiques qui nous entourent. S'intégrant difficilement dans la structure cristalline de la plupart des roches silicatées, on retrouve préférentiellement l'uranium dans les roches aux cristallisations les plus tardives, de type plutonique (granitoïdes). On peut retrouver par ailleurs des minéralisations d'uranium en contexte sédimentaire en fonction des conditions d'oxydo-réduction du milieu.
- On estime que les ressources en uranium à travers le monde s'élèvent à environ 7 600 000 tonnes. Chaque année ce sont près de 60 000 tonnes de cette substance qui sont produites à travers le monde, notamment au Kazakhstan (40%) et au Canada (22%). Avec une production annuelle de l'ordre de 9 000 tonnes, AREVA constitue le troisième producteur mondial d'uranium. Son exploitation est réalisée selon diverses méthodes en fonction des caractéristiques propres aux gisements : Mines à Ciel Ouvert (MCO), Travaux Miniers Souterrains (TMS), ou par lixiviation in-situ (ISR).
- L'exploitation minière de cette substance est à l'origine de rejets en uranium dans les eaux de surface. Le comportement de l'uranium en solution montre une plus grande solubilité en milieu oxydant avec la prédominance des formes hexavalentes $^{(+VI)}$ de l'uranium, qu'en milieu réducteur pour lequel les formes tétravalentes $^{(+IV)}$ prédominent. La solubilité de l'uranium est favorisée par la présence de complexants forts tels que les carbonates ou la matière organique.

3.1.1 L'uranium - Qu'est-ce que l'uranium ?

L'uranium, découvert par l'Allemand Martin Heinrich Klaproth en 1789 et baptisé d'après le nom de la planète Uranus découverte quelques temps auparavant, est un métal de la famille des actinides, de numéro atomique 92, et portant le symbole « U ». Élément naturel le plus lourd, l'uranium est le 48^{ème} élément le plus abondant sur terre avec une teneur moyenne de 2.7 g/t (ou ppm).

L'uranium peut se présenter sous 4 formes d'oxydation différentes ($^{+III}$ à $^{+VI}$), et pour lesquelles les formes tétravalente $^{(+IV)}$ et hexavalente $^{(+VI)}$ sont prédominantes à l'état naturel. Il se décline sous trois formes isotopiques présentant pour chacun un nombre de neutrons différents (^{238}U , ^{235}U , et ^{234}U), et pour lesquels leur instabilité et leur tendance à se désintégrer en un élément fils leur confèrent d'être

Approche multiscalair dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 6/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

radioactifs. L'isotope ^{238}U représente à lui seul 99% de l'uranium à son état naturel. L'uranium est donc un élément radioactif, instable, qui se désintègre en un élément fils en émettant des particules énergétiques (alpha, bêta, gamma) selon une chaîne de désintégration progressive des différents éléments qui la composent (Cf. Figure 1). La désintégration de chacun des éléments de la chaîne est dictée par le temps de demi-vie, c'est-à-dire, le temps nécessaire à la désintégration de la moitié de ses noyaux. En prenant pour exemple l'isotope de l'uranium le plus abondant naturellement (^{238}U), la chaîne de désintégration présente 14 éléments fils avant d'atteindre une forme de plomb stable (^{206}Pb). Le temps de demi-vie de l'uranium 238 s'élève ainsi à 4,46 milliards d'années, à l'inverse de ses éléments fils comme le Proactinium 234, le Polonium 218, le Plomb 214, le Bismuth 214, qui présentent des temps de demi-vie de l'ordre de la minute, ou du Polonium 214 avec une vitesse de désintégration extrêmement rapide et de l'ordre de 200 μs .

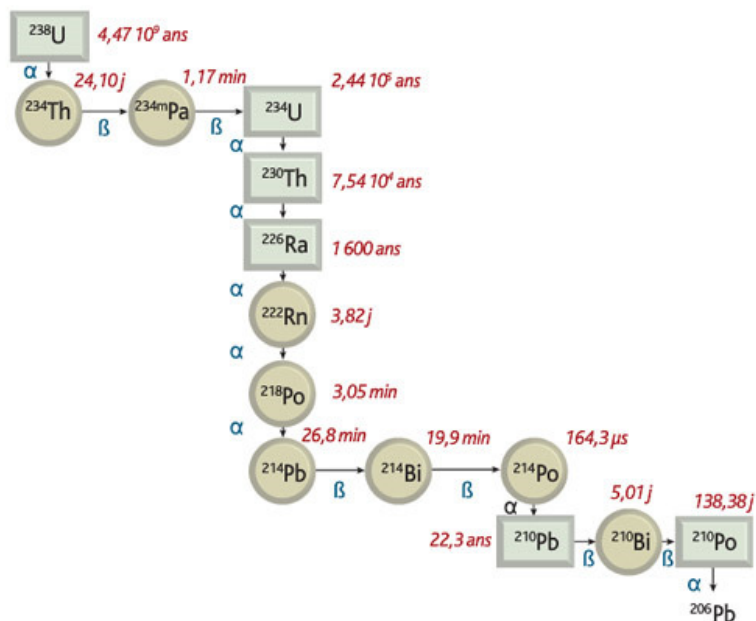


Figure 1 - Chaîne de décroissance radioactive de l'isotope 238U – IRSN

3.1.2 Intérêts et enjeux – Pourquoi produit-on de l'uranium ?

La nature instable de l'uranium à se désintégrer en émettant des particules d'énergie (alpha, bêta, gamma) sont mis à profit depuis les années 1970 dans la production d'énergie de type électronucléaire. Ce processus de production énergétique se base sur la fission nucléaire : sous le choc d'une collision avec un neutron, l'éclatement d'un noyau lourd (l'uranium) et sa division en nucléides plus légers libère une quantité importante d'énergie. La collision qui permet d'émettre de nouveaux neutrons, alimente donc d'autres collisions dans une réaction en chaîne : on parle alors de fission nucléaire. L'élément à l'origine de cette fission est dit « fissile ». Seul l'isotope ^{235}U est de nature fissile. Avec seulement 0,7 % d'abondance en ^{235}U , l'uranium naturel extrait dans les mines doit être enrichi à hauteur de 4 % avant d'être introduit en tant que combustible dans une centrale nucléaire (contrairement à un enrichissement de l'ordre de 90 % pour l'industrie militaire). La fraction résiduelle de l'enrichissement, dit « uranium appauvri » (i.e. appauvri en ^{235}U), est quant à lui entreposé dans des centres de stockage adaptés pour son éventuelle réutilisation.

Dans une centrale nucléaire, l'énergie libérée par cette réaction en chaîne permet de réchauffer des circuits de fluide caloporteur (circuit primaire et circuit secondaire), qui, transformé en vapeur, permet de produire de l'électricité par le biais de turbines électriques. Dans le monde, la puissance installée du parc de centrales nucléaires atteint près de 370 Giga-Watts (GW) et représente 15 % de l'énergie totale produite. Énergie essentiellement décarbonée, elle contribue de façon importante à la réduction des émissions à effet de serre mais implique à contrario des enjeux de gestion des déchets nucléaires à très long terme, avec tous les enjeux sociétaux qu'ils peuvent susciter. En France, le parc électronucléaire

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 7/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

compte 59 réacteurs répartis sur 19 sites. Il représente une puissance installée de l'ordre de 63 GW et contribue à hauteur de 75 % de la production électrique française, avec une tendance récente à la baisse du fait de la croissance des énergies renouvelables.

3.1.3 Gîtes & Gisements – Où trouve-t-on l'uranium, et comment l'exploite-t-on?

3.1.3.1 Formes naturelles – À quoi ressemble l'uranium ?

Du fait de sa grande valence et son grand rayon ionique, l'uranium est un élément qui s'intègre difficilement dans la structure cristalline de la plupart des roches silicatées constituant à elles seules plus de 90 % de la fraction massique de la lithosphère et de la croûte terrestre. Ce comportement de faible affinité avec la phase minérale est dit comportement « incompatible » (i.e. peu de comptabilité avec la phase minérale). De ce fait, au cours de la cristallisation d'un magma, le fluide silicaté (roche en fusion) s'appauvrit progressivement en éléments « compatibles » par leur intégration à la cristallisation des premiers minéraux, et s'enrichit à l'inverse en éléments qui sont « incompatibles » avec ces phases minérales (phénomène de fractionnement). Le fluide s'enrichit donc progressivement en uranium au cours de la cristallisation des magmas et se retrouve donc préférentiellement dans les stades finaux de différenciation (cristallisation). **Les roches felsiques (acides) sous leur forme plutonique (granitoïdes ayant eu le temps de cristalliser avec des cristaux macroscopiques), présentent ainsi de plus fortes teneurs en uranium que les roches mafiques (basiques).**

Dans les roches sédimentaires, la teneur en uranium dépend essentiellement de l'origine des produits d'érosion les constituants, et des conditions redox du milieu. Les plus fortes teneurs en uranium se développant dans les faciès les plus riches en matière organique, associés à des conditions anoxiques, ou des sédiments riches en phosphates. À l'inverse, les formations sédimentaires peu abondantes en uranium sont principalement constituées de sables inorganiques, mais peuvent présenter localement des litages argileux aux teneurs en uranium plus élevées.

L'uranium se retrouve ainsi sous plusieurs formes minérales comme les minéraux d'uraninite (UO_2 , penchblende), de brannerite (UTi_2O_6), et de carnotite ($K_2(UO_2)_2(VO_4)_2 \cdot 3H_2O$). On retrouve également l'uranium en tant que trace, dans les minéraux de zircon, dans les minéraux de phosphates (apatite, monazite), ou encore de silicates riches en terres rares (allanite).

3.1.3.2 Exploitation de l'uranium - Où trouve-t-on l'uranium dans le monde et comment est-il exploité?

Les gisements d'uranium se répartissent partout dans le monde, et peuvent parfois constituer de véritables provinces uranifères (Kazakhstan, Canada, Australie etc.). Dans le vocabulaire minier, on distingue les gîtes correspondant à la présence anormale d'une substance au-delà du bruit de fond régional, d'un gisement pour lequel la quantité de métal en présence et sa teneur peuvent démontrer la viabilité économique d'une exploitation. Dans un gisement conventionnel en exploitation, seul le minerai (ou « ressources ») techniquement et économiquement récupérable est extrait. La quantité de métal effectivement extraite après traitement prend la dénomination de « réserves ». Le reste des ressources non économiques sont considérées comme « stériles » et sont stockées à proximité de l'exploitation sous forme de « verses ». La définition de stérile n'a qu'une dimension économique et ces matériaux peuvent donc contenir des teneurs importantes de la substance exploitée. Son stockage peut être à l'origine d'un impact environnemental important s'il n'est pas réalisé ou suivi correctement.

Différentes méthodes d'exploitation permettent d'exploiter les gisements d'uranium. Leur sélection dépend notamment des caractéristiques du gisement (nature des formations, dureté, profondeur, contraintes de surface, coûts d'exploitation, etc.) :

- Lixiviation In-Situ (appelée plus couramment *In-Situ Recovery* -ISR-), réalisée par la création d'un réseau de puits d'injection de solution acide mettant en solution l'uranium, et de puits de production permettant le pompage des solutions uranifères et leur envoi par un réseau hydraulique vers une usine de traitement (environ 55 % de la production mondiale)

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 8/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

- Mines à Ciel Ouvert (MCO), exploitation réalisée à partir d'une fosse (carrière) de profondeur croissante, constituée de pistes d'accès pour les engins, et de gradins permettant la stabilité de l'ensemble (environ 30 % de la production mondiale)
- Travaux Miniers Souterrains (TMS), exploitation réalisée par l'intermédiaire de galeries souterraines, permettant préférentiellement la production de gisements profond ou filonien (de nature verticale) (environ 15 % de la production mondiale)

Dans le monde on estime que les ressources en uranium s'élève à environ 7 600 000 tU, pour des réserves d'environ 3 000 000 MtU. La production mondiale en uranium s'élève à environ 60 000 tonnes d'uranium en 2016 (Cf. Figure 2), exploitées principalement au Kazakhstan (40 %), au Canada (22 %), et plus accessoirement en Australie, au Niger, en Namibie et en Russie (5 % de la production mondiale). Avec une production de plus de 9 000 tonnes d'uranium, AREVA représente 15 % de la production mondiale et constitue le 3^{ème} producteur mondial derrière l'entreprise Kazakhstanaise (KAZATOMPROM), et Canadienne (CAMECO).

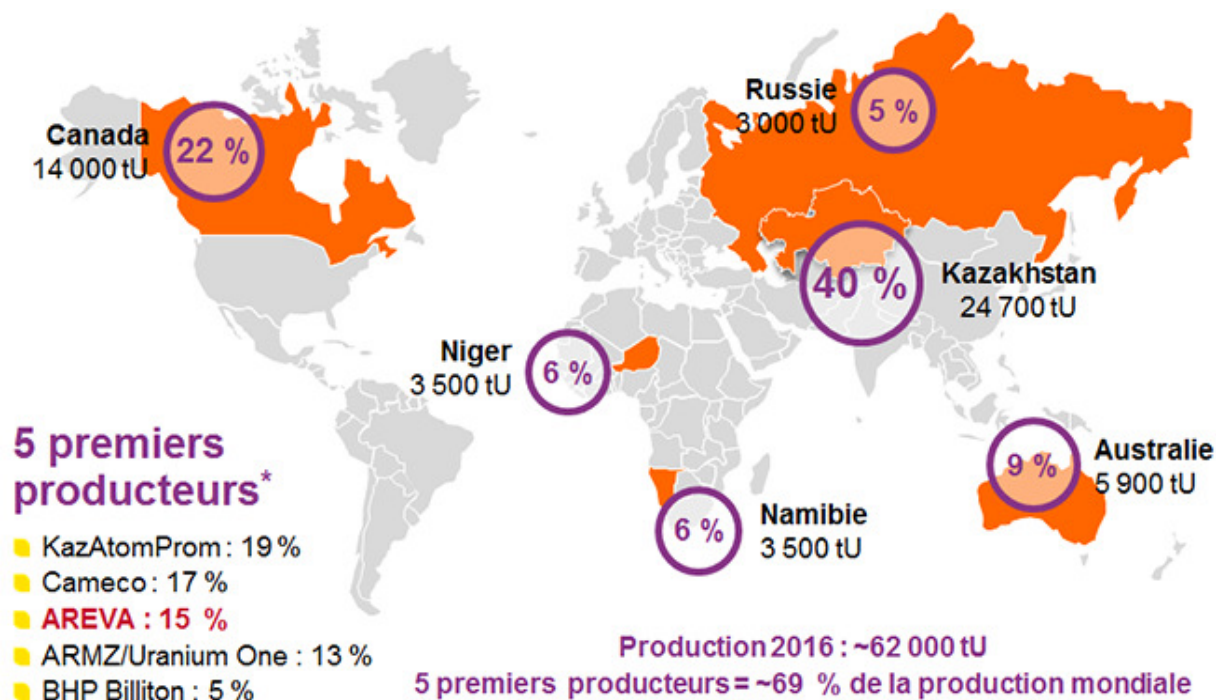


Figure 2 - Carte de la production mondiale en uranium – AREVA, rapport annuel 2016

3.1.3.3 Géochimie de l'uranium en solution – Sous quelle forme l'uranium est-il rejeté en solution ?

Les activités minières uranifères sont généralement à l'origine de rejets qui peuvent représenter un danger pour l'environnement. En effet, les eaux au contact du minerai d'uranium voient leur composition chimique et radiologique se modifier notamment lors de l'arrêt des travaux miniers et du noyage progressif des mines, et leur rejet dans le milieu naturel peuvent être à l'origine d'un risque écotoxicologiques pour les organismes en présence.

Le comportement en solution de l'uranium diffère des autres métaux: par sa facilité de complexation avec certains ligands (carbonates, hydroxydes, nitrates, phosphates), l'uranium est beaucoup plus soluble en milieu oxydant sous sa forme hexavalente^(+VI) qu'en milieu réducteur sous sa forme tétravalente^(+IV).

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 9/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

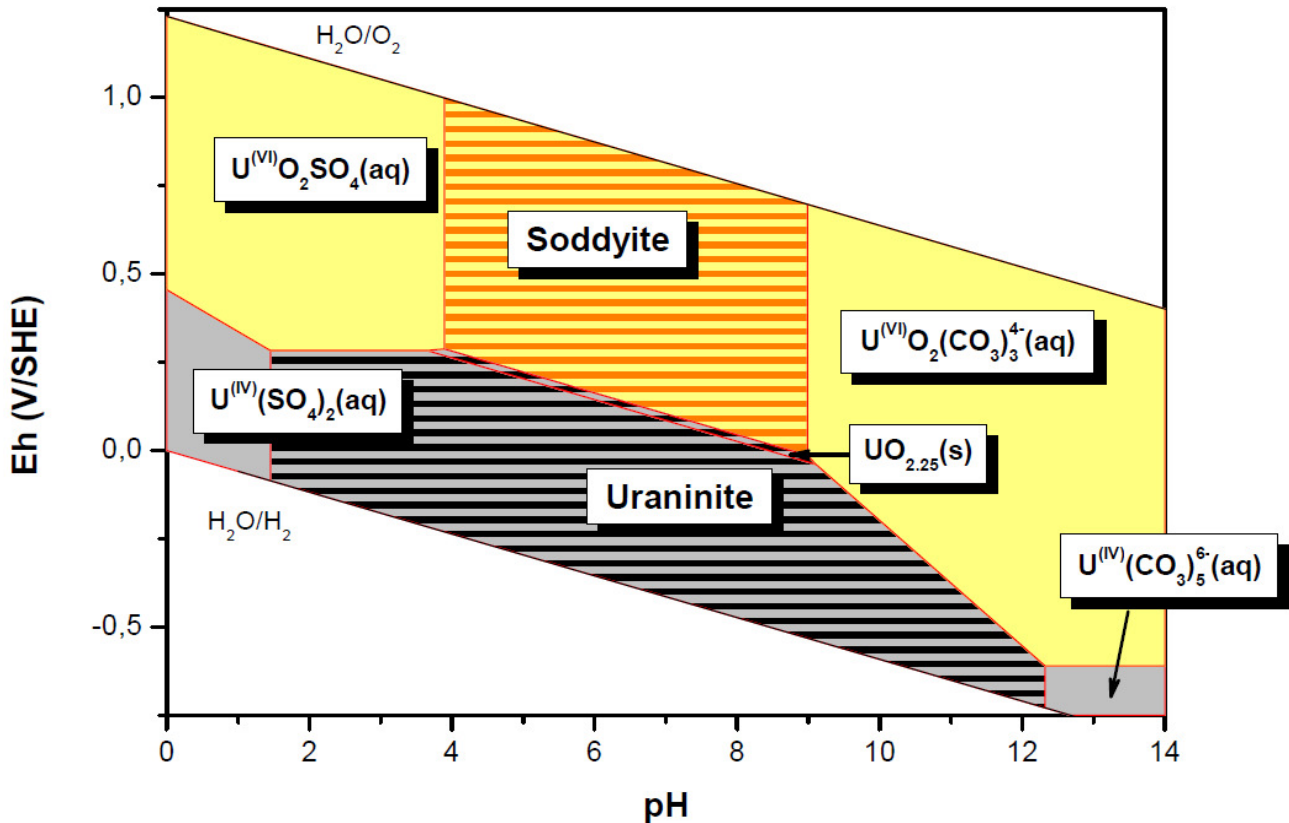


Figure 3 - Diagramme de Pourbaix de l'uranium en contexte minier et selon la limite réglementaire de rejet (1.8 mg/L). En gris, le domaine de prédominance pour l' U^{IV} ; en jaune, le domaine de prédominance pour l' U^{VI} ; en hachuré, les domaines relatifs aux phases solides – Descostes et al., 2011

Les concentrations en espèces dissoutes de l'uranium dépendent donc du potentiel redox, du pH, et des ligands présents en solution (nature et concentration). Ce comportement implique donc une plus grande solubilité de l'uranium dans les eaux de surface (milieu oxydant par la présence d'oxygène) que dans les eaux souterraines moins oxygénées. L'apport d'eaux météoriques oxydantes au contact de minerai d'uranium est donc à l'origine de sa mise en solution et de son transport jusqu'en surface. Dans les eaux de surface de nature oxydantes, l'uranium prédomine sous sa forme hexavalente correspondant à l'ion uranyle UO_2^{2+} , et forme différents complexes dissous en fonction du pH (Cf. Figure 3):

- **pH acide** : prédominance des complexes **uranyl-sulfates** $U^{(VI)}O_2SO_4(aq)$
- **pH alcalin** : prédominance des complexes **uranyl-carbonate** $U^{(VI)}O_2(CO_3)_3^{4-}(aq)$



Les exploitations minières exploitant (ou ayant exploité) des matériaux uranifères génèrent des rejets en uranium qu'il convient de caractériser d'un point de vue **écotoxicologique** afin de déterminer son impact pour l'environnement.

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 10/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

3.2 Écotoxicologie de l'uranium – Évaluation de la toxicité de l'uranium



POINTS CLÉS

- En milieu aquatique, une substance peut se trouver à l'état dissout, colloïdal, ou particulaire. La fraction dissoute d'une substance est composée de différentes espèces chimiques (spéciation chimique) dont la nature et les concentrations dépendent des caractéristiques physico-chimiques des eaux.
- Les espèces biodisponibles d'une substance correspondent aux espèces chimiques dissoutes absorbées par les organismes présents dans l'écosystème. Ces espèces deviennent toxiques pour l'organisme à partir d'un certain seuil d'accumulation. Les études de l'IRSN ont permis d'identifier 4 espèces biodisponibles pour l'uranium : UO_2^{2+} , $UO_2(OH)^+$, $UO_2(OH)_2$ (aq.), UO_2CO_3 (aq.)
- L'uranium présente une double toxicité chimique et radiologique, dont le seuil de toxicité chimique est le plus pénalisant (de l'ordre de 10^{+1} µg/L)
- Aucun outil ne permet actuellement une mesure directe de la concentration des espèces biodisponibles de l'uranium dans le milieu naturel (les dispositifs de mesure in-situ existants ne peuvent, au mieux, que mesurer l'uranium total en solution en s'affranchissant de la fraction colloïdale).
- L'évaluation de la biodisponibilité de l'uranium doit être réalisée selon un processus analytique comprenant la réalisation d'une campagne de prélèvements des eaux, de leur analyse chimique, et d'un calcul des différentes espèces en solution à l'équilibre thermodynamique.

3.2.1 Notions générales d'écotoxicologie

L'écotoxicologie est une discipline à l'interface entre l'écologie et la toxicologie. Elle s'attache à étudier les effets toxiques de substances naturelles ou artificielles sur les organismes vivants (faune et flore). L'écotoxicologie aquatique se base sur 3 thématiques principales que sont, l'appréhension des processus dans leur globalité (tests de toxicité, modélisations), l'interaction avec la structure et les fonctions biologiques (mesure de l'accumulation des substances dans les tissus et organes des organismes), et la caractérisation des concentrations environnementales (mesures dans les différents compartiments des écosystèmes).

L'un des enjeux les plus importants dans l'écotoxicologie est d'arriver à transposer les mesures et expérimentations réalisées en laboratoires, aux systèmes naturels beaucoup plus complexes et variables.

3.2.2 Définition de la biodisponibilité

En milieu aquatique, une substance se présente sous une forme dissoute, colloïdale, ou particulaire. La répartition de la substance sous ces différentes formes dépend des conditions physico-chimiques (pH, conditions redox, O_2 dissout, etc.), et des conditions écologiques du milieu (rôle des organismes dans l'écosystème).

La fraction dissoute d'une substance peut se décomposer en différentes espèces chimiques distinctes composant sa « spéciation chimique ». Pour une même substance, il est possible que seules certaines espèces soient directement absorbables par les organismes, composant ainsi la « fraction biodisponible ». Par définition, les autres espèces d'une substance non absorbables par les organismes ne sont donc pas biodisponibles (Cf. Figure 4). **La biodisponibilité correspond donc à la**

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 11/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

fraction immédiatement disponible et absorbable par les organismes (à l'inverse de la fraction « bioaccessible », disponible à long terme). Les fractions particulaires, colloïdales et les complexes dissous forts ne sont pas considérés comme biodisponibles. La fraction biodisponible d'un élément est ainsi toujours inférieure ou égale à la concentration dissoute de cet élément, qui est elle-même inférieure ou égale à la concentration totale soluble de cet élément : $[U]_{\text{total soluble}} \geq [U]_{\text{total dissous}} \geq [U]_{\text{biodisponible}}$ (on distingue la fraction soluble, filtrée à $0.45 \mu\text{m}$, de la fraction dissoute, filtrée par ultrafiltration à 10KDA (2 à 5 nm)).

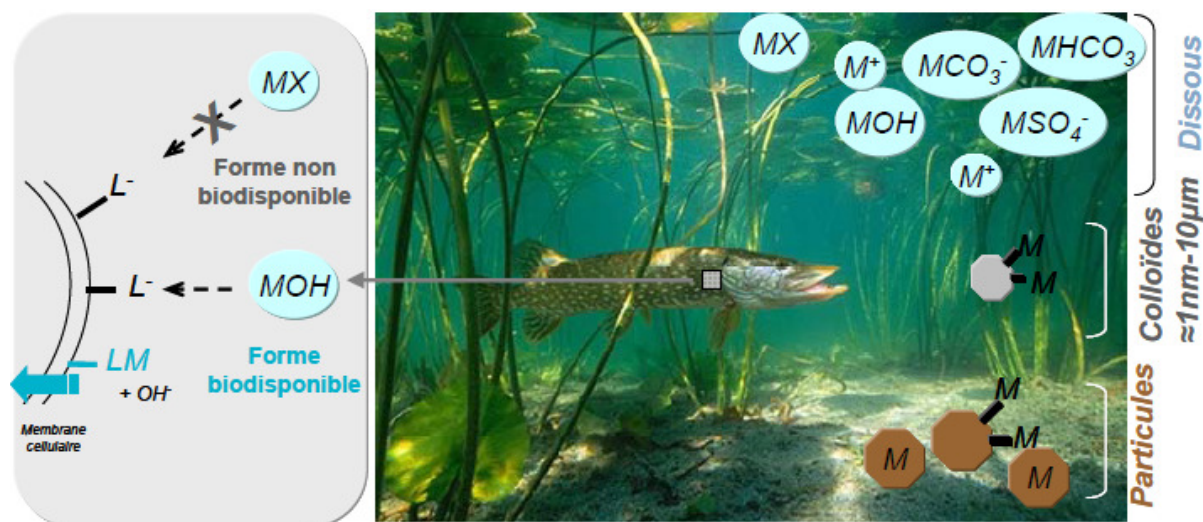


Figure 4 –Illustration de la spéciation d'une substance M en milieu aquatique et son interaction potentielle avec les sites réactifs biologiques –ligans, L– situés sur les membranes cellulaires - PHROMMAVANH

La biodisponibilité d'une substance dépend de multiples paramètres difficiles à appréhender, que ce soient les conditions d'exposition à la substance (fonction de la nature de la substance, de sa distribution dans les différents compartiments, de la physico-chimie du milieu, et de la spéciation de la substance), de la capacité d'absorption par les organismes (fonction du type d'organisme, de sa physiologie, de son âge), mais également du mode d'exposition (fonction de son type, et de sa durée).

Les connaissances actuelles concernant les espèces biodisponibles de l'uranium ne sont pas encore assez exhaustives pour recourir à des outils permettant de modéliser de manière précise l'accumulation et la toxicité de l'uranium pour les organismes aquatiques (outils complexes type BLM - *Biologic Ligand Model* - de modélisations physiologiques en fonction des conditions physicochimiques. Cependant, compte tenu des études écotoxicologiques actuellement disponibles et de l'état actuel des connaissances, l'IRSN a défini quatre espèces biodisponibles pour l'uranium (Beaugelin et al, 2009, [4]):



Pour la suite de cette étude, seules ces 4 espèces de l'uranium sont considérées comme biodisponibles. La définition de la concentration en uranium biodisponible correspond donc à la somme des concentrations de ces 4 espèces.

3.2.3 Mécanismes de toxicité

L'uranium est une substance à double toxicité, chimique et radiologique, avec des mécanismes respectifs distincts :

- **Chimiotoxicité**

L'expression de la **toxicité chimique** s'effectue à partir d'un certain seuil d'absorption de la substance, en suivant deux phases successives :

- **phase toxicocinétique**, définissant les premières étapes de défense (absorption, distribution dans l'organisme, métabolisation, élimination)

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 12/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

= **élimination** de la fraction **OU bioaccumulation** de la substance

- **phase toxicodynamique**, définissant l'évolution de la concentration bioaccumulée (transfert vers les sites d'action toxique, interaction avec les sites d'action toxique)

= **effet toxique à partir d'une concentration et d'un temps d'exposition**

Les effets toxiques se produisent lorsqu'il y a compétition avec des métabolites perturbant ainsi les fonctions cellulaires, ou lorsqu'il y a compétition avec des cations vitaux (ex : Ca^{2+} , Na^+), induisant une diminution de la concentration en cations vitaux dans l'organisme.

- **Radiotoxicité**

La toxicité radiologique est liée à l'effet des **rayonnements ionisants** (rayons alpha, bêta, gamma) provenant de la désintégration radioactive de radionucléides. L'exposition aux radionucléides peut se faire d'une manière externe ou interne et peuvent entraîner des effets immédiats (brûlures, nécroses) pour les fortes irradiations, et des effets à long terme aléatoires (cancers) pour les plus faibles niveaux d'irradiations. L'exposition des organismes au risque radiologique est quantifiée selon diverses grandeurs qui prennent en compte les phénomènes physiques et l'absorption des rayonnements par les organismes :

- la désintégration radioactive d'un élément est quantifiée par son **activité radioactive** correspondant au nombre d'atomes radioactifs qui se désintègrent par unité de temps (vitesse de désintégration), et s'exprime en Becquerel (Bq)
- l'absorption par les organismes d'une certaine quantité d'énergie générée par les rayonnements ionisants se quantifie selon la **dose absorbée**, et s'exprime en Gray (Gy = J/kg)
- la notion de **dose équivalente** permet de pondérer l'absorption plus ou moins grande des rayonnements en fonction de leur type, et s'exprime en Sievert (Sv)
- la **dose efficace** pondère quant à elle les différences d'absorption des rayonnements en fonction du type et de la nature même des organes et tissus, et s'exprime également en Sievert (Sv)

Lorsqu'une substance présente une double toxicité, c'est le seuil de toxicité le plus faible entre les deux types de toxicité qui est retenu. **La chimiotoxicité de l'uranium, évaluée à une valeur de l'ordre de 10^{+1} µg/L est plus pénalisante que la radiotoxicité évaluée à une valeur de l'ordre de 10^{+2} µg/L** (Ménétrier et al, 2000).

3.2.4 Méthodes d'évaluation de la biodisponibilité

Il existe deux approches différentes pour évaluer la biodisponibilité d'une substance. Une approche expérimentale qui se base sur une mesure in-situ par des dispositifs essayant de reproduire l'absorption par les organismes (mécanismes cinétiques), et une approche calculatoire qui se base sur des calculs thermodynamiques aboutissant à une spéciation de la substance.

3.2.4.1 Approche expérimentale

Pour tenter d'approcher les conditions d'absorption sélective des substances par les organismes selon un contrôle cinétique, différents dispositifs in-situ ont été développés. Ils reposent tous sur la **reconstitution d'une membrane naturelle au travers de laquelle les substances migrent pour atteindre un dispositif de capture** (résines chélatantes). On retrouve ainsi une multitude de dispositifs de mesures reposant sur ce principe, tels le DGT (*Diffusive Gradient in Thin films*), le PLM (*Permeation Liquid Membrane*), ou l'Artificial Mussel (*moule artificielle*).

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 13/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

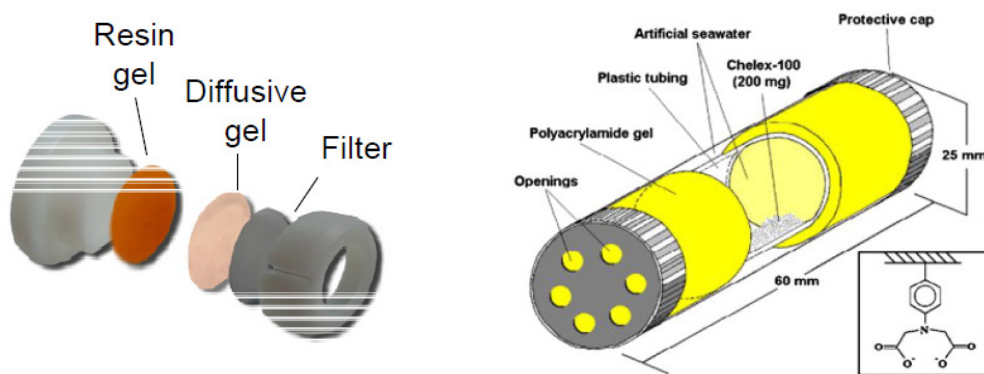


Figure 5 – Illustrations de dispositifs de mesure in-situ utilisant un gel de diffusion et un dispositif de capture par résines. A gauche, vue éclatée d'un DGT (Leermarker) ; à droite, schéma de principe d'une moule artificielle (Kibria).

Le système de DGT (Cf. Figure 5), initialement retenu par AREVA Mines pour étudier la biodisponibilité de l'uranium du fait de sa facilité d'utilisation, de la robustesse du dispositif, et de son efficacité dans des milieux physico-chimiques divers, n'a pas permis de démontrer son utilité dans le cadre d'une étude menée sur d'anciens sites miniers uranifères (notamment lors de la présence de complexes ternaires $(CaUO_2(CO_3)_2)^{2-}$ en aval des rejets miniers étudiés). **L'utilisation de dispositifs de mesures in-situ n'est pas adaptée pour la caractérisation de la fraction biodisponible de l'uranium en solution** (Phrommavanh et al, 2015, [43]). Ils démontrent cependant une grande efficacité dans la mesure de la concentration en uranium total dissout en s'affranchissant totalement de la fraction colloïdale (présence d'une barrière membranaire).

L'évaluation de la fraction biodisponible de l'uranium nécessite donc une approche calculatoire nécessitant une campagne d'échantillonnage des eaux, d'analyses en laboratoire, et enfin d'un calcul de spéciation.

3.2.4.2 Approche calculatoire

L'approche calculatoire fait l'hypothèse que les échanges entre la substance en solution et les organismes sont assez rapides, et sont contrôlés par des mécanismes thermodynamiques.

Le calcul de spéciation repose sur le calcul des équilibres thermodynamiques d'une solution à partir de résultats d'analyse sur les eaux. Ce calcul peut être réalisé manuellement à l'aide d'un logiciel de tableur classique de façon fastidieuse, ou par des codes de calculs spécifiquement développés pour cette application. Il existe une multitude de codes de calcul permettant les calculs de spéciation (tels Chemical workbench, PHREEQC, CHESS, etc.) qui reposent sur un calcul de mise à l'équilibre de la solution en fonction des différentes constantes thermodynamiques renseignées.

L'exhaustivité de la base de données des constantes thermodynamiques des différentes réactions en jeu est primordiale dans la représentativité des résultats obtenus. Il existe une multitude de bases de données thermodynamiques avec un jeu de constantes différentes et plus ou moins exhaustif. **Du fait d'une plus grande exhaustivité des constantes réactionnelles mettant en jeu les différentes espèces de l'uranium, la base de données thermodynamiques PRODATA développée conjointement par le CEA et AREVA est utilisée en interne pour les calculs de spéciation de l'uranium.**



La nécessité de réaliser des calculs de spéciation pour déterminer la fraction biodisponible de l'uranium, et donc de déterminer ses niveaux de toxicité dans les milieux aquatiques, est à l'origine d'une évolution récente de la réglementation.

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 14/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

3.3 Réglementation sur les rejets d'uranium dans les eaux de surface



POINTS CLÉS

- Les anciens sites miniers uranifères sont réglementés depuis les années 1980 par le Règlement Général des Industries Extractives (RGIE), et doivent respecter une valeur maximale de 1.8 mg/l d'uranium total dissout au rejet.
- Depuis 2000, les différentes Directives Cadre sur l'Eau (DCE) et leur transposition dans le droit français ont permis de rénover le cadre réglementaire concernant la qualité des eaux (gestion par masses d'eau, définition des zones de mélange, prise en compte du bruit de fond, etc.). Aucune Norme de Qualité Environnementale (NQE) n'est actuellement établie pour l'uranium à l'échelle de la communauté européenne.
- Depuis 2007, de nombreuses études sont réalisées par l'IRSN pour pallier ce manque en proposant ainsi une Valeur Guide Environnementale (VGE) pour la concentration en uranium.
- Initialement portées sur l'uranium total dissout, les VGE proposées depuis 2011 prennent en considération la notion d'écotoxicité et donc de biodisponibilité de l'uranium. L'analyse par l'IRSN des différentes études écotoxicologiques sur l'uranium et la reconstitution de leur environnement d'exposition ont permis d'évaluer un niveau de toxicité de l'uranium biodisponible à 0.3 µg/L.
- La biodisponibilité de l'uranium étant variable selon les caractéristiques physico-chimiques des eaux (spéciation chimique), l'IRSN a proposé un arbre de détermination qui permet d'évaluer la concentration maximale en uranium à ne pas dépasser en fonction de différentes classes d'eau (alcalinité, pH, et COD). Ce travail s'est basé sur les données de l'atlas géochimique européen (FOREGS).
- L'arbre de détermination permet de déterminer une VGE conditionnelle de l'uranium qui peut varier de 0.3 µg/l à 30 µg/l selon 4 classes d'eaux aux paramètres physico-chimiques distincts. Elles correspondent aux plus faibles valeurs proposées à l'échelle internationale, quel que soit leur usage.
- Actuellement, les rejets des anciens sites miniers uranifères sont réglementés soit par application du RGIE, soit par arrêtés préfectoraux (valeurs conformes ou plus strictes que le RGIE). Les différentes VGE proposées n'ont pas encore de valeur réglementaire, mais leur éventuelle application nécessite un travail de veille et d'évaluation du risque réglementaire pour les anciens sites miniers uranifères français.

3.3.1 Rappel de l'ordonnancement juridique en France

L'évolution de la réglementation dans le domaine de l'industrie extractive des matières radioactives a induit une véritable stratification de dispositifs réglementaires (sources régulières d'ambiguïtés ou d'erreurs d'interprétation), qui nécessite pour sa bonne compréhension un rappel succinct de l'ordonnancement juridique à l'échelle européenne et française.

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 15/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

Droit communautaire



Le conseil européen et/ou le parlement européen émettent des **directives cadres** qui donnent une vision communautaire des objectifs réglementaires à atteindre à une échéance donnée dans un domaine précis, tout en laissant la liberté des moyens à mettre en œuvre pour y parvenir. Elle permet d'harmoniser la législation des différents pays de l'union européenne. On parle de **directive fille** lorsque la directive vient compléter ou modifier une première directive cadre. Chaque directive doit faire l'objet d'une **transposition** dans la législation nationale de chacun des pays de la communauté Européenne (rédaction de nouveaux textes de lois, modification des lois en place, ou abrogation des textes de lois en contradiction avec la directive).

Droit Français



La **constitution** occupe le plus haut degré dans l'ordonnement juridique français et fait office de clé de voute pour l'ensemble du système juridique national.



Une **loi** est une règle écrite et générale votée par le parlement (assemblée et sénat). Elle se situe hiérarchiquement sous la constitution.



Un **décret d'application** signé par le président de la république ou le premier ministre permet d'entériner et d'appliquer la loi. Le décret se situe hiérarchiquement en-dessous des lois.



Les **arrêtés** constituent un acte administratif émanant d'une autorité différente de celles du président de la république ou du premier ministre. Ils peuvent provenir d'un ministère (arrêté ministériel), d'une préfecture (arrêté préfectoral), ou d'une mairie (arrêté communal), avec une portée réglementaire (portée générale qui s'applique à tous) ou individuelle (portée nominative, géographique etc.). Les arrêtés se situent hiérarchiquement en-dessous des décrets.

L'ensemble des dispositions juridiques dans un domaine concerné doivent respecter l'ordre hiérarchique de dépendance (Arrêtés > Décret > Loi > Constitution).



La **circulaire** (également appelée « instructions », ou « note de service ») émane quant à elle d'un ministère et constitue une sorte de « notice explicative » à destination des agents du service public pour interpréter les lois et ainsi les faire respecter de manière uniforme sur l'ensemble du territoire national. Elle est en principe dépourvue de valeur réglementaire.



Tout autre avis d'experts ou d'institutions internationales, de plans stratégiques, de recommandations, ou encore valeurs guides, ne peuvent prétendre à une quelconque portée réglementaire. Ils peuvent donner seulement d'éventuelles indications dans les orientations futures de la réglementation.

3.3.2 Évolution de la réglementation sur les rejets en uranium

3.3.2.1 Base réglementaire : Code minier et Règlement Général de l'Industrie Extractive (RGIE)

Hérité de la refondation de la loi fondamentale sur les mines de 1810, le code minier régit les exploitations minières depuis 1956. Du fait de l'évolution des techniques d'exploitation intervenues depuis le code minier, le Règlement Général de l'Industrie Extractive (RGIE) de 1980 a modernisé les aspects de santé, de sécurité, et de gestion environnementale dans les mines et carrière. Deux décrets (80-331 [35] et 90-222 [33]) ont par ailleurs permis respectivement d'appliquer et de compléter le RGIE, et constituent désormais la base réglementaire dans ce domaine.

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 16/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

Au-delà des aspects relatifs à l'exploitation d'un gisement, cette base réglementaire encadre les exploitations sur le volet environnemental avec notamment la nécessité de gérer leurs rejets et leur suivi dans le milieu récepteur (RGIE, article 9(II), décret n°80-331, 07/05/1980). Un chapitre est d'ailleurs consacré à la gestion des produits radioactifs et impose notamment un suivi des rejets sur l'ensemble des compartiments de l'écosystème du milieu récepteur (sédiments, faune et flore), en prenant en considération la temporalité de chacun de ces compartiments (RGIE, article 14(V), décret n°80-331, 07/05/1980). Le règlement et ses décrets successifs définissent les règles et les seuils réglementaires qui doivent être respectés à minima sur les sites. Ainsi, le seuil réglementaire imposé par le décret 90-222 complétant le décret 80-331 d'application du RGIE indique un **seuil de 1.8 mg/L d'238U au rejet** (rejet avant mélange dans le milieu naturel).



3.3.2.2 Modernisation du cadre réglementaire

3.3.2.2.1 Directives européennes sur l'eau

Malgré, une première directive européenne datée de 1976 (76/464/CEE) qui a inscrit l'uranium dans la liste numéro II des substances polluantes sans disposition contraignante, **la modernisation du cadre réglementaire dans le domaine de l'eau a été impulsée par la Directive Cadre sur l'Eau (DCE) du 23 octobre 2000 (2000/60/CE [31])**. Cette directive a pour objectif de prévenir et de réduire la pollution en eau, d'établir une gestion durable de l'eau, de protéger l'environnement, d'améliorer l'état des écosystèmes aquatiques, et d'atténuer les effets des événements extrêmes. **La directive impose ainsi d'évaluer l'état écologique et l'état chimique des cours d'eau afin d'atteindre un « bon état écologique des cours d'eau » à l'échéance de l'année 2015** (objectif repoussé en 2021). L'évaluation de l'état chimique des cours d'eau repose notamment sur une première liste de « substances prioritaires » et de « substances dangereuses prioritaires » établissant pour chacune d'elles un seuil de concentration réglementaire, appelé Norme de Qualité Environnementale (NQE). Par ailleurs, pour compléter la directive cadre et pour faire suite aux différents travaux d'écotoxicologie sur les Éléments en Trace Métalliques (ETM), **la directive fille de la Directive cadre sur l'eau introduit des notions de biodisponibilité** en préconisant de « *tenir compte [au regard des NQE] de la dureté, du pH ou d'autres paramètres liés à la qualité de l'eau qui affectent la biodisponibilité des métaux* » (2008/105/CE du 16 décembre 2008, partie B, ANNEXE I) pour chacune des substances prioritaires identifiées.



L'uranium n'est pas mentionné dans les listes des « substances prioritaires » et « substances dangereuses prioritaires » et ne présente donc aucune réglementation à l'échelle européenne.

3.3.2.2.2 Réglementation française

Pour pallier le manque de réglementation européenne sur certaines substances, la circulaire ministérielle 2007/23 [30] a défini une première liste de Normes de Qualité Environnementale Provisoire (NQE_p) pour 41 substances jugées « pertinentes » dont figure l'uranium. Dans ce cadre, l'ONEMA a demandé à l'INERIS et l'IRSN de développer un programme d'études permettant de « [...] mieux comprendre les processus de bio-accumulation des contaminants et leur transfert dans la chaîne trophique » et aboutir à la définition de valeurs seuils indicatives en utilisant la même méthodologie que celle utilisée pour établir les Normes de Qualité Environnementales (NQE) à l'échelle européenne.



Plus récemment, deux plans nationaux d'action dits « Plan Micropolluants » ont été établis successivement en 2010 puis en 2016 pour définir l'orientation stratégique globale de réduction des pollutions en milieu aquatique. Ces plans d'actions permettent de cadrer et de porter des projets permettant notamment d'améliorer le diagnostic de la contamination et la connaissance de l'impact des substances sur les milieux aquatiques ou encore de poursuivre les travaux en cours sur la définition de valeurs de référence écotoxicologiques dans les milieux aquatiques.



Ces valeurs seuils dénommées Valeur Guide Environnementale (VGE) - ou plus anciennement Norme de Qualité Environnementale Provisoire (NQE_p) - n'ont qu'une valeur indicative et n'ont aucune portée réglementaire. Cependant, la volonté des pouvoirs publics d'établir ces valeurs seuils indicatives va dans le sens d'une future réglementation qu'il est nécessaire d'anticiper.

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 17/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

3.3.3 Valeur Guide Environnementale (VGE)

3.3.3.1 Méthode générale de détermination

La méthode de détermination d'une Valeur Guide Environnementale (VGE) est identique à celle établie pour la détermination des Normes de Qualité Environnemental (NQE). Les NQE sont établies à partir d'une méthodologie élaborée au niveau européen (INERIS, 2011, [22]) qui repose sur le processus simplifié suivant :

- 1) **collecte des données écotoxicologiques** disponibles pour chacun des compartiments (eau, sédiments, biotes, eaux de consommation humaine, produits de consommation humaine) et évaluation de leur qualité (méthodes, standards, normes)
- 2) **extrapolation des valeurs écotoxicologiques** de chacun des compartiments de façon probabiliste par analyse statistique d'un large jeu de données, ou de façon déterministe par application de facteurs d'extrapolation (AF, *Assesment Factor*) sur un faible jeu de données
- 3) **proposition d'une valeur seuil de référence pour chacun des compartiments** (QS, *Quality Standard* ou encore appelée PNEC, *Predicted Non Effect Concentration*) en identifiant les différentes hypothèses et incertitudes qui y sont liées
- 4) **proposition d'une valeur seuil** (VGE, ou NQE si portée réglementaire) établie selon la plus faible valeur seuil de référence des compartiments étudiés

3.3.3.2 Détermination de la VGE générique par l'IRSN

Les études écotoxicologiques concernant l'uranium ne sont pas aussi abondantes que celles concernant d'autres substances polluantes. Pour l'uranium, seuls les compartiments « eau », « sédiments », et « santé humaine » présentent un jeu de données suffisant pour définir des valeurs de références spécifiques (QS). Par ailleurs, le faible jeu de données écotoxicologiques relatives à l'uranium pour les compartiments étudiés nécessite une extrapolation déterministe (AF) qui dépend du degré d'exhaustivité du jeu de données (nombre d'études, nombre de niveaux trophiques étudiés, etc.).

Compartiment « Eau » - AA-QS_{Water} & MAC-QS_{Water}

Au sein du compartiment « Eau », on distingue l'exposition des organismes à une toxicité chronique définit selon une concentration moyenne annuelle (AA-QS_{water}, *Average Annual Quality Standard*), d'une toxicité aigüe en cas de pollution intermittente (ou accidentelle) et définit selon une concentration maximum admissible (MAC-QS_{water}, *Maximum Acceptable Concentration Quality Standard*).

La plus faible valeur d'écotoxicité chronique de l'uranium dans l'eau correspond à une étude sur des crustacés (*Daphnies, Ceriodpahnia Dubia*) présentant une concentration sans effet observable (NOEC, *Non Effect Concentration*) de 2.7 µg/L (Pickett et al, 1993). Du fait d'un jeu de données écotoxicologiques comprenant trois données long terme pour trois niveaux trophiques différents (poissons, daphnies et algues), un facteur d'extrapolation (AF) de 10 est appliqué, donnant après arrondi, une **valeur spécifique de référence pour la toxicité chronique de l'uranium dans l'eau de 0.3 µg/L (AA-QS_{Water})**.

La valeur d'écotoxicité aigüe de l'uranium dans l'eau est établie à partir d'un ensemble d'études sur des algues convergeant vers une valeur de concentration montrant des effets sur 50 % de la population étudiée (CE50, Concentration Effect 50 %) de l'ordre de 40 µg/L (Pradines et al, 2005, Markich et Camillerie, 1997). Le jeu de données comprend une donnée long terme pour trois niveaux trophiques différents (poissons, crustacés et algues), impliquant un facteur d'extrapolation (AF) de 100, et donnant une **valeur spécifique de référence pour la toxicité aigüe de l'uranium dans l'eau de 0.4 µg/L (MAC-QS_{Water})**.

Approche multiscalair dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 18/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

Compartiment « Sédiments » - $QS_{Sediment}$

L'étude écotoxicologique disponible qui présente la plus faible valeur d'écotoxicité de l'uranium sur des organismes benthiques présents dans les sédiments (*Hyallella*, *Hyallella Azteca*), démontre une concentration sans effet observable (NOEC) de l'ordre de 40 mg/kg (en poids sec). Comme le jeu de données écotoxicologiques comprend trois données long termes pour trois taxons différents, un facteur d'extrapolation (AF) de 10 est appliqué, aboutissant à une **valeur spécifique de référence pour la toxicité de l'uranium dans les sédiments secs de 4 mg/kg ($QS_{Sed.}$)**. Cette valeur correspond à une concentration équivalente dans une colonne d'eau à l'équilibre avec le sédiment de l'ordre de **2 µg/L**.

Compartiment « Santé humaine » - $QS_{Biota_Human\ Health}$ & $QS_{Distributed\ Water_Human\ Health}$

La valeur seuil de référence concernant la toxicité de l'uranium pour les eaux potables correspond à la valeur réglementaire définie par l'ANSES, donnant une **valeur spécifique de référence pour la toxicité de l'uranium sur la santé humaine liée à la consommation d'eau potable de 15 µg/L (QS_{DW_HH})**. Pour comparaison, l'Organisation Mondiale pour la Santé (OMS) préconise d'établir ce seuil à 30 µg/L.

L'impact sur la santé relatif de la consommation de produits alimentaires n'a pas été suffisamment étudié et **ne permet pas d'établir de valeur de référence pour la toxicité de l'uranium sur la santé humaine liée à l'ingestion d'aliment (QS_{Biota_HH})**.

Valeur Guide Environnementale (VGE)

Au regard de la méthodologie appliquée dans le cadre de la détermination des Normes de Qualité Environnementale, la **Valeur Guide de Environnementale (VGE) définie pour l'uranium dans l'eau correspond à 0,3 µg/L**. Celle-ci correspond en effet à la valeur spécifique de référence (QS) la plus faible obtenue pour l'ensemble des compartiments étudiés (toxicité chronique de l'uranium dans l'eau, AA- QS_{water}).

Tableau 1 – Synthèse des différentes données écotoxicologiques et des valeurs de références spécifiques ayant abouti à l'établissement d'une Valeur Guide Environnementale pour l'uranium

Compartiments étudiés		Valeur de toxicité retenue	Facteur d'extrapolation (AF)	Valeur spécifique de référence (QS)		Valeur Guide Environnementale (VGE, ou NQEp)
Eau	Toxicité chronique	3 µg/L	10	AA- QS_{Water}	0.3 µg/L	0.3 µg/L MIN [QS]
	Toxicité aiguë	40 µg/L	100	MAC- QS_{Water}	0.4 µg/L	
Sédiments		40	10	$QS_{Sed.}$	2 µg/L	
Biote		-	-	QS_{Biota}	-	
Santé humaine	Eau de consommation	Valeur eau potable (ANSES)		QS_{Biota_HH}	15 µg/L	
	Produits alimentaires	-	-	-	-	

3.3.3.3 Outil de détermination de la VGE conditionnelle

Compte tenu de la toxicité variable des différentes espèces de l'uranium en solution (notion de biodisponibilité) et de la nécessité de recourir à des modélisations de spéciation pour évaluer leur concentration (impossibilité technique de définir une spéciation d'eau naturelle en laboratoire), l'IRSN développe et propose depuis 2012 un outil simple d'aide à la décision permettant de définir une « VGE Conditionnelle » prenant en compte le faciès hydrogéochimique des eaux (IRSN, 2015, [25]).

À partir d'une composition d'eau donnée, cet outil, qui se présente sous la forme d'un arbre de détermination (dendrogramme), a pour objectif de définir une concentration seuil en uranium total dissout (U_{max}) pour lequel la fraction en uranium biodisponible ne dépasse pas la « VGE Générique »

de l'uranium dans l'eau de 0,3 µg/L. À la différence de la « VGE générique » de 0,3 µg/L, les « VGE conditionnelles » s'établissent entre une concentration de 0.3 et 30 µg/L, et ne sont valables que dans le champ de composition des eaux données.

L'IRSN s'est basée sur les données de chimie des eaux françaises provenant de l'atlas géochimique européen FOREGS (Cf. chapitre 4.3.1, p26) et a développé cet arbre de détermination en procédant de la manière suivante :

1. définition de **classes d'eaux** à partir des résultats d'analyse du FOREGS en France
2. calcul d'une valeur de **concentration maximale en uranium dissout (U_{max}-FOREGS) correspondant théoriquement à une concentration en uranium biodisponible de 0.3 µg/L (VGE Générique)** pour l'ensemble des analyses de chacune des classes d'eau
3. synthèse bibliographique et **sélection des études écotoxicologiques recevables**, relatives à l'impact de l'uranium dans l'eau
4. définition de la **classe d'eau des milieux d'exposition des études écotoxicologiques**, et positionnement des valeurs écotoxicologiques (U_{max}-écotox) dans chacune des classes considérées
5. détermination de la « VGE Conditionnelle » correspondant à la **plus faible valeur U_{max} pour chacune des classes** d'eau
6. définition d'un **arbre de détermination** en fonction des classes d'eau identifiées et de la valeur U_{max}. retenue pour chacune d'elles

L'outil développé permet ainsi de proposer une valeur en uranium total dissout à respecter pour ne pas dépasser la concentration en uranium biodisponible de 0.3 µg/L, en fonction du contexte physico-chimique à l'aval du rejet des effluents miniers.

3.3.3.4 Évolution de l'arbre de détermination

L'arbre de détermination a été modifié à de nombreuses reprises par l'IRSN, compte tenu de la difficulté à définir les paramètres principaux pilotant la biodisponibilité, du faible jeu de données écotoxicologiques pour l'uranium, et d'une identification pas suffisamment exhaustive de l'ensemble des espèces biodisponibles de l'uranium. Chacun de ces arbres de détermination, publiés régulièrement dans les études de l'IRSN, mentionnent des paramètres, des plages, et des valeurs seuils différentes, qu'il n'est pas pertinent de détailler.

Actuellement, l'arbre de détermination le plus récent et communiqué publiquement (Cf. Figure 6), se base sur 4 classes d'eau différentes, définies par leur alcalinité, leur pH, et leur concentration en Carbone Organique Dissout. La VGE conditionnelle proposée varie alors d'une valeur de 0.3 µg/L en uranium total dissout pour la classe d'eau n°4 (concentration en COD inférieure à 6 mg/L, pH inférieur à 7.5, et alcalinité inférieure à 75 mg/L), jusqu'à valeur de 30 µg/L en uranium total dissout pour la classe d'eau n°1 (alcalinité supérieure à 75 mg/L). Les valeurs proposées ne sont valables que sur des eaux respectant un pH compris entre 5.5 et 8.8, une alcalinité comprise entre 1 et 400 mg/L, une concentration en COD inférieur à 70 mg/L, et une dureté comprise entre 5 et 1000 mg/L. Les eaux en-dehors de ce domaine d'application doivent appliquer la VGE Générique de 0.3 µg/L.

La version provisoire et non publiée du Guide Technique de gestion des anciennes mines d'uranium (GT) indique par ailleurs un arbre de détermination dont l'arborescence est identique à celui proposé par l'IRSN à la différence près que la VGE conditionnelle de la classe n°4 est relevée à 1 µg/L pour des raisons pratiques (limites de détection courante d'analyse de l'uranium en laboratoire).

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 20/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

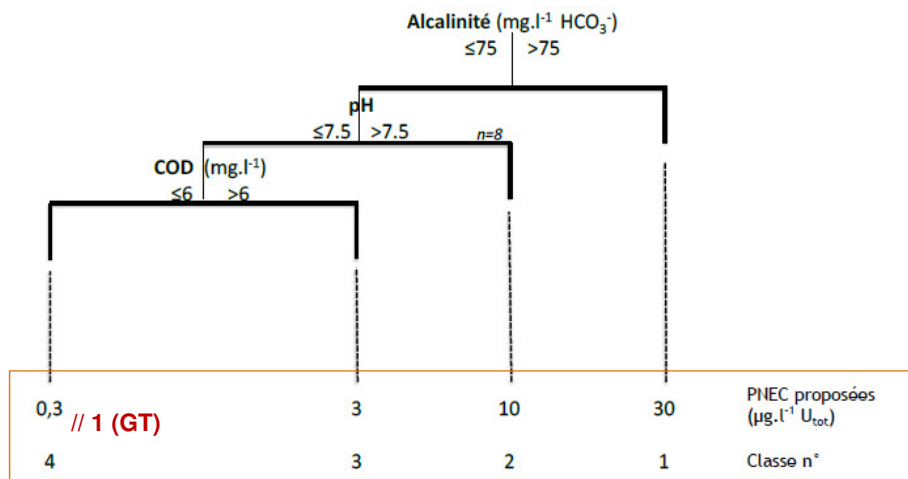


Figure 6 - Arbre de détermination des PNEC_{eau} conditionnelles de l'uranium à différents domaines physico-chimiques (IRSN, modifié selon proposition GT 2015)

3.3.3.5 Application et prise en compte du bruit de fond

Pour prendre en compte le fait que l'uranium peut être présent naturellement dans les eaux, l'IRSN recommande par ailleurs de considérer le Bruit De Fond géochimique de l'uranium (BDF) (Cf. chapitre 4.3, p26) dans l'application de la VGE. L'application du bruit de fond se fait selon une approche en Risque Ajouté (RA) ou en Risque Total (RT), en fonction de sa valeur:

- BDF > 0.3 µg/L, approche en **Risque Ajouté** : $VGE_{BDF} = BDF + 0.3 \mu\text{g/L}$
- BDF < 0.3 µg/L (ou non connu), approche en **Risque Total** : $VGE_{BDF} = 0.3 \mu\text{g/L}$

3.3.4 Réglementation en vigueur & Veille réglementaire

D'après l'ordonnancement juridique français et le corpus de dispositifs réglementaires ou informatifs relatifs aux rejets en uranium, le RGIE constitue la seule réglementation de base pour les rejets en uranium dans le milieu récepteur, et ce, malgré les valeurs guides définies par l'IRSN. **Les rejets des anciens sites miniers uranifères français doivent donc respecter les prescriptions du RGIE (1.8 mg/L au rejet) ou être conformes à des arrêtés plus contraignants.**

Les travaux réalisés depuis 2007 par l'IRSN ont aboutis à la proposition de valeurs guides environnementales qui s'inscrivent dans une approche graduée d'Évaluation des Risques sur les Écosystèmes (ERE, Cf. Annexe 8.1.1, p 71, et Annexe 8.1.2, p 72).

L'application complexe de l'arbre de détermination des VGE_{conditionnelles} semble être à l'origine d'une récente volonté informelle (réunion AREVA/MSNR, sans communication publique) d'abandonner l'outil pour une évaluation plus pragmatique basée uniquement sur la dernière étape de l'ERE : l'évaluation de l'état écologique des cours d'eau. La publication du GT attendue dans les prochains mois devrait confirmer cette volonté. L'abandon éventuel de cet outil proposé par l'IRSN ne signifie pas non plus l'abandon de la volonté des pouvoirs publics à proposer une valeur guide à vocation réglementaire. Il est important de retenir que les travaux de l'IRSN vont depuis l'origine dans le sens d'une réglementation plus restrictive, entérinant la notion de biodisponibilité avec toute sa complexité, et prenant en compte la notion de bruit de fond géochimique.



La définition du **bruit de fond naturel** d'une substance est un élément fondamental pour quantifier l'impact environnemental d'un rejet anthropique. Autant sa définition réglementaire pourrait paraître simple et triviale dans sa mise en œuvre, autant dans son application, il est difficile de s'accorder complètement sur sa définition.

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 21/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

4 Bruit de fond hydrogéochimique de l'uranium



POINTS CLÉS

- L'uranium se retrouve à l'état naturel dans les formations géologiques selon une répartition hétérogène et représentative de la diversité géologique. En France, on retrouve principalement l'uranium dans les massifs constitués principalement de roches cristallines (Massif Central, Massif Armoricain, Vosges, Alpes, Pyrénées, etc.).
- L'atlas géochimique européen (FOREGS) a permis d'établir une première cartographie du bruit de fond des cours d'eau de surface à l'échelle européenne à partir de 808 points de prélèvements sur des cours d'eau d'ordre 1 et d'un bassin versant inférieur à 100 km².
- Les cartes de répartition de l'uranium en solution et dans les sédiments issus de l'atlas géochimique européen présentent une certaine dichotomie contre-intuitive. Le partage de l'uranium sous sa forme soluble ou insoluble s'explique par des différences de complexation qui sont fonction de la composition chimique des eaux et ainsi des grandes unités géologiques en présence (l'uranium se complexant plus facilement avec la présence d'ions majeurs):
 - > dans les **massifs cristallins** où les teneurs en uranium sont fortes dans le substrat, les eaux sont généralement plus acides, peu minéralisées, et impliquant une faible complexation de l'uranium en solution. L'uranium se retrouve donc préférentiellement dans sa fraction particulaire, caractérisé par des **concentrations relativement faibles dans les eaux et relativement fortes dans les sédiments**.
 - > dans les **bassins sédimentaires** où les teneurs en uranium sont relativement faibles dans le substrat, les eaux sont généralement plus alcalines, très minéralisées, et impliquant une forte complexation de l'uranium en solution. L'uranium se retrouve donc préférentiellement dans la fraction dissoute, caractérisé par des **concentrations relativement fortes dans les eaux et relativement faible dans les sédiments**.
- La distribution des concentrations en uranium biodisponible présente quant à elle un comportement inverse. Principalement piloté par le pH du fait de la biodisponibilité des espèces de l'uranium complexées en milieu acide (ce qui n'est pas le cas pour les espèces complexées en milieu alcalin), les plus fortes concentrations en uranium biodisponible se retrouvent dans les eaux plus acides des massifs cristallins, et les plus faibles concentrations en uranium biodisponible dans les eaux plus alcalines des bassins sédimentaires.
- La concentration moyenne en uranium montre également une distribution fonction du cycle orogénique dans lequel s'inscrit le cours d'eau prélevés. À l'inverse des cycles orogéniques anciens (Précambrien), les cycles orogéniques les plus récents (Alpins) présentent de plus forts pH, de plus fortes concentrations en uranium dans leurs eaux, mais une plus faible fraction biodisponible. Ceci pourrait s'expliquer par des processus de démantèlement plus ou moins avancés (fort démantèlement des massifs anciens mettant au jour des formations cristallines en proportion plus importante par rapport à des massifs plus récents qui présentent encore une proportion importante de formations de couverture).
- Une anomalie de la teneur moyenne en uranium dans les sédiments des cours d'eau est constatée pour les cours d'eau en contexte Hercynien. Ceci pourrait s'expliquer par un cycle géologique plus favorable à la concentration de l'uranium au sein des « massifs sources », expliquant potentiellement la plus forte densité de mines d'uranium pour les massifs appartenant à ce cycle.

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 22/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

4.1 Généralités

Le bruit de fond correspond à la concentration naturelle ambiante d'une substance dans un milieu donné. Dans sa stricte définition, le bruit de fond « **tient compte des concentrations naturelles (fond géochimique naturel), et de celles provenant éventuellement de sources d'origine anthropique autres que celles du site étudié** » (Eau France, Glossaire sur l'eau, d'après BRGM). La différenciation entre une concentration naturelle (ou fond géochimique naturel) d'une substance et le bruit de fond de cette même substance est primordiale pour éviter toutes ambiguïtés, puisque la prise en compte dans le bruit de fond d'éventuelles contributions de modifications anthropiques hors du contexte étudié peut modifier considérablement l'évaluation de l'impact d'un rejet sur le milieu récepteur.

Dans les cours d'eau, la concentration naturelle d'une substance chimique dépend de facteurs multiples comme la nature de la géologie, de la pédologie, du climat, de la dynamique hydraulique, constituant l'ensemble de son écosystème. Outre les paramètres naturels qui peuvent être appréhendés selon différentes classifications, les modifications anthropiques peuvent être plus difficiles à appréhender rendant l'exercice plus complexe et limité. En effet, la nature dichotomique des impacts anthropiques qui peuvent être de nature ponctuelle ou diffuse induit une difficulté supplémentaire dans la définition du bruit de fond à large échelle. Autant dire que cette notion d'échelle est donc primordiale dans la définition du bruit de fond, et rend donc compliqué sa définition sur de larges territoires.



Selon l'arrêté du 17 décembre 2008, « [le bruit de fond naturel correspond à une] concentration d'une substance ou [une] valeur d'un indicateur dans une masse d'eau souterraine correspondant à une absence de modifications anthropique, ou seulement à des modifications très mineures, par rapport à des conditions non perturbées ».

Les normes environnementales tendent à prendre en compte le bruit de fond géochimique dans la définition de l'impact des rejets sur le milieu récepteur. La définition de ce bruit de fond est donc très sensible dans l'approche d'évaluation de l'impact environnemental d'un rejet. La connaissance de la concentration naturelle d'une substance considérée est donc indispensable dans l'application d'une valeur seuil réglementaire sur un rejet donné..

De par ses spécificités, le bruit de fond peut présenter une forte variabilité spatiale et temporelle qu'il est nécessaire d'appréhender. **La définition d'un bruit de fond géochimique pour évaluer l'impact d'un rejet ne doit pas s'apparenter uniquement à la réalisation d'une campagne ponctuelle de prélèvements sur une zone hors influence. Il doit faire l'objet d'une étude plus approfondie représentative d'un contexte régional et temporel des paramètres observés prenant en compte les spécificités locales ainsi que la notion de cycles hydrologiques.** Par ailleurs, il existe une multitude de méthodes permettant la détermination du bruit de fond, mais pour lesquelles aucun consensus international n'a pas été défini.

Ajouté à cela, la relative rareté des mesures des concentrations en uranium dans les eaux de surface rendent encore plus difficile la démarche d'étude du bruit de fond de cette substance.

4.2 Bruit de fond géochimique dans le substrat

La compréhension du bruit de fond hydrogéochimique des eaux implique en premier lieu la compréhension géologique du fond géochimique de l'uranium. Celui-ci permet d'identifier les sources de l'uranium dans le substrat et sa répartition naturelle à l'échelle continentale avant de les comparer aux répartitions de l'uranium dans les eaux, les sédiments, et comprendre la distribution de l'uranium biodisponible à l'échelle d'un grand territoire.

4.2.1 Géologie générale du continent Européen

Le continent européen (ou continent eurasiatique) se caractérise par une grande diversité géologique (Cf. Annexe 8.3.1, p 74). La présence d'une multitude d'unités géologiques composées de chaînes montagneuses, de complexes volcaniques, de plateformes carbonatées et de bassins sédimentaires attestent d'une histoire géologique ancienne et complexe qu'il convient de mentionner succinctement pour comprendre leur héritage actuel.

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 23/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

Le continent Eurasiatique s'étend par définition des limites de l'océan Atlantique à l'ouest, jusqu'aux monts Oural en Russie à l'est ; de la mer Méditerranée et mer Noire au sud, jusqu'à la mer Arctique au nord. On retrouve des formations de tout âge, allant de l'Archéen (4 à 2.5 Ga.), remontant aux périodes les plus anciennes de l'histoire de la terre, jusqu'aux formations géologiques les plus récentes du Quaternaire (2.58 Ma. à nos jours). La composition géologique actuelle de l'Europe continentale (Cf. ANNEXE, p**Erreur ! Signet non défini.**) a été rythmée par la dynamique de la dérive des continents, qui a conduit à la création et la fermeture de nombreux océans, et à des collisions de plaques continentales ayant permis la formation des chaînes montagneuses (orogénèses).

Les différentes chaînes qui composent l'Europe occidentale actuelle résultent d'une succession de cycles orogéniques aux périodes différentes :

- **cycle calédonien** (542 à 416 Ma) : formation de chaînes au nord de l'Europe (chaîne des Calédonides en Scandinavie, en Écosse, et en Irlande du nord)
- **cycle hercynien**, ou Varisque (400 à 250 Ma) : formation de massifs depuis la bordure européenne occidentale jusqu'aux monts Oural et résultant de la collision de deux supercontinents, le Gondwana et la Laurussia (Massif Ibérique, Massif Central, Massif Armoricaire, Cornouailles, Vosges, Ardennes, Bohême, etc.)
- **cycle alpin** (252 à 1.5 Ma) : formation des massifs montagneux de l'arc méditerranéen, résultant d'une collision entre la plaque eurasiatique et la plaque africaine (Alpes, Pyrénées, chaîne Bétique, Balkans, Rhodope, etc.)

Il faut bien distinguer la notion « temporelle », de la notion des « mécanismes » ayant permis d'aboutir aux différentes unités géologiques en présence (un même type de roche provenant d'un même mécanisme de formation mais pas forcément d'une même période). De façon simplifiée, les formations géologiques peuvent se regrouper en 4 grands ensembles que sont les roches constitutives du socle cristallin, des complexes volcaniques, des plateformes carbonatées, et des bassins sédimentaires :

- un **socle cristallin** regroupe d'une part les roches métamorphiques issues de processus de transformation par compression et par augmentation de température (schistes, gneiss, etc.), et d'autre part les roches plutoniques issues de la lente migration et cristallisation de fluides silicatés vers la surface (granites, diorites etc.). En faisant le lien sur le comportement géochimique de l'uranium (Cf. paragraphe 3.1.3, p8), cette substance présente généralement une forte affinité avec ce type de roches, en constituant des « massifs sources »
- un **bassin sédimentaire** provient d'une accumulation sédimentaire des produits d'érosion des massifs orogéniques. Un bassin sédimentaire sera d'autant plus abondant en uranium que le massif dont proviennent les sédiments (ou les eaux) l'est également
- une **plateforme carbonatée** se forme en milieu marin et correspondent généralement à des mécanismes biogéniques aboutissant à la formation de calcaires (accumulation de coquilles calcaires, développements coralliens etc.). Elles sont par définition peu abondantes en uranium
- un **complexe volcanique**, se développe sur des territoires restreints (à l'échelle européenne) et se localisent généralement dans les bassins d'arrière arc (subduction), ou à l'aplomb de zones où l'activité magmatique est intense et proche de la lithosphère (point chaud). Leur abondance en uranium est variable et dépend essentiellement de la nature chimique de leurs magmas

La géologie actuelle du continent européen est l'héritage d'une succession de cycles géologiques expliquant la présence de l'uranium à l'état naturel, avec des teneurs variables, et selon une répartition géographique très hétérogène.



Cette répartition simplifiée, et assez triviale de l'uranium, cache en vérité une réalité plus complexe résultant de la conjonction de contextes géologiques et hydrogéologiques locaux. Un massif originellement peu abondant en uranium peut voir le développement de gisements par la circulation de fluides concentrés en uranium et provenant de formations plus profondes par l'intermédiaire d'accidents tectoniques. Il en est de même avec les modifications de dynamiques hydrogéologiques pouvant intervenir dans des aquifères au sein de formations réservoirs qui permettent la migration/lixiviation de l'uranium par des eaux oxydantes et leur précipitation en milieu réducteur (front d'oxydoréduction, matière organique, hydrocarbures, etc.).

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 24/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

4.2.2 Répartition de l'uranium en France

Le concept de distribution de l'uranium dans les différentes formations géologiques en présence est démontré par une étude réalisée sur le territoire français par un groupe d'experts en géologie (Ielsh et al, 2017, [21]). L'étude, qui s'est attachée à évaluer et cartographier le fond géochimique naturel de l'uranium dans les différentes formations géologiques de France en fonction du comportement géochimique de l'uranium, démontre bien de forts contrastes qui dépendent des grands ensembles géologiques en présence (Cf. Figure 7).

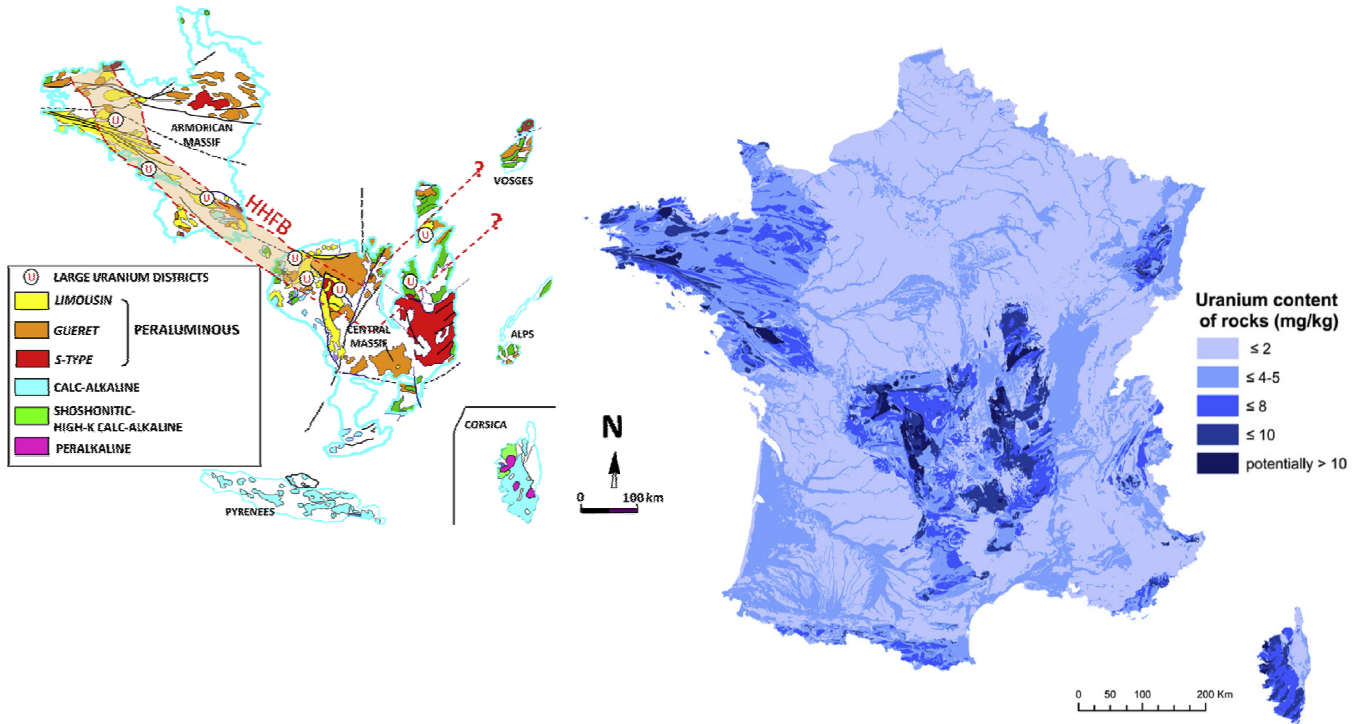


Figure 7 – Évaluation cartographique des teneurs naturelles en uranium dans les formations géologiques de France, à droite. Cartographie des grands districts uranifères, à gauche - Ielsh and al.

Cette étude repose essentiellement sur la compilation et la synthèse de données géologiques disponibles, sans étude complémentaire de terrain (données cartographiques, bases de données, travaux de recherche). La démarche vise à estimer la teneur en uranium du substrat, par classification des différentes formations géologiques cartographiées à l'échelle nationale en fonction de leur nature lithologique, leurs caractéristiques minéralogiques, leur origine pétrographique, et qui permettent d'établir un lien entre leurs caractéristiques et leur concentration en uranium. Les analyses géochimiques proviennent essentiellement de la base de données ARTEMISE (CRPG-CREGU), qui représentent 5092 points d'analyses géoréférencés, mais également d'une analyse spécifique des indices, gîtes, ou gisements, présentant des concentrations anormales, regroupées dans les bases de données MIMAUSA (IRSN, 2010, [24]), GEODERIS (BRGM & INERIS, 2010), et la carte des exploitations minières de France (BRGM, 1994). Cette étude a permis la réalisation d'une carte de France à l'échelle 1:1 000 000 représentant 5 catégories de formations géologiques dont la teneur en uranium estimée est très variable du fait de leurs disparités lithologiques (≤ 2 ppm, $\leq 4-5$ ppm, ≤ 8 ppm, ≤ 10 ppm, > 10 ppm).

La répartition des teneurs en uranium est très hétérogène sur le territoire national, mais observe certaines tendances générales :

- **les plus fortes teneurs en uranium (8 à >10 ppm) se localisent dans les massifs en contexte de socle cristallin** (Massif Armoricain, Massif Central, Morvan, Vosges, Pyrénées, Corse, Alpes, Montagne Noire, Cévennes), **ou en contexte volcanique** (Massif de l'Esterel)

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 25/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

- **les plus faibles teneurs en uranium (≤ 2 ppm) se localisent dans les bassins sédimentaires** (bassin parisien, Aquitain, fossé Bressan, fossé Rhéna), **ou dans les massifs calcaires** (Jura, causses de Provence, Champagne – bordures de bassin parisien, Lot)

Du fait du comportement géochimique décrit précédemment et de la répartition lithologique de l'uranium, il est donc cohérent de retrouver préférentiellement les gites et gisements uranifères français en contexte de socle cristallin. Leur prépondérance dans certaines régions permet de distinguer de véritables « districts uranifères » au sein du Massif Central et dans le Massif Armorica en Bretagne (Cf. Figure 7). On peut toutefois mentionner la localisation de gisements dans de grands bassins sédimentaires constituant des « réservoirs pièges » en bordures de massifs « sources » riches en uranium, comme c'est le cas dans le bassin Aquitain, ou encore dans le bassin de Lodève.

4.3 Bruit de fond dans les cours d'eau de surface

4.3.1 Atlas géochimique européen

Le projet d'atlas géochimique européen a émergé suite à l'accident nucléaire de Tchernobyl de 1986, et d'une forte volonté de définir un référentiel européen afin d'évaluer l'impact de tels accidents. Le projet nommé FOREGS (FORum of European Geological Surveys, [15]) s'est donc attaché à établir un programme d'échantillonnage de faible densité par une stratégie aléatoire (sélection de bassins versants au sein d'aires géographiques régionales tirées au hasard). L'ensemble de ces points de prélèvements ont été sélectionnés sur des cours d'eau de premier ordre avec un bassin versant inférieur à 100 km² (le premier ordre de Strahler correspondant à des cours d'eau sans affluent caractérisé). Les campagnes d'échantillonnages et d'analyses intégrés au projet se sont étendues sur près de 4 ans et ont permis la réalisation de prélèvements sur les eaux, les sédiments, les sols, et les humus organiques. Au total, 808 points ont été ainsi prélevés sur pas moins de 26 pays en couvrant l'ensemble de l'Europe. Les analyses sur les eaux ont été réalisées sur les éléments majeurs et une grande partie des métaux en traces. Dans le cadre de ce programme, la mesure de l'uranium total à l'ICP-MS (Inductively Couple Plasma Mass Spectrometry) sur l'ensemble des sites prélevés a permis de constituer une photographie de la concentration en uranium dans ces eaux et dans les sédiments à l'échelle européenne.

L'homogénéité expérimentale des méthodes d'échantillonnage et d'analyse sur chacun des sites prélevés ainsi que la large répartition des points permet d'établir des tendances géochimiques régionales en faisant l'hypothèse que les points de prélèvements sélectionnés sont représentatifs du contexte dans lequel ils s'inscrivent (contexte géographique, hydrologique, géologique et climatique). Ces données font d'ailleurs l'objet de nombreuses publications décrivant ces hétérogénéités et les raisons qui pourraient les expliquer. L'évaluation de la biodisponibilité de l'uranium et l'analyse de sa répartition géographique à l'échelle européenne s'inscrit dans cette démarche et va faire l'objet d'une publication conjointe CEA/AREVA (Lartigue J.E., Charrasse B., Reilé B., Descostes M.).



L'échelle des données de l'atlas géochimique permet de donner uniquement des tendances dans la répartition hydrogéochimique des eaux et de leur hétérogénéité à petite échelle (échelle régionale), mais ne permet en aucun cas de donner une vision précise extrapolable à grande échelle (échelle locale). La méthode de sélection des points de prélèvement impliquent des risques de distorsions liées à d'éventuelles particularités pour un bassin versant sélectionné. Par ailleurs, ces données ponctuelles ne permettent pas de connaître l'évolution temporelle de ces hétérogénéités.

4.3.2 Comparaison des fonds géochimiques et hydrogéochimiques en France

Sur le territoire français, pas moins de 119 cours d'eau ont été échantillonnés sur l'ensemble du territoire dans le cadre de la réalisation de l'atlas géochimique européen. Avec des concentrations en uranium total dissout comprises entre 0.006 µg/L et 10.5 µg/L, la concentration moyenne des cours d'eau échantillonnés est de l'ordre de 0.60 µg/L, pour une valeur médiane à 0.33 µg/L (limite de détection à 0.002 µg/L). Compte tenu de la quantité de points à l'échelle nationale et de la difficulté à identifier clairement le cours d'eau échantillonné du fait des approximations de localisation selon les coordonnées mentionnées, il est impossible de définir si certains de ces points présentent une quelconque influence

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 26/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

minière. Cependant, il est possible d'affirmer que les concentrations les plus élevées se localisent dans des bassins sédimentaires relativement éloignés des régions ayant fait l'objet d'exploitations minières (Cf. Annexe 8.3.3, p 76).

De façon contre intuitive, l'analyse cartographique des résultats indique que les eaux avec les concentrations les plus importantes en uranium ne sont pas localisées dans les régions dont les formations géologiques présentent les plus fortes teneurs en uranium. À l'inverse, la répartition des teneurs en uranium dans les sédiments est assez bien corrélée avec la présence des massifs aux plus fortes teneurs en uranium, et constituent ainsi un marqueur pertinent dans l'identification de massifs relativement abondant en uranium.

La cartographie du fond géochimique de l'uranium dans les cours d'eau de surface montre ainsi :

- **une FAIBLE propension des eaux à se charger en uranium dans les cours d'eau des massifs en contexte cristallin** pour lesquels l'uranium se retrouve plus largement sous forme sédimentaire que sous forme dissoute (Massif Central, Massif Armoricain, Vosges, etc.)
- **une FORTE propension des eaux à se charger en uranium dans les cours d'eau des bassins sédimentaires** (bassin parisien, bassin aquitain, etc.)

D'après le modèle de distribution de l'uranium dans le substrat, ce comportement peu intuitif s'explique par le comportement hydrogéochimique de la substance. L'uranium étant très mobile dans des solutions alcalines contenant des ions Ca, Mg, HCO_3^- , les eaux au contact de formations carbonatées à faibles teneurs en uranium (calcaires, dolomites, et marnes) présentent donc les concentrations en uranium les plus importantes. À l'inverse, les massifs en contexte cristallin ou volcanique sont à tendance acide et présentent une faible minéralisation, expliquant la faible mise en solution de l'uranium et son accumulation dans la fraction sédimentaire.

Ainsi, la concentration en uranium dissoute la plus importante relevée en France dans le cadre de ce programme d'échantillonnage se retrouve dans l'Essonne, rivière localisée dans le département éponyme et se développant à travers des sédiments datés de l'Éocène, connus pour contenir de faibles minéralisations d'uranium.

4.3.3 Fond hydrogéochimique des cours d'eau européens

4.3.3.1 Simplification géologique

L'analyse cartographique de la répartition des concentrations en uranium dissout dans les eaux de surface en France a permis de mettre en évidence une corrélation entre les concentrations de cette substance et le contexte géologique dans lequel s'inscrit le cours d'eau (contexte cristallin ou sédimentaire). Afin d'étendre par analogie cette analyse à l'échelle européenne, une classification géologique simplifiée a été réalisée sur la base des points de l'atlas géochimique européen avec le renseignement de la lithologie simplifiée au droit du point (« socle cristallin », « bassin sédimentaire », ou « autre »), et du cycle orogénique auquel appartient la formation géologique (« précambrien », « calédonien », « hercynien », « alpin », ou « non défini »).

La sélection de ces différentes classes pour un point résulte d'un arbitrage par analyse visuelle de la cartographie géologique à l'échelle du 1/1 000 000. De nombreux points présentent une lithologie non renseignés, puisqu'il s'agit des formations de type sédimentaires ou de plateformes carbonatées reprises par un cycle orogénique, et dont la signature hydrogéochimique de leurs eaux peut être influencée par des eaux circulant à travers des formations cristallines. Dans ce cas, le cycle orogénique est uniquement renseigné. Seules les formations sédimentaires des grands bassins européens sont donc classées selon une lithologie « sédimentaire ».

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 27/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines



La méthode de classification des points est délicate et présente de nombreuses limites qu'il est important de mentionner :

- la précision de localisation des points fournis dans l'atlas géochimique européen n'est pas assez suffisante pour être certain de leur localisation précise
- la classification géologique simplifiée se base sur des cartes à très petite échelle, et ne caractérise pas avec précision des particularités géologiques locales (l'échelle de représentativité des points du FOREGS est assez voisine de l'échelle de cartographie géologique)
- la classification est réalisée de façon manuelle du fait de l'absence de couche vectorielle disponible permettant de faire une extraction automatique de la géologie au droit des points de prélèvement et ne permet pas d'erreurs d'attributions (la méthode est, de par se fait, non reproductible à l'identique et dépend de l'appréciation de chacun)
- l'analyse ne prend pas en compte l'ensemble du bassin versant correspondant au point de prélèvement, et de la diversité géologique qu'il peut présenter

4.3.3.2 Faciès hydrogéochimique

La classification des eaux selon le diagramme de Piper est couramment utilisée dans le domaine de l'hydrogéologie pour caractériser les espèces ioniques dominantes dans une eau et les classer selon différents faciès. Traditionnellement représenté sous forme d'un diagramme (exemple en p 56), la représentation de l'ensemble des points de l'atlas géochimique européen n'est pas pertinente sous cette forme compte tenu de la nécessité de donner une dimension spatiale à la répartition de ces faciès.

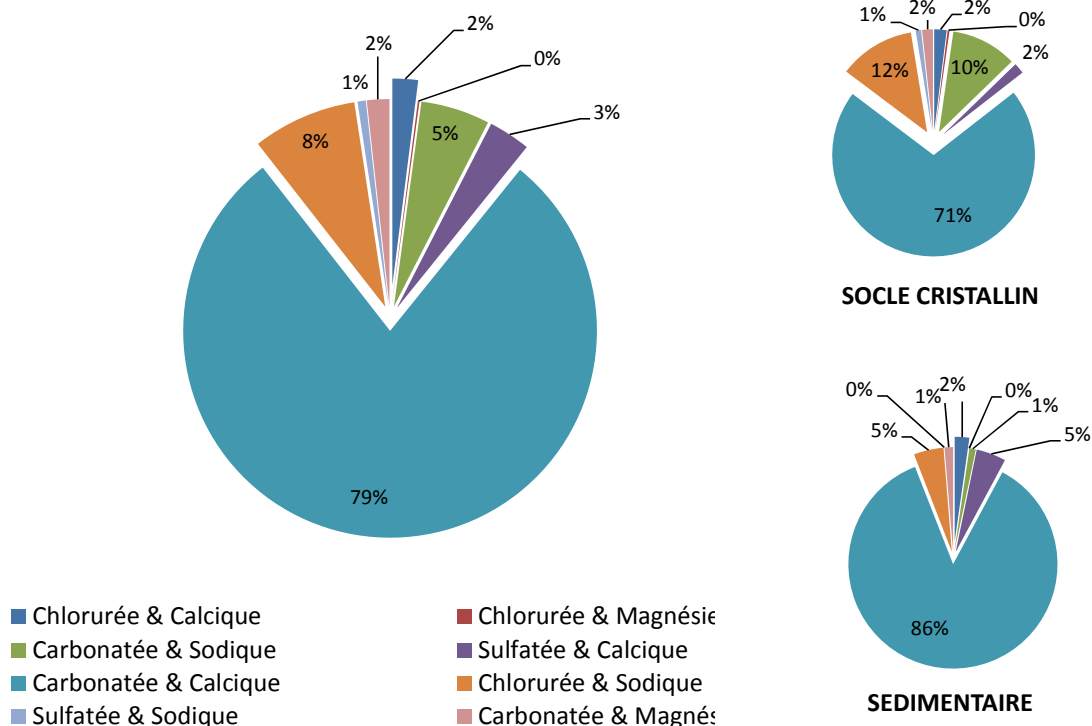


Figure 8 - Répartition des faciès hydrogéochimique des eaux du FOREGS selon la classification de piper. À gauche, répartition de l'ensemble des points du FOREGS; à droite, répartition en fonction du contexte géologique.

D'après cette classification, les eaux analysées sont dominées à près de 80 % par le faciès carbonaté-calcique (Cf. Figure 8). Les 20 % restants sont dominés pour moitié par des eaux chlorurées-sodique (8 %), tandis que les eaux carbonatées-sodiques et sulfatées-sodiques ne représentent respectivement que 5 % et 3 % des eaux analysées.

Même si la répartition cartographique des faciès hydrogéochimiques ne permet pas d'observer des contrastes importants de répartition du fait d'une forte prépondérance du faciès carbonaté-calcique, on observe cependant certaines tendances à l'échelle européenne (Cf. Annexe 8.3.2, p 75). Les eaux en contexte sédimentaire présentent une plus grande prépondérance du faciès carbonaté-calcique (86 %) que les eaux en contexte cristallin (71 %). Cette différence tient dans une plus grande prépondérance d'eaux au faciès chloruré-sodique (12 %) et carbonaté sodique (10 %) en contexte cristallin.

4.3.3.1 pH

Le pH moyen des eaux analysées avoisine 7.5, avec une valeur médiane à 7.7. Les valeurs de pH sont comprises entre un pH de 4.5 mesuré en Irlande, et un pH de 8.1 mesuré en Espagne (Cf. Annexe 8.3.2, p 75). La répartition statistique du pH montre que les eaux à pH basique représentent 75 % de l'ensemble des eaux analysées.

La répartition cartographique du pH dans les eaux montre que les eaux acides, représentant seulement 25 % de l'ensemble des eaux analysées, se localisent principalement dans les massifs cristallins, et notamment dans le bouclier scandinave (pays nordiques), à l'ouest de la péninsule ibérique (Portugal, Espagne), dans le Massif Central (France), dans les Calédonides d'Irlande du Nord, et plus localement dans les Alpes italiennes et en Bohême.

Le calcul du pH moyen selon la classification géologique simplifiée (Cf. Figure 9) montre des eaux plus acides en milieu cristallin (7.10) qu'en milieu sédimentaire (7.76). Il est par ailleurs très variable en contexte cristallin, en fonction de l'âge des socles concernés. Avec un pH moyen de 8.05 pour les eaux situées en contexte Alpin et un pH moyen de 6.64 pour les eaux en contexte Précambrien, on observe clairement une diminution progressive du pH moyen avec l'augmentation de l'âge des différents cycles orogéniques. Ceci pourrait s'expliquer en partie par une plus grande prépondérance de formations endogènes (granitoïdes) du fait d'un démantèlement progressif de ces massifs (érosion), à l'origine d'une proportion plus importante d'eaux peu minéralisées et acides (ex : Massif Central). À l'inverse, les massifs plus récents sont encore composés de formations exogènes (formations sédimentaires, plateformes carbonatées) impliquant la présence d'une plus grande proportion d'eaux minéralisées à pH plus basique (ex : massif des Alpes).

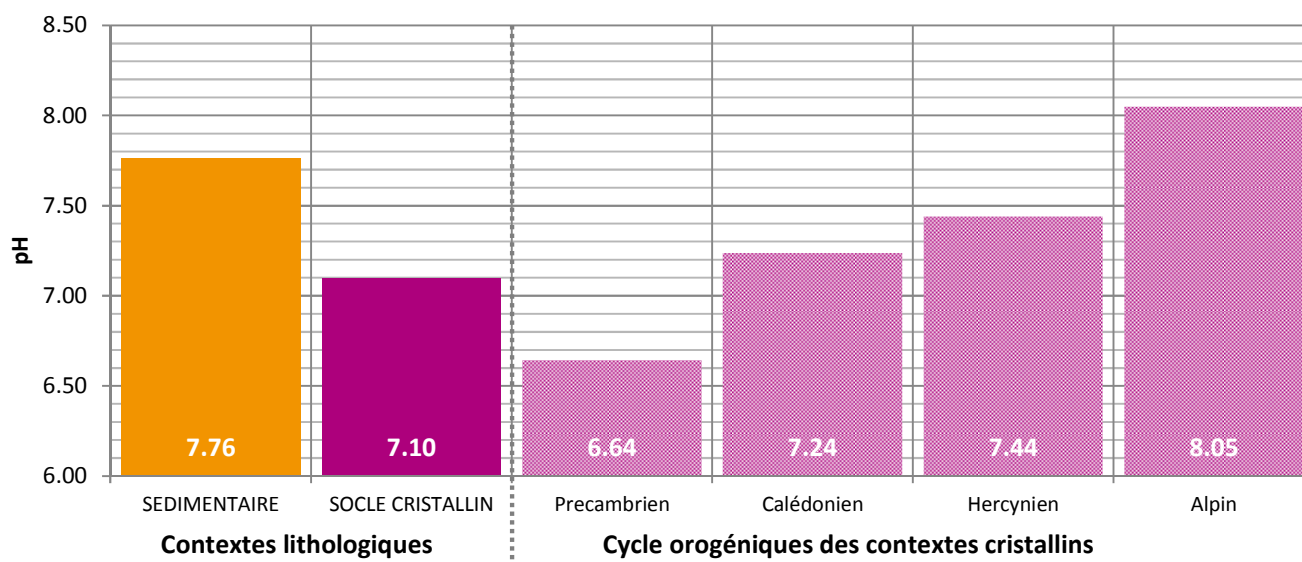


Figure 9 – Répartition du pH moyen en fonction du contexte géologique des points de prélèvements du FOREGS

4.3.3.2 Répartition de l'uranium total dissout

4.3.3.2.1 Concentrations en uranium dans les eaux de surface

La concentration moyenne en uranium dans les eaux est d'environ 0.9 µg/L, avec une valeur médiane à 0.32 µg/L. Les valeurs sont comprises entre des valeurs minimales inférieures à 0.002 µg/L (limite de détection), jusqu'à une concentration maximale de 21.4 µg/L mesurée en Espagne.

Les plus fortes concentrations en uranium dans les eaux de surface s'observent ainsi dans les grands ensembles sédimentaires (Cf. Annexe 8.3.3, p 76), notamment à l'ouest du bassin germano-polonais (Pologne), dans les pays baltes, dans le bassin pannonien (Hongrie), le bassin de l'Èbre et la cordillère Bétique (Espagne), dans le bassin parisien (France), dans la région des Pouilles et en Sicile (Italie), ou encore dans le Rhodope (Grèce). Les plus faibles concentrations s'observent quant à elle préférentiellement dans les massifs cristallins, notamment dans le nord du bouclier scandinave (Norvège, Suède, Finlande), la chaîne ibérique (Espagne), le Massif Central et armoricain (France), les Calédonides d'Irlande, ou encore en Bohême occidentale (Allemagne).

La répartition de la concentration moyenne en uranium en fonction de la lithologie confirme la distribution observée à l'échelle française, avec une concentration moyenne d'environ 1.29 µg/L en contexte sédimentaire, et de 0.40 µg/L en contexte cristallin (Cf. Figure 10). Cette répartition est notamment expliquée par la distribution des pH au sein de ces formations, et la plus grande propension à l'uranium à se complexer en solutions alcalines.

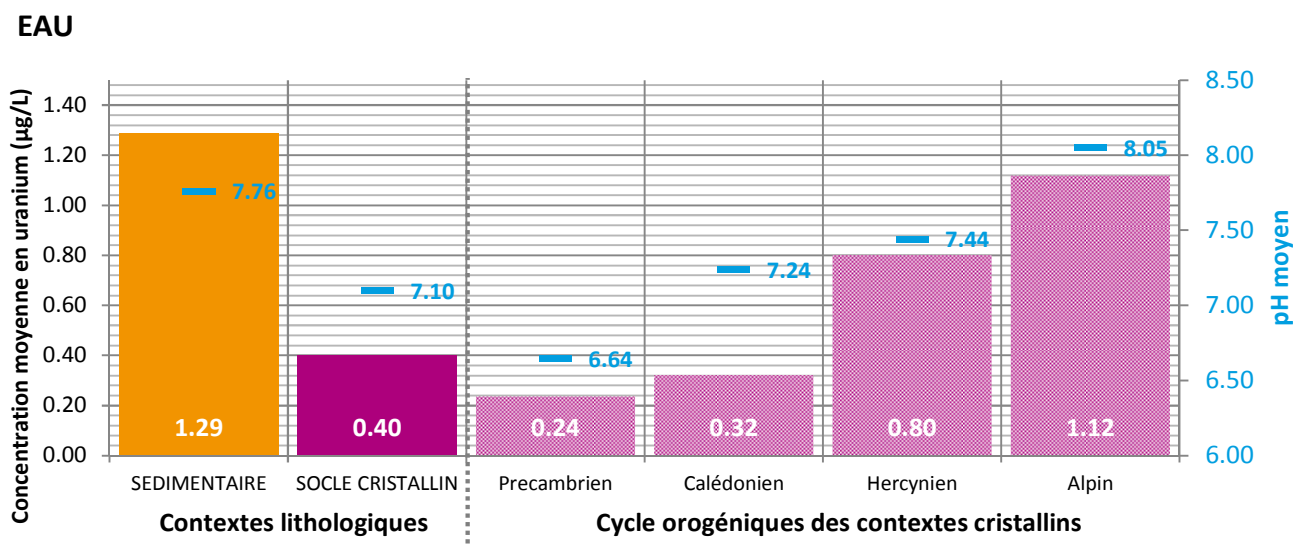


Figure 10 - Répartition de la concentration moyenne en uranium dissout en fonction du contexte géologique des points de prélèvement du FOREGS

La distribution des concentrations moyenne en uranium dans les eaux de surface semble également corrélée avec l'âge du cycle orogénique dans lequel s'inscrit les différents massifs cristallins. On observe ainsi une décroissance de la concentration moyenne en uranium dans les eaux de surface plus le cycle orogénique est ancien, passant d'une concentration moyenne de l'ordre de 1.12 µg/L pour les formations alpines, à une concentration moyenne de 0.24 µg/L pour les formations précambriennes.

Cette répartition doit être comparée aux valeurs moyennes de pH dans les eaux des formations de cycle orogénique distinct. La présence d'eaux acides peu minéralisées dans les orogénèses les plus anciennes n'est pas propice à la mise en solution de l'uranium par complexation.

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 30/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines



La répartition de l'uranium en solution n'est pas nécessairement liée à une origine naturelle, et peut provenir d'activités de natures anthropiques. Il peut s'agir de pollutions diffuses de nature agricole par l'ajout d'intrants phosphatés marqués radiologiquement, ou par la lixiviation de matériaux marqués radiologiquement et générés par l'activité anthropique (mines d'uranium, sous-produits d'extraction, scories d'incinération etc.).

4.3.3.2 Répartition de l'uranium en fonction du faciès hydrogéochimique

La distribution des concentrations en uranium en fonction des faciès hydrogéochimiques des eaux montre une plus forte concentration en uranium pour les pôles magnésiens et sulfatés avec une valeur moyenne de 1.20 µg/L d'uranium, tandis que la concentration moyenne la plus faible est observée pour le pôle carbonaté avec une valeur moyenne de 0.60 µg/L.

Les plus fortes concentrations en uranium s'observent pour les eaux au faciès carbonaté-magnésien et sulfaté-calcique, avec une valeur de l'ordre de 1.25 µg/L, tandis que les eaux au faciès chloruré-calcique et chloruré-magnésien présentent les plus faibles concentrations moyennes avec des valeurs inférieures à 0.10 µg/L (Cf. Figure 11). La facilité à se complexer en présence de carbonates implique de fait des concentrations moyennes plus élevées pour les eaux présentant ce pôle.

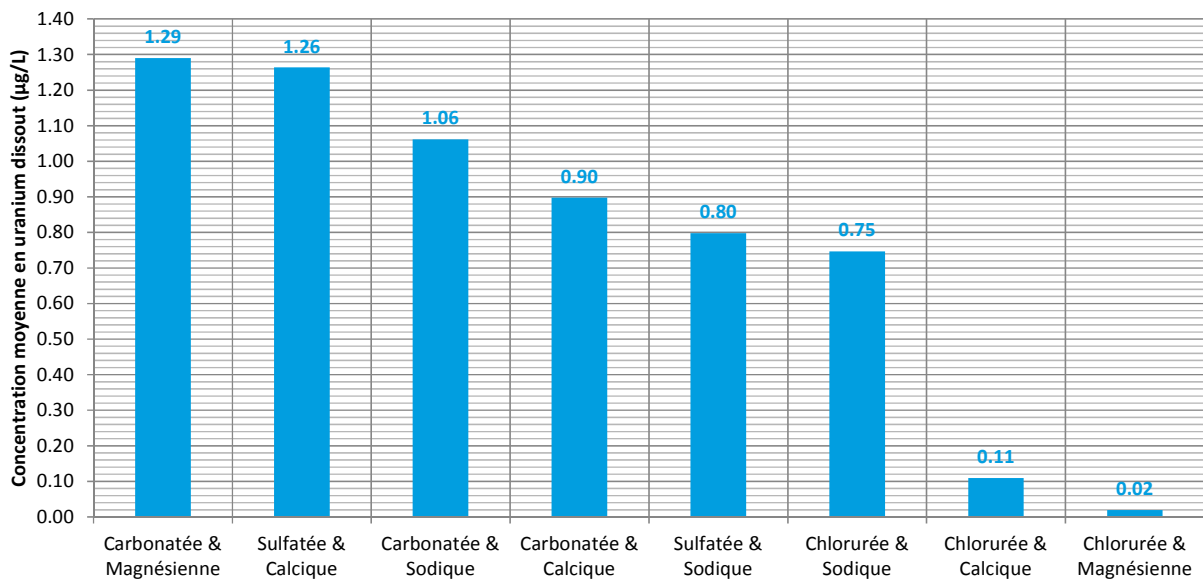


Figure 11 – Classement des concentrations moyennes en uranium dissout des différents faciès hydrogéochimiques des points de prélèvement du FOREGS

4.3.3.3 Teneurs en uranium dans les sédiments

La teneur moyenne en uranium dans les sédiments est d'environ 3.4 ppm, avec une valeur médiane à 2.0 ppm. Les valeurs sont comprises entre des valeurs minimales inférieures à 1 µg/L (limite de détection) représentant 35 % du jeu de données analysé et une valeur maximale de 98 mg/kg observée en Suède (Cf. Annexe 8.3.3, p 76).

La répartition des teneurs moyennes en uranium dans les sédiments en fonction de la lithologie (Cf. Figure 12) confirment également les observations réalisées à l'échelle française, avec une teneur moyenne plus importante en contexte cristallin (4.91) qu'en contexte sédimentaire (1.76). Cette répartition est notamment expliquée par la distribution des pH au sein de ces formations, et la plus faible propension à l'uranium à se complexer au sein de solutions alcalines, et donc de sa plus grande abondance dans la fraction sédimentaire.

La distribution des teneurs moyennes en uranium dans les sédiments en fonction du cycle orogénique montre une forte anomalie pour les sédiments en contexte hercynien. Alors que les teneurs moyennes

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 31/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

dans les sédiments sont comprises entre 2.6 ppm et 3.39 ppm pour le contexte alpin, calédonien et précambrien, la teneur moyenne en contexte atteint une valeur moyenne deux fois supérieure à près de 7.6 ppm. L'analyse de la distribution des teneurs en uranium dans les sédiments et dans le substrat à l'échelle française, a démontré la pertinence de l'utilisation des sédiments comme marqueur pour l'identification de massifs abondants en uranium. Le caractère anomal de la teneur moyenne en uranium dans les sédiments en contexte hercynien pourrait donc indiquer une plus grande abondance en uranium dans les formations appartenant à ce cycle orogénique. Cette constatation se vérifie à l'échelle française puisque l'ensemble des grands districts uranifères identifiés et exploités se localisent en contexte hercynien (Massif Central, Massif Armoricain, Vosges).

SÉDIMENTS

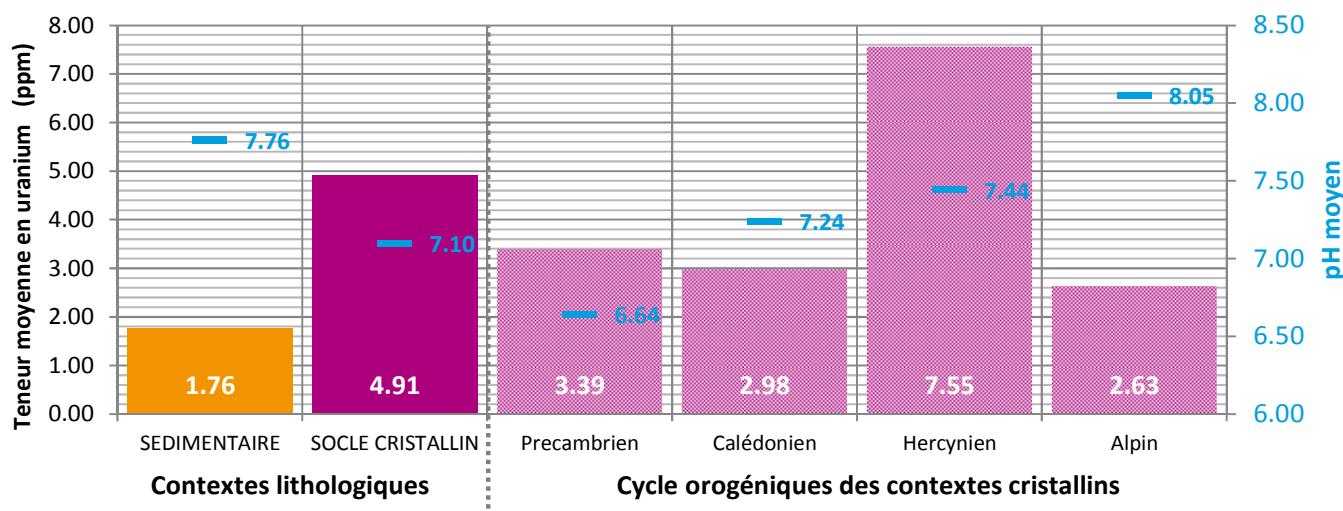


Figure 12 - Répartition de la teneur moyenne en uranium biodisponible dissout en fonction du contexte géologique des points de prélèvement du FOREGS

4.3.3.1 Concentrations en uranium biodisponible

4.3.3.1.1 Méthodologie

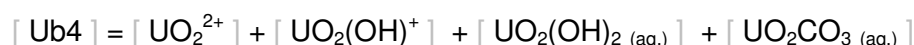
La cartographie des concentrations en uranium biodisponible se base sur les résultats de modélisations réalisées dans le cadre de l'étude conjointe CEA/AREVA. Les calculs de spéciation ont été réalisés à l'aide du code PHREEQC, et selon 4 différentes bases de données thermodynamiques (ANDRA, CHESS, PRODATA, MINTEQ).

Même si l'utilisation de différentes bases thermodynamiques peut donner lieu à des modifications de concentration en uranium biodisponible assez minimes si l'ensemble des espèces nécessaires au calcul sont renseignées, la comparaison des différentes bases et leur sensibilité sur les résultats des modélisations de spéciation ne fait pas l'objet de la présente étude.

Les résultats de modélisation de spéciation présentés sont issus de l'utilisation de la base de données PRODATA (CEA/AREVA) qui présente une plus grande exhaustivité dans la définition des constantes thermodynamiques des différentes espèces de l'uranium.

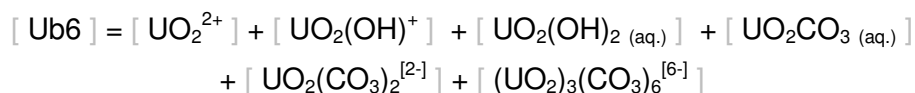
Concernant la sélection des espèces de l'uranium considérées comme biodisponibles, deux configurations ont été modélisées:

- **Uranium biodisponible (4)** : liste des 4 espèces d'uranium considérées comme biodisponibles par l'IRSN.



Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 32/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

- **Uranium biodisponible (6)** : liste des 4 espèces d'uranium considérées comme biodisponibles par l'IRSN, ajoutées de 2 espèces anionique de l'uranium considérées comme biodisponibles selon une récente étude (Croteau et al, 2016, [10]).



4.3.3.1.2 Uranium biodisponible

Valeurs statistiques

Les résultats des calculs de spéciations donnent une concentration moyenne en uranium biodisponible (Ub4) de 0.032 µg/L, avec 58 % des valeurs calculées inférieures à une concentration de 0.001 µg/L. La concentration maximale en uranium biodisponible (Ub4) est de 1.46 µg/L, calculée sur une eau localisée dans les Alpes suisses (Cf. Annexe 8.3.5, p 78).

L'ajout d'espèces anioniques biodisponibles impliquent mécaniquement une augmentation de la fraction biodisponible avec une concentration moyenne calculée en uranium biodisponible (Ub6) s'élevant à 0.047 µg/L (+0.015 µg/L vs [Ub4]), avec une valeur médiane comprise entre 0.004 et 0.005 µg/L. La concentration maximale en uranium biodisponible (Ub6) est de 1.59 µg/L (+0.13 µg/L vs [Ub4]), calculée sur la même eau mentionnée précédemment et localisée en Suisse (Cf. Annexe 8.3.6, p 79).

Proportion de la fraction biodisponible

Les répartitions des concentrations en uranium biodisponible calculées selon 4 espèces ou selon 6 espèces, sont assez similaires. La proportion moyenne en uranium biodisponible (Ub4) est de l'ordre de 22 % et d'environ 30 % pour la concentration en uranium biodisponible (Ub6). On observe un très fort contraste entre des eaux quasiment exemptes d'uranium biodisponible (Ub4 et Ub6) répartie sur l'ensemble de l'Europe, à une valeur maximale de l'ordre de 98-99 % (Ub4 et Ub6) observée pour un nombre important d'eaux localisées sur le bouclier scandinave et dans les Calédonides d'Irlande du Nord.

Les plus fortes concentrations, et de surcroit les plus fortes proportions en uranium biodisponible, se localisent principalement en contexte cristallin, notamment dans le bouclier scandinave, les Alpes (Italie), le Massif Central, le Morvan, le Massif Armoricaïn, en Corse, dans l'ouest de la péninsule ibérique, au Danemark, et dans les Calédonides d'Écosse et d'Irlande.

Influence géologique

La répartition des concentrations moyennes en uranium biodisponible (Ub4 et Ub6) en fonction du contexte géologique (Cf. Figure 13 et Figure 14) montrent de très faibles concentrations (≤ 0.01 µg/L) et de très faibles proportions en uranium biodisponible (4-6 %) pour les eaux en contexte sédimentaire, alors que les eaux en contexte cristallin présentent une concentration moyenne en uranium biodisponible (Ub4 et Ub6) comprise respectivement entre 0.07 et 0.10 µg/L, pour une proportion moyenne de la fraction biodisponible comprise respectivement entre 44 % et 60 % de la concentration en uranium total.

On observe, à l'instar de la répartition de l'uranium total, de forts contrastes de concentrations et de proportions en uranium biodisponible en fonction du cycle orogénique auquel appartiennent les formations en présence. Les concentrations les plus importantes en uranium biodisponible s'observent pour les eaux en contexte précambrien, pour lesquels les valeurs moyennes en uranium biodisponible (Ub4 et Ub6) atteignent respectivement 0.11 µg/L et 0.14 µg/L, avec des proportions respectives de 66 % et de 83 %. Les autres contextes orogéniques (Calédonien, Hercynien, Alpin) présentent quant à eux des concentrations globalement similaires et comprises entre 0.02 µg/L et 0.06 µg/L pour les deux types de fraction biodisponibles calculées. Une tendance à l'augmentation de la proportion en uranium biodisponible avec l'âge du cycle orogénique s'observe assez nettement, avec des valeurs qui passent progressivement de 4-7 % pour le cycle alpin, vers une proportion de 66-83 % en contexte précambrien.

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 33/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

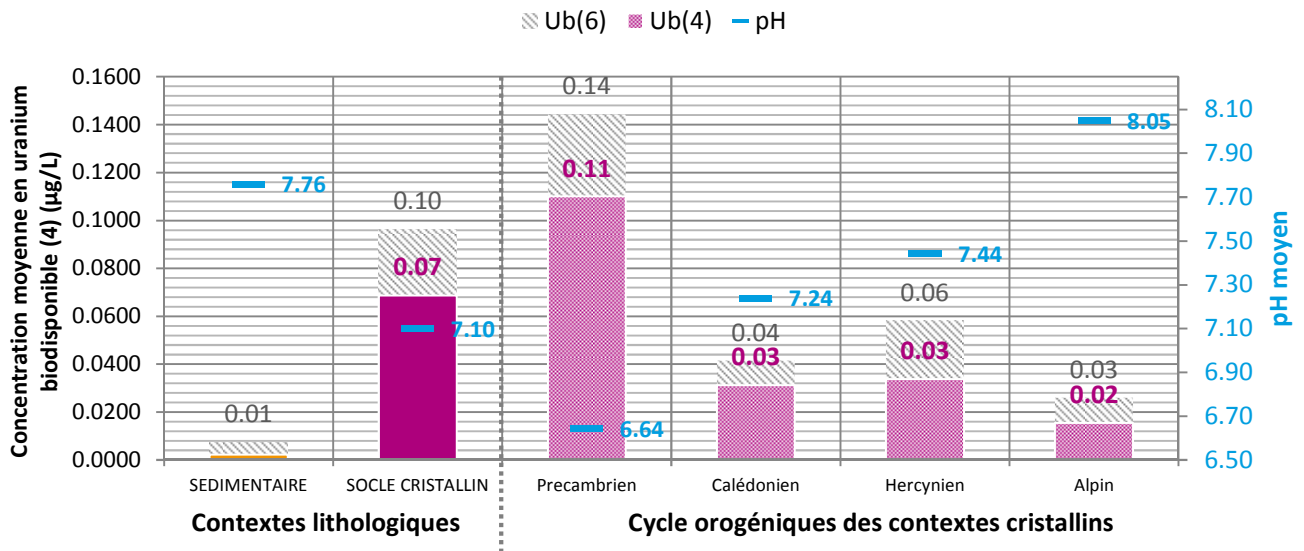


Figure 13 - Répartition de la concentration moyenne en uranium biodisponible (Ub4 et Ub6) en fonction du contexte géologique des points de prélèvement du FOREGS

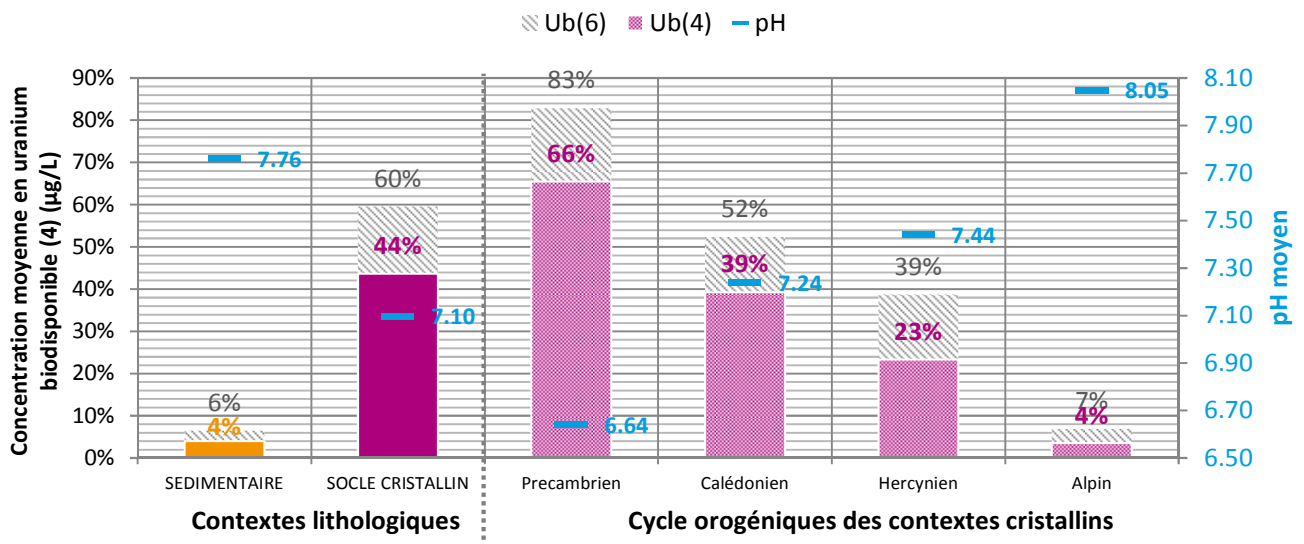


Figure 14 – Répartition de la proportion moyenne en uranium biodisponible (Ub4 et Ub6) en fonction du contexte géologique des points de prélèvement du FOREGS

Influence faciès hydrogéochimique

Selon la classification de Piper, les eaux sulfatées-sodiques, sulfatées-calciques, et carbonatées-sodiques présentent les concentrations moyennes en uranium biodisponible les plus importantes (Cf. Figure 15), avec des concentrations moyennes comprises entre 0.095 µg/L à 0.052 µg/L en considérant 4 espèces biodisponibles, et entre 0.084 µg/L et 0.109 µg/L en y ajoutant les espèces anioniques biodisponibles. Le faciès carbonaté-sodique est celui qui est le plus impacté par la prise en considération des espèces anioniques avec une concentration moyenne qui passe de 0.052 µg/L à 0.084 µg/L.

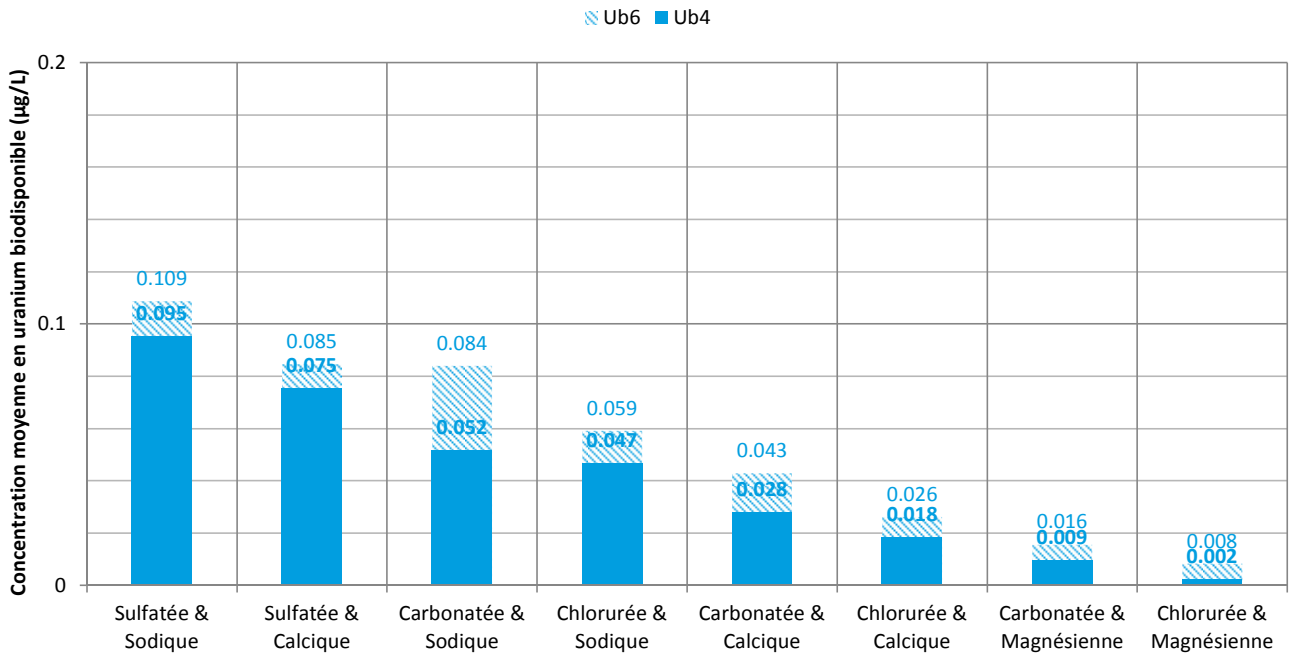


Figure 15 – Classement des concentrations moyennes en uranium biodisponible (Ub4 et Ub6) des différents faciès hydrogéochimiques des eaux du FOREGS

4.3.3.2 Synthèse du comportement général de l'uranium dans les cours d'eaux européens

L'analyse statistique et cartographique des eaux de l'atlas géochimique européen permet de mettre en évidence un fractionnement dans les compartiments « substrat », « sédiment », et « eau », en fonction du contexte dans lesquels s'inscrivent les cours d'eau échantillonnés (Cf. Tableau 2).

Tableau 2 – Synthèse des différents paramètres caractéristiques du comportement de l'uranium dans chacun des compartiments étudiés (substrat, eau, sédiment)

SUBSTRAT			SÉDIMENT	EAU					
Lithologie	Période géologique	Teneurs en U	[U]moyen	pH moyen	[Utot.]moyen	Concentration Ubiod. moyen µg/L		Proportion molaire Ubiod %	
						Ub4	Ub6	Ub4	Ub6
Sédimentaire	Néogène	Plus faibles	1.8	7.8	1.3	<0.01	0.01	4 %	6 %
Socle cristallin	Toutes	Plus fortes	4.9	7.1	0.4	0.07	0.1	44 %	60 %
Socle cristallin	Précambrien	Plus fortes	3.4	6.6	0.2	0.1	0.1	66 %	83 %
	Calédonien		3.0	7.2	0.3	0.03	0.04	39 %	52 %
	Hercynien		7.6	7.4	0.8	0.03	0.06	23 %	39 %
	Alpin		2.6	8.1	1.1	0.02	0.03	4 %	7 %

Le comportement dichotomique des concentrations en uranium biodisponible par rapport aux concentrations en uranium total s'explique ainsi par des contextes géologiques et physico-chimiques distincts observable sur le graphique suivant (Cf. Figure 16) :

- les **eaux en milieu cristallin**, moins minéralisées et de pH plus acide, présentent des teneurs en uranium plus importantes dans leurs sédiments, une concentration moyenne en uranium dissout dans les eaux plus faibles, et **une concentration moyenne en uranium biodisponible plus importante**.
- les **eaux en milieu sédimentaire**, plus minéralisées et de pH plus basique, présentent des teneurs en uranium moins importantes dans leurs sédiments, une concentration moyenne en uranium dissout dans les eaux plus fortes, et **une concentration moyenne en uranium biodisponible moins importante**.

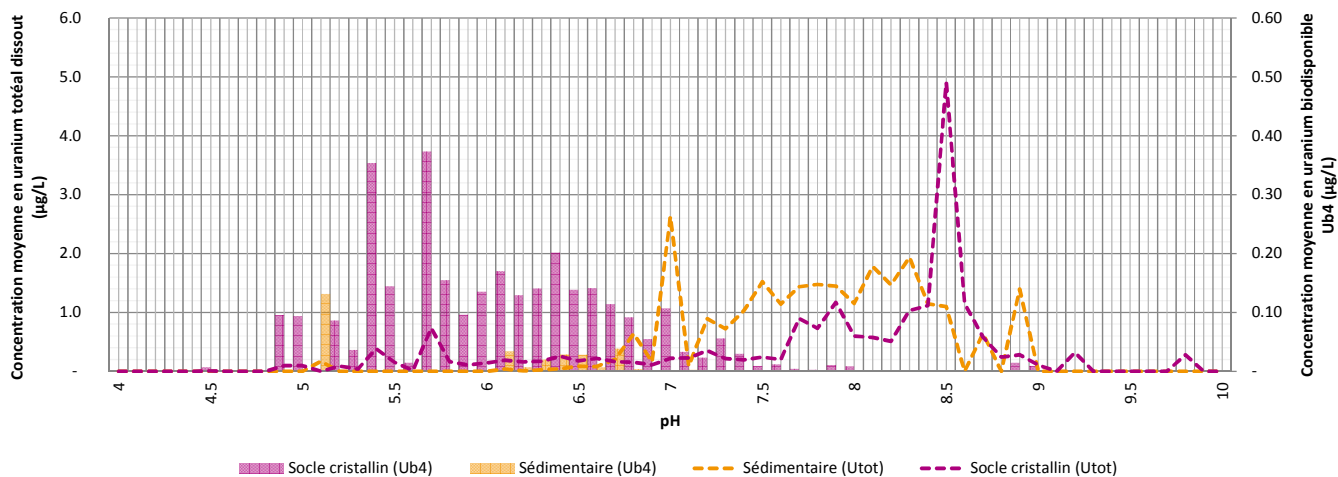


Figure 16 – Répartition des concentrations moyennes en uranium total et biodisponible en fonction du pH, et selon le contexte géologique

4.4 Bruit de fond géochimique & échelle d'analyse

Malgré l'identification de certaines tendances de fond dans la répartition de l'uranium dans les eaux et les sédiments des cours d'eau de surface européens, celles-ci ne peuvent être utilisées à elles seules pour identifier le bruit de fond géochimique de l'uranium et ses espèces biodisponibles à une échelle locale. L'analyse nécessiterait une quantité d'analyses plus importante, et l'analyse plus fine des différents paramètres contextuels expliquant les différentes concentrations en uranium.

Pour descendre à cette échelle, l'IRSN a engagé récemment un travail d'analyse à partir d'un jeu de données plus large (lui appartenant), afin de quantifier le bruit de fond de l'uranium dans les eaux françaises. Ce travail permettra à terme de quantifier le bruit de fond de l'uranium à l'échelle locale, et de constituer ainsi une base dans l'application des futures valeurs guides ou réglementaires.



Les analyses de l'atlas géochimique européen ne sont pas suffisantes à elles seules pour déterminer le bruit de fond de l'uranium à l'échelle de petits territoires, et l'utiliser par exemple dans l'évaluation de l'impact de rejets miniers. Cependant, en procédant par analogie et concédant certaines hypothèses, il est possible d'utiliser ce jeu de données pour établir des **valeurs guides potentielles**, établissant ainsi **une évaluation du risque réglementaire pour l'ensemble du passif minier uranifère français**.

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 36/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

5 Le passif minier uranifère français : état des lieux et évaluation du risque réglementaire



POINTS CLÉS

- L'exploitation de l'uranium en France remonte aux années 1940 pour se terminer dans les années 2000 avec une production totale d'environ 76 000 tonnes sur la période. L'établissement d'un inventaire national (MIMAUSA) en 2007 a permis d'identifier près de 250 sites liés à l'exploitation, à l'extraction et au traitement de l'uranium, répartis dans 26 départements. L'ensemble de ces sites, - *qu'ils aient été exploités par un opérateur étatique ou privé* - sont dorénavant sous la responsabilité d'AREVA.
- Le PNGMDR est un plan national qui permet d'inciter, de recenser, et de suivre l'ensemble des actions réalisées au titre de la gestion des matières et des déchets radioactifs par les différents acteurs de la filière électronucléaire français. À ce titre, AREVA déclare et s'engage ainsi à réaliser des actions pluriannuelles pour la gestion du passif minier uranifère français.
- Les différents rejets identifiés sur les sites sont principalement liés à un noyage des anciens travaux miniers provoquant à leur contact une modification de la composition chimique et radiologique des eaux. Ces rejets sont encadrés réglementairement par le RGIE ou des arrêtés préfectoraux plus stricts, et nécessitent un recours à des procédés de traitement en cas de dépassement. 15 sites disposent ainsi d'une station de traitement des eaux qui reposent sur différents procédés de traitement (coagulation/floculation, résines échangeuses d'ions, neutralisation par drains calcaires, lagunage, zones humides artificielles, etc.)
- Le suivi environnemental des différents sites est renseigné et consolidé au sein d'une base de données centrale. Les données recueillies ne concernent qu'une poignée de paramètres imposés réglementairement (U, Ra, pH, DCO, MES, et métaux en trace) et ne permettent pas d'avoir une vision exhaustive de la composition de ces eaux. Ce suivi, qui ne dépasse pas les limites du périmètre réglementaire s'explique par des considérations économiques. Seulement, l'absence de données sur les éléments majeurs des eaux en aval des rejets ne permet pas de déployer un outil d'évaluation de la biodisponibilité à large échelle sans la réalisation de campagnes complémentaires.
- La caractérisation des $VGE_{cond.}$ par l'AMF et leur comparaison aux concentrations mesurées à l'aval permettent d'établir une conformité pour 3 sites sur 5 étudiés. Ce nombre s'élève à 7 sites conformes sur un total de 18 sites étudiés si l'on prend en considération les campagnes ponctuelles réalisées par la R&D. Toutefois cette non-conformité n'est pas nécessairement représentative puisque pour 4 sites non-conformes et pour lesquels une modélisation de la spéciation a été réalisée (Bois-Noirs, Hyverneresse, Lombre Cerilly, Le Fraisse), les concentrations en uranium biodisponible ne dépassent pas la QS_{eau} de 0.3 $\mu\text{g/L}$.
- Le regroupement de ces résultats avec ceux de l'atlas géochimique, selon le découpage en hydroécocorégions, permet d'établir la sensibilité des sites à l'application d'une $VGE_{cond.}$:
 - une $VGE_{cond.}$ potentiellement contraignante (0.3 à 3 $\mu\text{g/L}$) pour les eaux localisées dans le Massif Central, liée à la présence d'eaux peu minéralisées, à tendance acide
 - une $VGE_{cond.}$ potentiellement moins contraignante (10 à 30 $\mu\text{g/L}$) pour les eaux du Massif Armoricain, de Vendée, des Cévennes, et en bordure de Causse.

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 37/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

5.1 Le passif minier uranifère français

5.1.1 Historique


En France, l'exploitation de l'uranium s'est déroulée sur près d'un demi-siècle en débutant dans les années 1940 avec l'exploitation de la mine d'Henriette dans le Limousin, pour se terminer dans les années 2000 avec la fermeture du site de Jouac en Haute-Vienne. Elle a permis l'extraction de près de 76 000 tonnes d'uranium sur la période.

L'exploitation des différents gisements s'est partagée entre un opérateur étatique, le CEA, qui transféra ses activités d'exploitation à la COGEMA et qui exploita environ 65 % des réserves françaises, et par d'autres opérateurs privés implantés plus localement. On retrouve ainsi la SIMURA en Bretagne, la CFMU en Lozère, ou encore la SCUMRA dans le Cantal (références des acronymes dans le Glossaire, p 68). Malgré l'arrêt de l'exploitation minière, une extraction résiduelle et marginale d'environ 3 tonnes d'uranium est toujours réalisée annuellement en France par AREVA sur le site du Bosc (Lodève) par valorisation du traitement des eaux d'exhaure minière avant rejet dans le milieu naturel.


À la demande du ministère de l'environnement, un inventaire des sites ayant présentés des activités liées à l'exploitation de l'uranium a été finalisé en 2007 par l'IRSN, afin de mieux définir l'ampleur de ce passif. Baptisé MIMAUSA (Mémoire et Impact des Mines d'urAniUm, Synthèse et Archives), cet inventaire recense au total environ 250 sites répartis sur 26 départements qui ont été concernés par des activités d'exploration, d'exploitation, de traitement, ou de stockage de résidus. Confirmant la distribution de l'uranium dans le sous-sol français présentée précédemment, l'ensemble des gisements qui ont été exploités se concentrent principalement dans les districts uranifères dans le Massif Central, en Bretagne, en Vendée, ou plus localement dans le Morvan et les Cévennes.

L'ensemble de ces sites, qui ont été exploités -ou non- par la COGEMA, sont dorénavant sous la responsabilité d'AREVA Mines qui doit gérer l'ensemble de ce passif minier.

5.1.2 Plan National de Gestion des Matières et des déchets Radioactifs

 Le Plan National de Gestion des Matières et des déchets Radioactifs (PNGMDR) découle de la loi relative à la gestion durable des matières et déchets radioactifs du 28 juin 2006. Il permet de préciser les modes de gestion des matières et déchets radioactifs, et d'établir leurs besoins en termes de capacité, de durée, et de mode d'entreposage. Afin de mettre à jour ce plan tous les 3 ans, l'Autorité de Sûreté Nucléaire (ASN) recueille l'ensemble des informations nécessaires auprès des opérateurs du secteur nucléaire (CEA, AREVA, ANDRA, etc.). Depuis 2006, 4 plans ont été produits pour les périodes 2007-2009, 2010-2012, 2013-2015, et 2016-2018. Le PNGMDR est, in-fine, un outil de planification et de suivi des objectifs selon un processus d'amélioration continue s'adressant aux différents opérateurs de la filière électronucléaire. Il constitue donc un élément important dans la communication de l'ASN sur les différentes orientations engagées dans ce domaine.

Au titre du PNGMDR, AREVA Mines définit la liste des actions relatives à la gestion du passif minier uranifère et pour laquelle l'entreprise s'engage à réaliser durant la période. Il s'agit notamment d'actions d'inventaires, d'amélioration des procédés de traitement actuellement mise en œuvre, de la recherche de procédés alternatifs, ou encore de la définition de programme d'études concernant l'impact de l'uranium sur le milieu récepteur, comme c'est le cas avec l'étude concernant sa biodisponibilité.

 Au titre du PNGMDR 2016-2018, AREVA s'engage ainsi à « [continuer de] définir et [de] justifier la stratégie retenue pour le traitement des eaux collectées sur les anciens sites miniers relevant de sa responsabilité » (article 64, arrêté ministériel du 23/02/2017).

5.2 Rejets dans le milieu récepteur

5.2.1 Origine des rejets

Lors de l'exploitation d'un gisement, un réseau de puits de pompage (couronne de dénoyage) permet d'abaisser la cote piézométrique des aquifères en présence afin d'accéder au minerai. L'arrêt de l'activité minière, suivi fréquemment par un arrêt des pompes, implique une remontée de la cote

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 38/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

piézométrique et un noyage progressif des anciens fronts d'extraction. Dès lors, les eaux de nature météoriques percolent au travers des anciens fronts d'extraction, ou encore au travers des verses à stériles ou de résidus de traitement, et sont à l'origine de modifications de leur composition chimique et radiologique potentiellement impactant pour le milieu récepteur. La caractérisation de ces eaux et leur gestion constituent un enjeu capital pour AREVA Mines. L'objectif final du département de l'Après Mines France (AMF) est de transférer ce patrimoine foncier au domaine public. Ceci nécessite donc un suivi de la qualité des rejets sur les anciens sites et de leur traitement éventuel jusqu'à ce qu'ils ne représentent plus d'impact pour l'environnement.

5.2.2 Conformité réglementaire

Sur l'ensemble du passif minier, environ une quarantaine de 40 sites présentent des rejets et pour lesquels seuls 15 d'entre eux nécessitent la mise en place d'une station de traitement pour se conformer à la réglementation en vigueur (Cf. Tableau 3).

La plupart des arrêtés préfectoraux appliqués sur les sites disposant d'une station de traitement suivent les prescriptions du RGIE concernant l'uranium avec une concentration limite dans les rejets de 1.8 mg/l (à l'exception des sites d'Augères avec un seuil à 0.1 mg/L, de Bellezane et de Bessines avec un seuil à 0.8 mg/L). Les stations collectant les eaux issues des stockages de résidus miniers en plus des eaux d'exhaure minière sont soumises également à la réglementation sur les Installations Classées Pour l'Environnement (ICPE). Dans ce cas, un unique arrêté préfectoral régit à la fois le rejet issu du traitement des eaux d'exhaure minière et de celles en provenance des stockages de résidus (Bellezane, Bertholène, Bessines, Le Bernardan, Bois Noirs-Limouzat, Le Cellier, L'Écarpière, Lodève). **Les différents suivis environnementaux (non détaillés ici) indiquent que l'ensemble des rejets des stations de traitement des eaux sont conformes aux limites réglementaires.**

Tableau 3 – Limites réglementaires de rejets fixés par arrêtés préfectoraux pour chaque site disposant d'une station de traitement (d'après PNGMDR)

Stations de traitement	pH	U soluble	²²⁶ Ra soluble	SO ₄ ²⁻	Ba	Al	Fe	Mn	As	Mo	MES	DCO	Arrêté préfectoral
		(mg/L)	Bq/L	(g/L)	(mg/L)	(mg/L)	(mg/L)	(mg/L)	(mg/L)	(mg/L)	(mg/L)	(mg/L)	
Augères (87) ¹		0,1	0,25										2006-1485 du 18/08/2006
Bellezane (87) ¹		0,8	0,25		1						20		2006-1566 du 31/08/2006 ; 97-98 du 03/04/1997
Jouac-Bernardan (87) ¹	5,5 - 9,5	1,8	0,74	4	1						30		2002-247 du 21/05/2002
Le Fraisse (87) ¹		Application du RGIE											96-459 du 20/12/1996
Henriette (87) ¹		Application du RGIE											-
Silord (87) ¹		Application du RGIE											-
Site Industriel de Bessines (87) ¹	5,5 - 8,5	0,8	0,25	4	1			30			20	30	AP 2008-088 du 17/01/2008, AP 95-523 du 13/12/95 et AP du 02/08/1990
Bertholène (12) ¹	5,5 - 8,5	1,8	0,37			15 (métaux totaux)				30			990517 du 09/03/1999
Les Bois Noirs (42) ¹		1,8	0,37 (1 sur prélèvement mensuel)	0,25	1						30		90-250590 du 25/05/1990
Le Cellier (48) ³	6 - 8,5	1,8	0,37	0,35	1		0,2		0,05		30	90	93-1638 du 30/09/1993
Cérilly (03) ²	5,5 - 8,5	1,8	0,74										5019/97 du 27/11/1997 ; 955-17 du 04/04/2017
Lodève (34) ³	5,5 - 9	1,8	0,74	2	1				0,1	3	30	100	2004-1-332 du 16/02/2014 ; 2005-I-1111 du 16/05/2005
Baconnière (49) ⁴	6,5 - 8,5	1,8	0,37				15				30		D3-2006 n°702 du 30/11/2006
Beaurepaire (85) ²	5,5 - 8,5					5	5				30		00-DRCLC/4-38 du 25/01/2000
L'Écarpière (44,49) ²	5,5 - 8,5	1,8	0,37				5				30	80	63ENV95 du 30/11/1995 ; arrêté interpréfectoral du 30/09/2009

⁽¹⁾ moyennes annuelles ; ⁽²⁾ moyennes mensuelles ou prélèvement mensuel ; ⁽³⁾ moyennes journalières ou prélèvement journalier ; ⁽⁴⁾ au rejet

5.2.3 Traitement des eaux

Actuellement 15 sites procèdent à la collecte des eaux d'exhaure minière et disposent de procédés de traitement pour respecter les normes de rejets réglementaires (Cf. Figure 17). Ces stations traitent un volume annuel (moyenne annuelles de 2011 à 2014) compris entre 20 000 m³ (Cérilly) et 1 126 000 m³ (Augères). Ces stations de traitement utilisent différents procédés pour le traitement des radionucléides, des métaux, et du pH, répartis selon deux familles :

Approche multiscalare dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 39/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

- **procédés dits « actifs »**, de cinétiques réactionnelles courtes, en ayant recourt à des réactifs (coagulation/floculation, résines échangeuses d'ions, rééquilibrage calco-carbonique à la chaux)
- **procédés dits « passifs »**, de cinétiques réactionnelles plus longues, en recréant les mécanismes naturels de piégeage de l'uranium (piégeage par les hydroxydes de fer, par la matière organique)

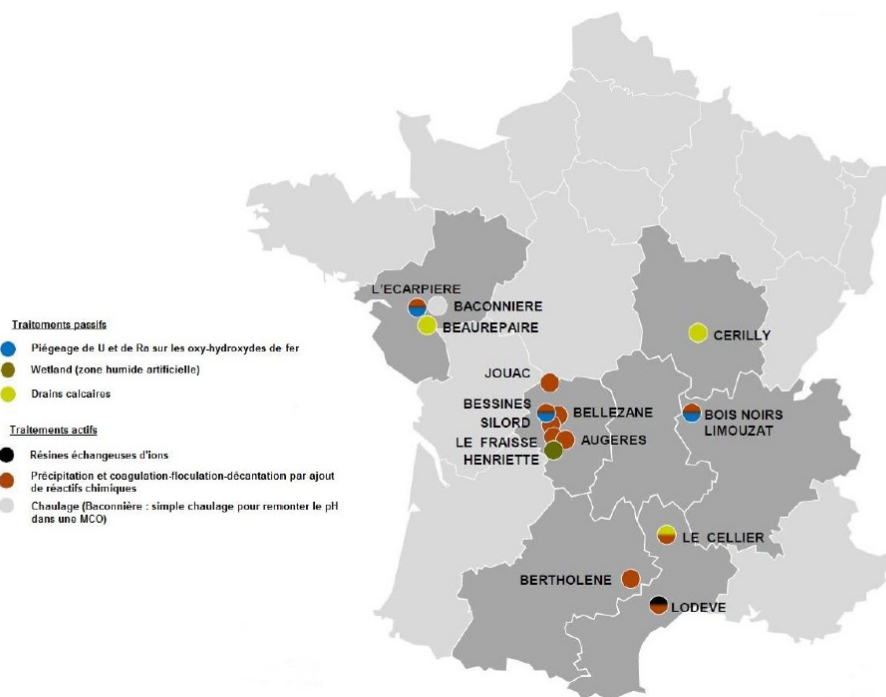


Figure 17 - Carte des différentes stations de traitement sur les anciens sites miniers uranifères français (Gibeaux 2015)

5.2.3.1 Coagulation-floculation

Le procédé de coagulation/floculation repose sur l'injection de sulfate d'aluminium comme coagulant, pour former des floccs d'hydroxydes d'aluminium piégeant facilement l'uranium. L'adjonction de chlorure de baryum permet ensuite par association avec les sulfates de former des co-précipités de sulfates de baryum et de radium (d'où l'utilisation préférentielle du sulfate d'aluminium au dépend du chlorure ferrique utilisé plus traditionnellement en traitement des eaux potables). Une injection additionnelle de polymère est parfois réalisée pour favoriser la décantation des floccs, et une neutralisation peut être réalisée en cours (ou en fin) de procédé par ajout de chaux ou de soude (augmentation des rendements de traitement au pH optimal, ou neutralisation avant rejet). La décantation des floccs est réalisée par lagunage, ou bien par une injection ascendante du flux à travers un lit de boue favorisant ainsi sa décantation. Les boues générées par ce procédé de coagulation/floculation sont curées régulièrement avant d'être évacuées vers un centre de stockage adapté. Ce procédé permet de s'adapter à des débits de fonctionnement variables, d'adapter l'injection des réactifs aux éléments à traiter, mais nécessite la gestion d'un volume important de boues, et de l'utilisation de réactifs pouvant générer un impact non négligeable dans le milieu récepteur (sulfates, aluminium, baryum, etc.).

5.2.3.1 Piégeage sur hydroxydes de fer

Ce procédé consiste à piéger l'uranium et le radium sur les hydroxydes de fer qui précipitent naturellement en fond de lagune en conditions oxydantes et selon un pH optimal. Le piégeage de l'uranium sur les hydroxydes de fer nécessite un milieu acide avec un pH compris entre 6 et 7, tandis que le piégeage du radium nécessite un milieu alcalin avec un pH compris entre 9 et 10. Ce procédé est utilisé en tête de filière de traitement sur les sites de l'Écarpière, de Beaurepaire, de Bessines, et des Bois-Noirs.

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 40/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

5.2.3.2 Neutralisation

Les effluent miniers nécessitent parfois une neutralisation pour réadapter leur pH afin d'améliorer la précipitation d'hydroxydes, d'atteindre un pH optimal pour le procédé de traitement, ou tout simplement pour se conformer à une limite de pH au rejet (ces procédés présentent de faibles rendements pour le traitement des radionucléides) :

- injection de **soude** sur les sites de Bellezane, de Silord, des Bois-Noirs, et de Bertholène
- injection de **lait de chaux** sur les sites de Baconnière, Bertholène, Le Bernardan, l'Écarpière, et Le Bosc (Lodève)
- **drains calcaires** (Beaurepaire, Le Cellier, Cérilly) : passage des effluents acides à travers un lit calcaire permettant une dissolution des carbonates, une augmentation du pH, et la précipitation d'hydroxydes de fer et d'aluminium. Cette précipitation favorise l'élimination de l'uranium par sorption sur ces hydroxydes, mais de façon relative étant donné la lente cinétique de formation de ces précipités. Cette méthode est particulièrement bien adaptée pour les sites dont les effluents à traiter sont principalement concentrés en fer ou en aluminium, et peu chargé en uranium.

5.2.3.3 Piège organique dans une zone humide artificielle

Le procédé, encore à l'état expérimental, consiste à recréer une zone humide artificielle recréant un milieu proche de celui observé au sein des tourbières et favorable au piégeage des radioéléments. Il est actuellement déployé pour le traitement des eaux de l'ancien site minier d'Henriette. La reconstitution d'une zone humide artificielle permet de développer des conditions réductrices pour lequel l'uranium est moins soluble, et d'induire des phénomènes de sorption de l'uranium par la matière organique et la fraction argileuse en présence. L'utilisation récente de ce type de procédé n'a pas encore permis d'établir un retour d'expérience, notamment sur les risques de relargage des métaux (modifications de conditions physico-chimiques, et de la gestion de la matière organique après saturation (filère de traitement/stockage)).

5.2.3.1 Résines échangeuses d'ions

Le procédé de traitement repose sur l'utilisation de résines échangeuses d'ions spécialement développées pour adsorber une certaine charge en uranium en échange d'un relargage équivalent des ions la constituant (ions carbonates pour des effluents alcalins, et ions sulfates pour des effluents acides). L'uranium est ensuite récupéré par élution des résines chargées puis subit des traitements de raffinage avant valorisation (équivalent à certains procédés de traitements utilisés pour le traitement du minerai). Ce procédé est utilisé dans le cas de rejets dont la concentration en uranium est élevée. Il permet la valorisation de l'uranium en tant que sous-produit de traitement. L'unique station de traitement utilisant ce procédé est localisée sur le site du Bosc (Lodève), pour lequel le pH alcalin impose l'utilisation de résines aux ions carbonates. Ce site est à l'origine de la seule production en uranium sur le territoire français (de l'ordre de 3 tonnes par an).

5.3 Base de données de suivi environnemental

5.3.1 Structure de base

Les anciens sites sont soumis à un suivi environnemental d'ordre réglementaire qui nécessite l'analyse de quelques paramètres à une fréquence mensuelle. Les données de suivi environnemental sont gérées au sein d'une base et sont régulièrement publiées auprès des autorités.

Au sein d'AREVA Mines, l'ensemble des données de suivi environnemental sont gérées depuis 2008 dans une base de données centrale. Initialement déployée sur le site de La Hague, la base de données EXPertise Radioprotection (EXPR) a été développée par la société EURIWARE en 2004 (actuellement CAPGEMINI). Conforme au besoin réglementaire, cette application permet de gérer le suivi environnemental, depuis la réalisation des demandes d'analyses jusqu'à l'édition de registres à destination des services de l'état. Actuellement, cette base de données est utilisée dans des domaines

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 41/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

d'activités variés en lien avec l'activité électronucléaire (nucléaire, biologie, chimie, météorologie, laboratoires etc.) et sur des sites distincts (AREVA La Hague, ANDRA, AREVA FBFC et CESAAM, CEA Saclay & Marcoule, AREVA COMURHEX). Chacune de ces bases sont développées sur une structure commune, et complétées de modules répondant à des besoins spécifiques. Implantée sur l'intranet des entités, la base de données EXPR est une application web qui ne nécessite pas l'obtention d'une licence d'utilisation, ni l'installation d'une application particulière.

La base de données EXPR qui a été adaptée pour les besoins de l'Après-Mine France (AMF) est structurée selon le plan de surveillance environnemental des différents sites que la direction a en charge, et couvre un processus en trois étapes :

1. **définition et saisie des types de prélèvements** à réaliser (définition du point et du type de prélèvement, saisie de la demande d'analyse)
2. **définition de la demande d'analyses et saisie des résultats** (réception de la demande d'analyse par les laboratoires sollicités, saisie des résultats d'analyse)
3. **validation, édition, et déclarations des résultats d'analyse** (validation des résultats d'analyse, réalisation des bilans, déclaration aux autorités compétentes)

La structure peu intuitive de la base de données et la difficulté de la faire évoluer est à l'origine d'une réflexion en interne pour la migration des données vers ACQUIRE, une base de données utilisée plus largement au sein d'AREVA Mines pour la gestion des données géologiques et minières.

5.3.1 Données disponibles

La base de données de suivi environnemental n'est utilisée qu'à des fins réglementaires. L'extraction des données s'effectue ponctuellement à la demande des autorités sur des sites en particulier et ne permet pas d'obtenir une vision globale de l'ensemble des sites. Par ailleurs, les plans de suivi environnementaux se conforment uniquement aux obligations réglementaires de suivi d'une liste de paramètres propres aux sites, et fonction de la réglementation qui leur est appliquée (application du RGIE ou d'arrêtés préfectoraux plus stricts). La définition réglementaire de cette liste dépend notamment du marquage radiologique (U, et ²²⁶Ra), chimique (métaux, Demande Chimique en Oxygène), et de la charge solide (Matière En Suspension) des rejets dus à la nature même des effluents captés et de leur traitement éventuel par des réactifs (Baryum, Aluminium). Cependant, aucun suivi des éléments majeurs n'est disponible au sein de cette base. Il est donc impossible de réaliser quelconque calcul de spéciation de l'uranium à partir de cette base.

L'objectif initial de mettre en place un outil permettant le calcul de la biodisponibilité de l'uranium à partir de la base de données de suivi environnemental n'est pas atteignable en l'état du fait de l'absence d'analyses chimiques exhaustives permettant la réalisation de calculs de spéciation.

5.4 Évaluation des Risques pour les Écosystèmes

5.4.1 Détermination des VGEconditionnelles

Pour se conformer à la parution du Guide Technique de gestion des anciennes mines d'uranium et son approche graduée d'Évaluation des Risques pour les Écosystèmes, l'AMF a lancé des campagnes de caractérisation des Zones De Mélange et de définition des VGE_{cond.} les concernant. Pour vérifier la conformité aux différentes VGE_{cond.}, l'AMF se base sur un modèle analytique de dilution des concentrations en uranium du rejet dans la Zone De Mélange d'après les chroniques de suivi environnemental au rejet. Cette approche permet de valider la conformité à long terme des concentrations modélisées dans la Zone De Mélange (sous réserve d'une stabilité de la composition chimique dans la gamme des paramètres établis par la VGE_{cond.}). Par ailleurs, d'autres études réalisées par la R&D ont abouti à la définition d'une VGE_{cond.}, dont la conformité ponctuelle n'est valable qu'à la date du prélèvement (sans chronique de suivi). Le tableau suivant (Cf. Tableau 4) synthétise l'ensemble

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 42/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

des résultats d'étude ayant permis d'établir les VGE_{cond.} et leur conformité. Un programme a été établi pour planifier et compléter ces analyses sur les autres sites concernés.

Sur les 7 sites sur lesquels la VGE_{cond.} a été établie conformément à la méthodologie de l'AMF, seuls 3 sites présentent des concentrations en uranium conformes dans la zone de mélange. Si l'on prend en considération les sites dont la VGE a été établie par les campagnes ponctuelles de la R&D, ce nombre s'élève à 7 sites conformes sur un total de 18 sites. Ceci s'explique par la localisation d'une majeure partie des sites non conformes en contexte cristallin, avec des eaux peu minéralisées de pH acide, et présentant ainsi les VGE les plus contraignantes.

Tableau 4 – Synthèse des VGE_{conditionnelles} établies sur les sites du passif minier uranifère français, selon l'arbre de détermination le plus récent communiqué par l'IRSN

Sites	Alcalinité mg/L (HCO ₃ ⁻)	pH	COD mgC/L	VGE _{cond.} n° classe // µg/L		U aval µg/L	Conformité VGE _{cond.}
Bellezane	NC	NC	NC	4	0.3	NC	CONFORME
Bois Noirs	NC	NC	NC	4	0.3	NC	non défini
Bertholène	NC	NC	NC	1	30.0	NC	CONFORME
Le Cellier	NC	NC	NC	4	0.3	NC	NON CONFORME
Le Fraisse	NC	NC	NC	4	0.3	NC	non défini
Jouac-Le Bernardan	NC	NC	NC	3	3.0	NC	NON CONFORME
Silord	NC	NC	NC	4	0.3	NC	CONFORME
Henriette	NC	NC	NC	4	0.3	NC	non défini
Bois Noirs	16.5	7.2	2.4	4	0.3	36.9	NON CONFORME (1)
Hyverneresse	16.5	7.2	2.5	4	0.3	26.7	NON CONFORME (1)
Lombre Cerilly	18.3	7.0	5.7	4	0.3	20.0	NON CONFORME (1)
Le Cellier	9.2	6.7	3.9	4	0.3	45.7	NON CONFORME (1)
Lodeve	283.1	8.3	1.6	1	30.0	3.8	CONFORME (1)
Le Chardon (Margerie)	91.5	7.3	11.7	1	30.0	26.2	CONFORME (1)
Le Chardon (Sevre Nantaise)	47.1	7.6	7.2	2	10.0	1.3	CONFORME (1)
Écarpière (Aval proche)	105.0	7.6	7.4	1	30.0	1.4	CONFORME (1)
Le Fraisse (Couze)	1.3	6.9	5.1	4	0.3	1.3	NON CONFORME (1)
Beaurepaire	137.9	7.7	5.2	2	10.0	42.0	NON CONFORME (1)

NC, Non Communiqué : données non communiquées mais disponible dans chacun des rapports de détermination des zones de mélange et des VGE ; (1) site caractérisé au cours d'une campagne ponctuelle du département R&D (conformité indicative)

5.5 Évaluation de la biodisponibilité

Pour anticiper une prise en compte de la biodisponibilité dans l'évolution réglementaire et évaluer les méthodes proposées par l'IRSN, des campagnes de prélèvements et d'analyses des eaux sont réalisées depuis quelques années par le département R&D d'AREVA pour étudier la biodisponibilité de l'uranium en aval des anciens sites miniers. Ces campagnes de prélèvements ne concernent qu'une petite quantité de sites, puisque leur mise en œuvre était jusqu'ici assez lourde du fait de la qualification conjointe des dispositifs DGT pour caractériser l'uranium biodisponible par approche scientifique (Cf. paragraphe 3.2.4.1, p13). Les résultats de modélisations de la fraction biodisponible pour chacun des sites étudiés et leur conformité ponctuelle à la QS_{eau} sont synthétisés dans le tableau suivant (Cf. Tableau 5). Un rappel de la conformité à la VGE_{conditionnelle} permet de comparer les deux approches.

Sur l'ensemble des sites sur lesquels la biodisponibilité a pu être estimée par des modélisations de spéciation (les résultats de biodisponibilité avec DGT seul ne sont pas considérés), la concentration en

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 43/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

uranium biodisponible est conforme à la QS_{eau} . Trois des sites étudiés non conformes selon la $VGE_{cond.}$ sont ainsi jugés conformes par ces campagnes ponctuelles (Bois-Noirs, Hyverneresse, Lombre-Cerilly), du fait notamment d'une spéciation dominée par des espèces ternaires de l'uranium $CaUO_2(CO_3)_3^{2-}$ non biodisponibles. Pour les deux autres sites respectant déjà la $VGE_{cond.}$, les modélisations de la fraction biodisponible valident ces conformités.

Tableau 5 – Synthèse des résultats de modélisations de la fraction biodisponible réalisées à l'issue des campagnes de prélèvements réalisées par le département R&D

SITES	Conformité $VGE_{cond.}$	Ubiodisponible $\mu g/L$		Delta $\mu g/L$	Approche du risque	Conformité QS_{eau}
		Amont	Aval			
Bois Noirs	✘	0.04	0.00	+0.04	RT	CONFORME <0.30 $\mu g/L$
Hyverneresse	✘	0.77	0.00	<0	RA	CONFORME Delta<0.30 $\mu g/L$
Lombre Cerilly	✘	0.00	0.03	<0	RT	CONFORME <0.30 $\mu g/L$
Le Fraisse (sur la Couze)	✘	1.27	1.18	<0	RA	CONFORME Delta<0.30 $\mu g/L$
Lodeve	✔	0.00	0.00	0	RT	CONFORME <0.30 $\mu g/L$
Écarpière (aval proche)	✔	0.00	0.00	0	RT	CONFORME <0.30 $\mu g/L$

5.5.1 $VGE_{conditionnelles}$ & Hydroécórégions

Pour compléter la démarche pour les autres sites qui n'ont pas encore été concernés par ces études, il est possible de procéder dans un premier temps par analogie avec des eaux voisines représentatives du contexte régionale afin d'identifier des $VGE_{conditionnelles}$ **potentielles**. Celles-ci peuvent ainsi être utilisées pour établir une planification des études à réaliser sur les sites jugés prioritaires.

La méthode repose sur l'utilisation du découpage du réseau hydrographique en hydroécórégions. Ces dernières sont des entités hydrographiques pour lesquelles les caractéristiques géologiques, climatiques, hydrologiques, hydromorphologiques, et hydrogéochimiques du réseau hydrographique présentent une certaine homogénéité (Cf. Annexe 8.4.1.1, p 80). Les travaux de découpage du réseau hydrographique français en entités représentatives ont été réalisés en 2006 (CEMAGREF, [8]) en proposant un découpage principal selon 22 hydroécórégions de niveau 1 (HER1), et un sous-découpage en 120 hydroécórégions de niveau 2 (HER2).

La méthode consiste donc à regrouper dans un même contexte représentatif l'ensemble des points pour lesquels la $VGE_{conditionnelle}$ a été établie, et de transposer leurs résultats par analogie aux autres sites non étudiés et localisés dans la même hydroécórégion.

L'ensemble des anciens sites miniers se localisent sur les grands bassins versants hydrographiques de la Loire, de la Gironde, et de la Garonne, et plus marginalement de l'Hérault et de la Vilaine. Ils se développent sur 4 hydroécórégions HER1 (Massif Armoricain, Massif Central nord, Massif Central sud, Cévennes), découpées selon une dizaine d'hydroécórégions HER2. Pour restreindre la méthode aux points les plus représentatifs des aires géographiques concernées, seuls les points inclus dans une zone tampon de 30 km autour du bassin versant hydrographique des anciennes mines d'uranium et appartenant à la même hydroécórégion sont pris en considération



La méthode utilisée ne prétend en aucun cas caractériser les eaux des sites miniers n'ayant pas fait l'objet de campagnes de prélèvements. Il s'agit uniquement d'attribuer une $VGE_{conditionnelle}$ **potentielle** en procédant par transposition avec des eaux voisines issues d'un même contexte représentatif. Cette approche s'inscrit dans une **démarche strictement opérationnelle** qui permet uniquement de visualiser des tendances à l'échelle régionale afin d'en identifier les enjeux. **Elle ne remplace en aucun cas les études de caractérisation des VGE sur les différents sites.**

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 44/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

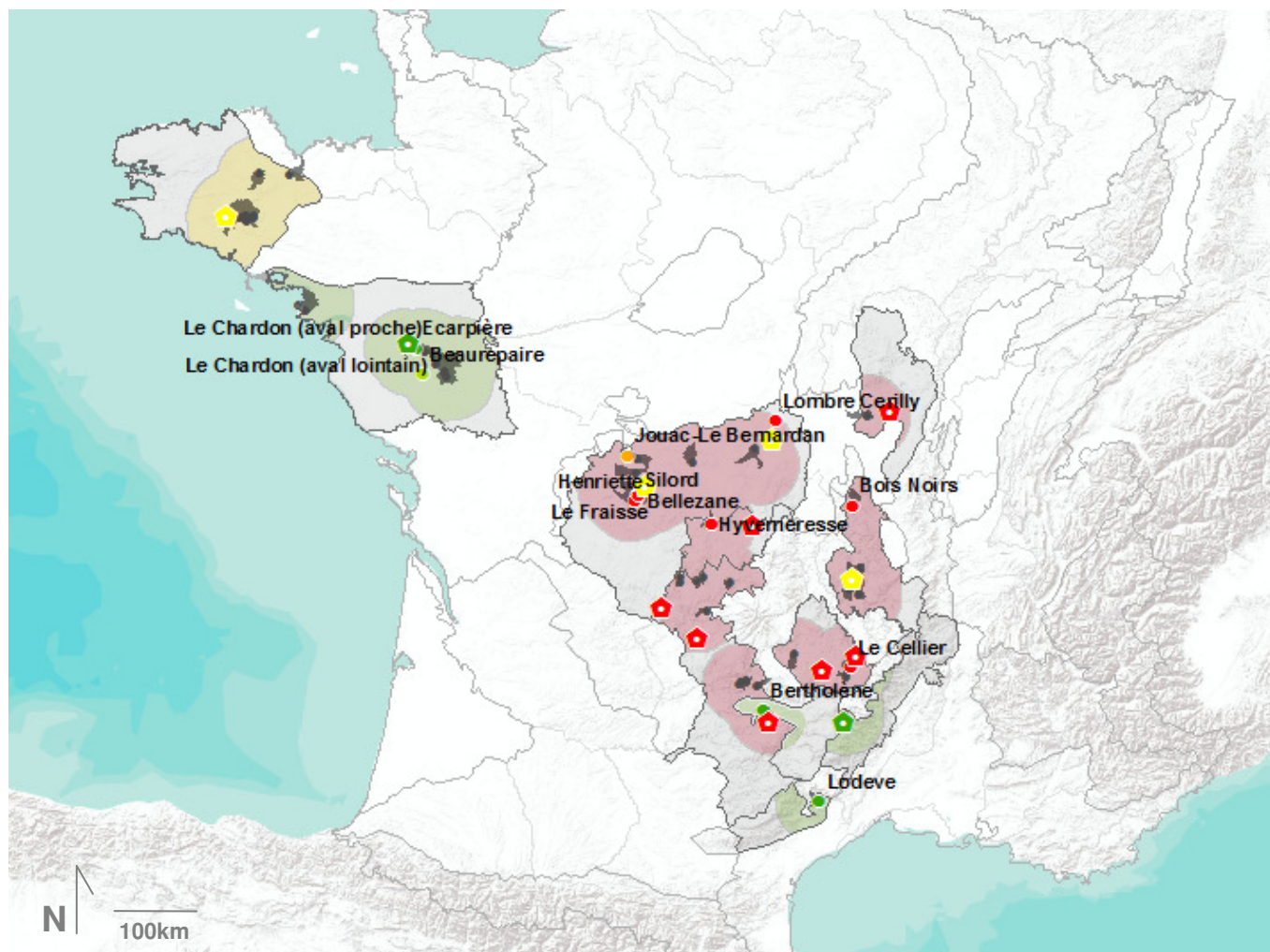
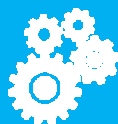


Figure 18 - Cartographie des points de prélèvements ayant fait l'objet d'une caractérisation de la VGE_{cond.} (pentagones : points FOREGS ; cercles : sites AREVA). En rouge, la VGE de classe 4, en jaune la VGE de classe 2, en vert, la VGE de classe 1).

La cartographie des points étudiés permet d'établir globalement deux niveaux de sensibilité concernant la potentielle qualification d'une VGE conditionnelle :

- une VGE_{cond.} potentiellement contraignante (0.3 à 3 µg/L) pour les eaux localisées dans le Massif Central, liée à la présence d'eaux peu minéralisées, à tendance acide
- une VGE_{cond.} potentiellement moins contraignante (10 à 30 µg/L) pour les eaux du Massif Armoricain, de Vendée, des Cévennes, et en bordure de Causse.

Les sites les plus sensibles à une VGE contraignante, et présentant de surcroît de forts enjeux (présence d'un rejet et d'un milieu récepteur sensible) doivent être étudiés en priorité, par l'intermédiaire de campagne permettant l'évaluation de la biodisponibilité dans le milieu récepteur.



L'évaluation de la biodisponibilité de l'uranium sur les anciens sites miniers uranifères nécessite la réalisation d'une campagne d'investigation complète à l'échelle de chacun des sites, illustrée en partie par l'étude sur l'ancien site minier « Le Fraisse ». L'application sur un cas concret de l'approche développée par l'IRSN va permettre d'en comprendre ses limites.

6 Approche méthodologique à l'échelle d'une ancienne exploitation d'uranium : Le Fraisse



POINTS CLÉS

- L'ancien site minier du Fraisse se localise dans la commune de Razès dans le Limousin (87). Il a fait l'objet d'une exploitation minière qui a permis l'extraction d'environ 1 070 tonnes d'uranium. Le site du Fraisse se situe en contexte granitique dans le Massif Central et s'étend sur le bassin versant de la Couze (bassin hydrographique de la Loire). À l'arrêt de l'exploitation, un point de rejet nécessitant un traitement préalable est apparu.
- Un bassin de stockage a été aménagé pour récupérer les eaux de drainage minier et les refouler vers une station de traitement. Le procédé de traitement des eaux repose sur l'injection de sulfate d'aluminium et de chlorure de baryum, suivi d'une décantation gravitaire au sein de trois lagunes successives. Les eaux traitées sont ensuite rejetées dans le ruisseau du Fraisse de façon gravitaire.
- Deux campagnes de prélèvements ont été réalisées entre juillet et août 2017 pour l'évaluation de la biodisponibilité de l'uranium. Des profils physico-chimiques et 12 points de prélèvements des eaux ont été réalisés le long du ruisseau du Fraisse et de la Couze. Les échantillons filtrés (fraction $<0.2 \mu\text{m}$) et acidifiés sur le terrain ont été envoyés au laboratoire d'analyse d'AREVA (SEPA/SAN) pour une analyse complète des éléments majeurs, des métaux en trace, de la radioactivité, et du carbone en solution (CIT & COT).
- Les analyses sur les éléments majeurs montrent des eaux de surface au faciès chloruré-sodique et des eaux souterraines au faciès sulfaté-calcique. Les eaux se caractérisent par des concentrations en aluminium caractéristiques d'eau en contexte granitique per-alumineux, et la présence d'importantes concentrations en baryum au rejet s'explique par le traitement du radium des eaux d'exhaure par l'ajout de chlorure de baryum. Les résultats de la campagne confirment les résultats des suivis environnementaux avec des concentrations naturelles de l'ordre de 2 à 3 $\mu\text{g/L}$ dans les cours d'eau hors influence minière, et une concentration de 5 à 10 $\mu\text{g/L}$ au rejet. Le rejet est conforme à la réglementation qui lui est imposée (arrêté préfectoral selon valeurs du RGIE).
- L'application de la méthode proposée par l'IRSN montre de nombreuses difficultés de mise en œuvre dans la définition d'un bruit de fond de référence, et de seuils de références trop proches des incertitudes de mesure. Son application montre que les eaux de la Couze sont non conformes à l'application de la VGE générique et conditionnelle, mais que les différences de concentrations en uranium biodisponible valident ponctuellement leur conformité selon le critère $QS_{\text{eau}} (<0.3\mu\text{g/L})$. Pour le ruisseau du Fraisse, les eaux à l'aval du rejet ne sont conformes à aucun des critères mentionnés ($VGE_{\text{générique}}$, $VGE_{\text{conditionnelle}}$ et QS_{eau}).
- Une étude hydrobiologique a été réalisée en juillet 2017 sur le ruisseau du Fraisse et sur la Couze pour établir un Indice Biologique Globalisé sur les populations de macro-invertébrés et caractériser ainsi l'état physico-chimique des cours d'eau. Les résultats indiquent un état écologique « moyen » sur le ruisseau du Fraisse avec un impact « non avéré » du rejet, et un « bon » état écologique de la Couze avec un « faible » impact du rejet.

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 46/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

6.1 Objectifs & enjeux

À la demande du département de l'Après Mine France (AMF) d'AREVA, une étude a été menée sur l'ancien site minier du Fraisse afin d'évaluer la fraction biodisponible de l'uranium dans les eaux de surface et d'identifier un éventuel impact du rejet dans le milieu récepteur. Cette étude s'intègre dans les actions menées au titre du PNGMDR, et ont pour objectif de présenter un argumentaire en faveur de l'arrêt de l'actuelle station de traitement du site, et de la faire évoluer vers un traitement alternatif passif.

6.2 Étude de site

6.2.1 Contexte géographique

L'ancien site minier « Le Fraisse » se localise à une trentaine de kilomètres au nord de Limoges, dans la commune de Razès (87640), dans le département de la Haute Vienne (région Nouvelle Aquitaine). Il se développe entre les lieux-dits « Le Fraisse » et « Les Chatres ». Le site se développe sur un environnement topographique vallonné, à l'ouest du Massif Central, compris entre une altitude de 500 à 570 m (NGF).

6.2.2 Contextes géologique & hydrogéologique

Le site du Fraisse se localise à l'est de la carte géologique d'Ambazac (feuille n°639). Il s'inscrit sur la bordure occidentale du Massif Central, dans le complexe granitique de Guéret. Sur le périmètre du site les formations géologiques en présence sont constituées de leucogranites alcalins à deux micas et à microclines perthitiques (γ_1), et plus à l'ouest sur le secteur de Razès associés à des minéralisations d'orthoses, de muscovites automorphes et de sillimanite résiduelle (γ_2). Le massif est découpé par des filons de lamprophyres et de microgranites essentiellement orientés N20°, et de filons sub-verticaux minéralisés en uranium selon deux familles de fracturation orientées N100° et N120°. Ces filons minéralisés constituent la cible des différentes exploitations de la division minière de la Crouzille. Caractéristiques des contextes granitiques, les vallées hydrauliquement peu fonctionnelles sont constituées d'argiles d'altération associés à des niveaux de colluvions en fond de vallée (ruisseau du Fraisse), et de différentes formations alluvionnaires pour les réseaux hydrographique plus évolués (lit majeur de la Couze). Les écoulements superficiels sont globalement structurés par le réseau de fracturation sous-jacent, avec une forte propension à suivre les axes précédemment décrits (N120° et N20°).

La localisation du site se situant en contexte granitique implique un développement très limité des aquifères. Du fait de la nature peu perméable des massifs granitiques, le développement des aquifères se limite uniquement aux horizons d'altération, et aux zones de fracturation selon le modèle d'aquifère en contexte de socle altéré. La faible puissance de ces aquifères et la présence hétérogène d'argiles dans les horizons d'altération limitant les perméabilités, impliquent de faibles capacités d'emmagasinement et ne permettent ainsi qu'un faible soutien à l'étiage du réseau hydrographique dont ils dépendent.

6.2.3 Réseau hydrographique

L'ancien site minier « Le Fraisse » s'inscrit sur le bassin versant de la Couze, un affluent en rive gauche de la Gartempe. L'ensemble est rattaché plus largement au réseau hydrographique de la Vienne et de la Loire (Cf. Annexe 8.5.1, p 81). La Couze prend sa source dans les monts d'Ambazac à environ 600 mètres d'altitude, et parcourt environ 35 kilomètres avant de rejoindre la confluence avec la Gartempe aux environs de la commune de Rancon. Étant constituée de sept tronçons d'affluents, mais avec seulement deux affluents référencés que sont les Duges et le Ritord, la Couze présente un rang de Strahler d'ordre 2. La station hydrologique de la Couze (L5114020) est située sur la commune de Saint Pardoux (87), à l'aval du lac éponyme. Elle a été installée depuis le 03/08/2016, et représente la seule station hydrologique équipant ce cours d'eau. La station de suivi de la Couze est de type limnimétrique (mesure des niveaux d'eau) et n'est corrélée avec aucune donnée de débit.

Plus localement, les écoulements sur l'ancien site minier se partagent selon une limite de bassin versant est-ouest avec des écoulements orientés au nord vers la Couze, et des écoulements orientés au sud vers le ruisseau du Ritord.

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 47/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

- au nord du site, les écoulements rejoignent un réseau de petits cours d'eaux temporaires, constituant un affluent en rive gauche de la Couze au lieu-dit « Les Châtres ». Sans dénomination officielle de cet affluent, et en l'absence de toponymie locale, cet affluent sera nommé « Ruisseau du Fraise » pour la bonne compréhension de cette étude et de la campagne de mesures et de prélèvements associée. **Selon la définition des masses d'eau par le SDAGE Loire-Bretagne, la Couze constitue le milieu récepteur des rejets du site du Fraise (le ruisseau du Fraise n'étant pas considéré comme une masse d'eau).**
- au sud du site, les écoulements rejoignent le Ritord, affluent de la Couze, qui prend sa source à l'est de l'ancien site minier au niveau du lieu-dit « Le Marzet », et parcourt environ une dizaine de kilomètres avant de se jeter dans la Couze au niveau du « Lac de Saint Pardoux » dans les environs de Chabannes.

La recherche historique du tracé de ces deux affluents atteste de leur présence dès le XVIII^{ème} siècle, avec un tracé visible sur la carte de Cassini de 1740. Ces affluents présentent une origine naturelle et leur développement ne peut être attribué à l'apparition des activités minières à partir des années 1960.

6.2.4 Historique de l'ancien site minier

Travaux miniers

Les activités minières sur le site du Fraise ont débuté en 1965 avec la réalisation des premiers Travaux Miniers Souterraines (TMS). Entre 1965 et 1989, près de 6 700 mètres de galeries ont été réalisées selon la technique dite de « tranche montante remblayée » jusqu'à une profondeur maximum de l'ordre de 150 mètres. Cette technique, qui repose sur l'exploitation d'une première galerie basale et de son remblaiement progressif avant l'exploitation des niveaux supérieurs, a permis l'exploitation de 880 tonnes d'uranium. Le remblaiement des galeries s'effectuait à l'aide du sable produit par cyclonage lors du traitement du minerai, et dénommé couramment « sable hydraulique ».

En surface, une exploitation complémentaire par Mine à Ciel Ouvert (MCO) a été réalisée par l'intermédiaire de trois fosses (MCO-X1 et MCO-X2 exploitées entre 1973 et 1974, et MCO-B exploitée entre 1980 et 1982), et qui ont permis la production d'environ 190 tonnes d'uranium. Une galerie de jonction (descenderie) a été réalisée en 1983 pour permettre un accès aux galeries souterraines depuis la MCO-B. Plusieurs verses de stockage du stérile ont été constituées sur le site et se localisent sur la ligne de partage des eaux entre le bassin versant du ruisseau du Fraise et celui du Ritord.

Réhabilitation

Le site du Fraise a fait l'objet d'un réaménagement à partir de 1991 par la destruction partielle des infrastructures de surface (reconversion de certains bâtiments), et le reprofilage des travaux miniers de surface. Les fosses MCO-XI et MCO-XII ont été remblayées sur 15 mètres d'épaisseur par du sable hydraulique complétés par 2 mètres d'épaisseur de stériles miniers. L'ensemble a été recouvert par un niveau de terre végétale. Aucune autre information concernant les caractéristiques et la géométrie de ces matériaux de remblais ne sont disponibles. **L'arrêt des pompages de dénoyage a induit le noyage de la fosse MCO-B par les eaux de surface et constitue désormais un lac en fond de fosse.**

6.3 Gestion des eaux d'exhaure minière

6.3.1 Exutoire & rejets diffus

Identification des rejets principaux

Avec une capacité d'exhaure de l'ordre de 45 m³/h, le puits de pompage dédié à la gestion des eaux après l'arrêt de l'exploitation n'a pas permis de rabattre suffisamment les eaux lors d'épisodes de hautes eaux. Un exutoire pérenne et naturel est alors apparu en 1991 dans le talweg en contre-bas du site. L'exutoire est localisé à la même altitude que celle du lac de la fosse MCO-B (450 m NGF) ce qui permet d'envisager l'hypothèse de leur connexion par le biais de la descenderie et des anciennes galeries souterraines.

Approche multiscalair dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 48/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

À proximité de l'exutoire pérenne, des rejets diffus ont été identifiés sous le bassin de réception des eaux d'exhaure lors d'une campagne de recensement en 2009 (Cadoret G., AREVA). Ces points de rejets ont été canalisés par un drain mis en place sous le bassin et rejetant leurs eaux directement en amont du ruisseau du Fraisse. L'origine de ces eaux n'est pas totalement établie. Il est cependant peu probable, mais pas inenvisageable, qu'il s'agisse d'une fuite sous le bassin puisque ce dernier a fait l'objet d'une reprise complète de l'ouvrage maçonné avec la pose d'une géomembrane suite à la découverte d'un affaissement dans sa structure courant 2013. Les mesures physico-chimiques ainsi que les analyses chimiques de ces eaux permettent cependant d'établir que les eaux du drain présentent de fortes similitudes avec celles de l'exhaure minière. Les contrastes de température, de saturation en oxygène, de concentration en uranium suggèrent cependant une origine différente (drainage préférentiel des eaux venant de la fosse MCO-B ?), ou d'un mélange des eaux de l'exhaure avec des eaux de surface (fuite résiduelle, mélange avec des eaux de surface ?).

Identification des rejets diffus

L'investigation concernant les rejets diffus sur le site du Fraisse a également mis en évidence des écoulements sur le bassin versant du ruisseau du Ritord. Il s'agit de rejets en pied de vers localisés à l'interface entre les matériaux de remblayage et le terrain naturel. Compte tenu des très faibles débits mis en jeu (drainage d'une très faible surface sur un talus en position sommitale), et du drainage essentiellement constitué par les verses à stérile, la présente étude ne s'est pas intéressée à ces rejets diffus déconnectés hydrauliquement des écoulements principaux à travers les anciennes exploitations minières.



Au regard des concentrations en uranium analysées dans ces rejets lors de la campagne de 2009 (compris entre 1 et 3 µg/L), cette zone de rejets devrait faire l'objet d'une campagne d'investigation complémentaire pour connaître l'impact de leur rejet dans le ruisseau du Ritord au niveau de l'étang du Gouillet.

6.3.2 Caractérisation des bassins versants

La limite entre les deux bassins versants des ruisseaux du Fraisse et du Ritord est difficile à déterminer du fait de l'importance des travaux miniers ayant modifié les écoulements de surface et souterrains en limite de leur bassin versant (excavations, remblais, drains, galeries), mais également des travaux de construction de l'autoroute A20.

Aucune donnée piézométrique n'est disponible pour confirmer les hypothèses d'écoulements dans les anciennes galeries souterraines et leur dynamique en fonction des différents régimes hydrauliques. On peut cependant émettre l'hypothèse que les écoulements souterrains sur le site sont analogues à un réseau karstique en suivant préférentiellement les conduits souterrains de plus forte perméabilité selon une différence de charge amont/aval (Cf. Annexe 8.5.3, p 83). En suivant cette logique, les écoulements se structureraient suivant les anciennes galeries souterraines, avec un extrême amont constitué par le drainage des anciennes fosses MCO-I et MCO-II, de leur écoulement vers le nord selon un axe N120° jusqu'au lieu-dit « Le Fraisse », puis d'un revirement des écoulements vers le sud pour suivre un axe N20° jusqu'à l'actuel exutoire. À l'instar d'un *polje* en contexte karstique, la fosse MCO-B est analogue à un bassin endoréique (sans exutoire hydrographique) pour lequel seul un système de pertes le connecte à un exutoire. Dans le cas présent, la descenderie constitue une perte artificielle pour ces eaux en permettant leur connexion au réseau principal par l'intermédiaire de galeries orientées N120. Ce modèle d'écoulement impliquerait donc un parcours principal amont/aval d'environ 1.5 km à 2.0 km entre les fosses situées sur les monts de la Pierre Pointue à une altitude d'environ 560 m (NGF) jusqu'à l'exutoire situé à 450 m (NGF).

La compréhension de ces écoulements, et de leur dynamique, nécessiterait la réalisation d'une campagne d'investigation par traçage. Celle-ci permettrait par ailleurs d'identifier d'éventuelles connexions non identifiées.

En l'absence de données concernant le réseau de drainage des anciennes installations minières et du réseau autoroutier, les hypothèses suivantes sont considérées pour la délimitation des bassins versant :

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 49/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

- les installations de l'ancien carreau minier, pour lesquelles seules la station de refoulement, la station de traitement et les lagunes de décantation sont toujours propriétés d'AREVA, sont localisées sur le bassin versant de la Couze
- la mine à ciel ouvert MCO-B dorénavant immergée, est localisée sur le bassin versant de la Couze du fait de la connexion d'une descenderie avec les galeries souterraines malgré son appartenance initiale au bassin versant topographique du Ritord
- la structuration du drainage de l'autoroute A20, respecte le bassin versant topographique de ce secteur

Ruisseau du Fraisse

Le ruisseau du Fraisse parcourt environ 1.9 km entre la zone humide constituant sa source, et sa confluence avec la Couze. Son bassin versant s'étend sur une surface d'environ 2.10 km² résultant de l'addition de son bassin versant topographique (2.0 km²) auquel vient s'ajouter le bassin versant de la fosse MCO-B (0.10 km²). Avec une surface de 2.10 km², et un périmètre de 6.7 km, l'indice de compacité de Gravelius s'élève à 1.3 indiquant un bassin versant d'une forme à tendance allongée, et des temps de concentration hydrologiques intermédiaires. Le bassin versant se compose pour grande partie de formations argileuses de fond de vallée qui se localisent dans les points bas topographiques et de formations d'altérations argileuses très peu perméables. Compte tenu de sa faible surface et de ses formations superficielles peu perméables, le ruisseau du Fraisse est assez réactif à tout épisode pluvieux, mais à l'inverse très peu capacitif avec des phases d'étiage prolongées lors des périodes peu pluvieuses.



Aucune donnée hydrologique relative à ce ruisseau n'est disponible pour confirmer le comportement hydraulique du ruisseau et valider les surfaces de son bassin versant. La constitution de seuils jaugés et de leur suivi limnimétrique permettrait de mieux caractériser le fonctionnement hydraulique de ce cours d'eau, et d'associer les différents résultats d'analyses des eaux à un régime hydraulique donné.

Ruisseau du Ritord

Le ruisseau du Ritord se développe au sud de l'ancien site minier. À l'exception de rejets diffus correspondant à la percolation d'eau à travers d'anciens stériles miniers en bordure sud de la fosse « MCO-B », aucun exutoire pérenne des eaux de l'ancien site n'a été identifié. Le ruisseau du Ritord fait partie intégrante du suivi environnemental de l'ancien site minier, mais l'absence de rejet pérenne et ponctuel issu du drainage des eaux à travers les travaux miniers, l'exclut de la présente étude.

6.3.3 Station de traitement des eaux

Les eaux en provenance de l'exhaure minière sont traitées dans une station de traitement avant d'être rejetées dans le ruisseau du Fraisse pour être conformes aux seuils réglementaires, tandis que les eaux du drain localisé sous le bassin (conformes réglementairement) sont directement rejetées à l'amont du ruisseau du Fraisse. Le traitement des eaux avant leur rejet se base sur un procédé « actif » de coagulation/floculation permettant le traitement de l'uranium et du radium en suivant le processus suivant :

1. réception et stockage des eaux d'exhaure dans un bassin d'une capacité de 900 m³
2. pompage des eaux du bassin et refoulement vers la station de pompage sur une longueur d'environ 300 mètres et avec une Hauteur Manométrique Totale (HMT) d'environ 50 mètres (asservissement horodaté ou par poires de niveaux)
3. injection de sulfates d'aluminium et de chlorure de baryum dans une chicane de mélange (asservissement par le volume d'eau refoulé)

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 50/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

4. écoulement gravitaire à travers 3 lagunes de décantation en série (les boues de décantation sont régulièrement curées et envoyées dans un site de stockage adapté du fait de leur marquage radiologique).
5. rejet dans le ruisseau du Fraisse par l'intermédiaire d'une canalisation de surverse gravitaire d'une longueur d'environ 1 km, et d'une différence altimétrique d'environ 100 m

L'analyse du fonctionnement détaillé de la station de traitement, de l'optimisation des procédés de traitement, ou de son optimisation hydraulique, ne font pas parties des objectifs de cette étude.

6.4 Suivi environnemental – Évolution des concentrations en uranium

Le site fait l'objet d'un suivi environnemental sur un réseau de 6 points de surveillance, et pour lesquels seuls les suivis des eaux de l'exhaure (FRS1), du rejet (FRS2), du ruisseau du Fraisse (FRSB) et de la Couze (Aval Couze) sont concernés par le périmètre de l'étude (Cf. Figure 19).

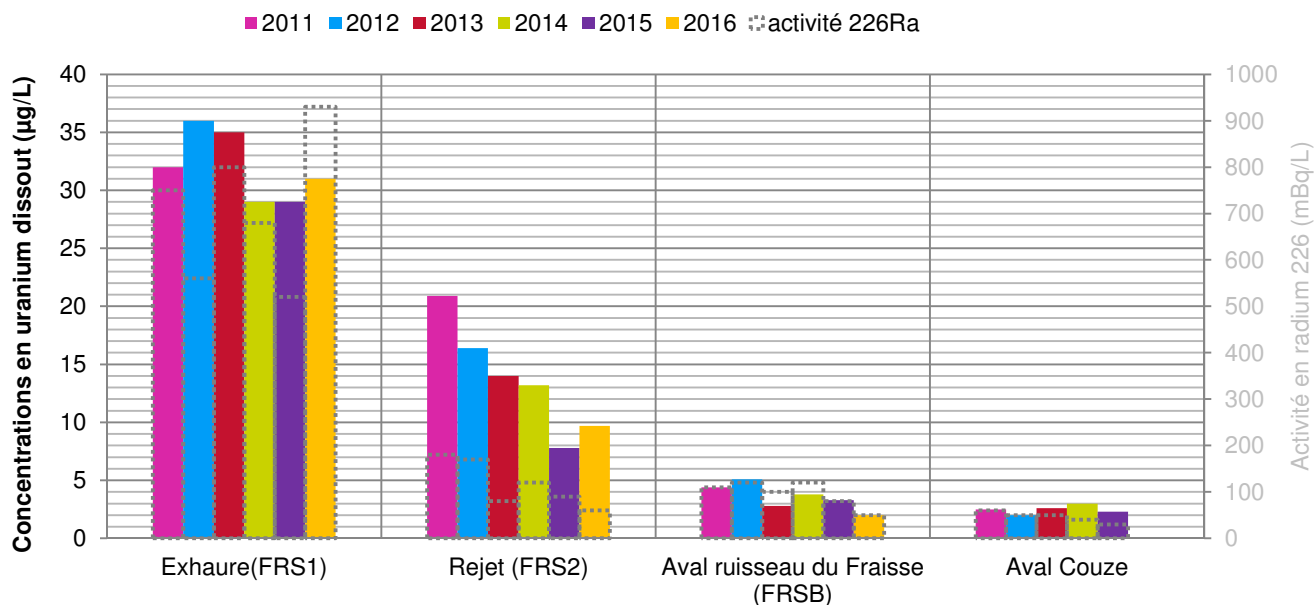


Figure 19 – Évolution des concentrations moyennes en uranium et de l'activité en radium 226 soluble des points de surveillance environnementale, de 2011 à 2016 (moyennes prenant en compte la suppression de valeurs mensuelles anormales en accord avec l'AMF : FRS1 24/12/2013 à 438 µg/L, FRS2 16/09/2016 à 168 µg/L)

Le profil de concentration constitué entre le point amont (exhaure, FRS1) et le point aval (Aval Couze) montre une nette diminution des valeurs en uranium dissout et en radium (Cf. Figure 19). La chronique présente des concentrations moyennes en uranium dissout comprise entre 29 à 36 µg/L dans les eaux d'exhaure, à une valeur de 8 à 21 µg/L en sortie de traitement, pour finalement atteindre une concentration stable de 2 à 5 µg/L dans les milieux récepteurs (Couze et ruisseau du Fraisse confondus entre 2011 et 2016).

D'après la chronique de suivi de la concentration en uranium dissout dans les eaux d'exhaure, aucune tendance claire ne peut être établie malgré la diminution des concentrations entre 2012 et 2015. Le rejet montre quant à lui une évolution à la baisse de l'ordre de 50 % en 5 ans avec des valeurs moyennes qui passent de 21 µg/L pour l'année 2011 à une concentration moyenne de l'ordre de 10 µg/L en 2016. En comparant les concentrations dans les eaux d'exhaure et celles au rejet, la nette diminution des concentrations indique la bonne efficacité de la station de traitement qui présente un abattement moyen d'environ 58 % entre 2011 et 2016.

6.4.1.1 Conformité réglementaire

Le rejet provenant du site du Fraisse est réglementé par l'arrêté du 96-459 du 20/12/1996 qui applique strictement les valeurs définies par le RGIE concernant les concentrations limites en uranium soluble et en radium 226.

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 51/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

Avec une concentration moyenne annuelle en uranium soluble comprise entre 22 et 8 µg/L depuis 2011 (confirmé par les prélèvements ponctuels du 06/07/2017 et du 09/08/2017 établissant respectivement une concentration de 5.8_(+/-0.71) µg/L et 5.1_(+/-0.55) µg/L d'uranium soluble) **le rejet respecte la valeur de concentration réglementaire en uranium soluble imposée à 1.8 mg/L.**

Avec une activité moyenne annuelle en radium 226 soluble inférieure à 180 mBq/L depuis 2011 (confirmé par les prélèvements ponctuels du 06/07/2017 et du 09/08/2017 établissant respectivement une activité de 40_(+/-16) mBq/L et 63_(+/-13) mBq/L), **le rejet respecte la valeur de concentration réglementaire en radium 226 soluble imposée à 0.37 Bq/L** (limite si traitement préalable du rejet).

6.5 Campagnes d'évaluation de la biodisponibilité

Pour anticiper une évolution de la réglementation et évaluer la biodisponibilité de l'uranium dans le milieu récepteur, le site a fait l'objet de campagnes de caractérisation des eaux de surface entre juillet et août 2017. Elles ont permis la réalisation de profils physico-chimiques sur les cours d'eau concernés et la réalisation d'une douzaine de points de prélèvements.

6.5.1 Méthodes de mesures et de prélèvements

6.5.1.1 Mesures physico-chimiques

Les mesures physico-chimiques ont consistés en la mesure de la température, du pH, de la conductivité, du redox, et de l'oxygène dissout pour chacun des points sélectionnés (à l'exception des points réalisés dans le cadre des profils physico-chimiques ou la mesure du redox n'a pas été réalisée). Chaque campagne de mesure a été précédée d'un étalonnage/contrôle préalable des différentes sondes en fonction des spécificités de leur fournisseur. Les valeurs de potentiel redox ont fait l'objet de corrections postérieures par rapport au potentiel de jonction mesuré (différence de la mesure par rapport à la valeur de référence) et les valeurs ont été normalisées selon une Électrode Normale Hydrogène (ENH) (Cf. Annexe 8.5.7, p 87).

Les paramètres retenus pour chacun des points de mesure résultent d'une analyse de l'évolution de ces paramètres relevés environ toutes les 2 minutes et sur des chroniques de temps supérieures à 15 minutes (à l'exception des mesures pour les profils physico-chimiques, où les chroniques de relevés sont comprises entre 5 et 10 minutes).

6.5.1.2 Prélèvements & échantillonnage

Chaque prélèvement a fait l'objet d'un échantillonnage et d'un conditionnement en respectant le processus suivant :

- 1) filtration selon une coupure de 0.2 µm (filtre seringue, ou bol de filtration) pour s'affranchir de la fraction particulaire et limiter au maximum la fraction colloïdale
- 2) acidification sur le terrain pour garantir la stabilité des échantillons avant analyse (acidification à l'acide nitrique pour les échantillons destinés à l'analyse des cations/radionucléides, et acidification à l'acide sulfurique pour les échantillons destinés à l'analyse du COT/ammonium)
- 3) conditionnement dans un flaconnage adapté (HDPE et verre ambré pour COT/ammonium) et paraffinage des bouchons
- 4) étiquetage des identifiants échantillons en redondance de leur identification au feutre indélébile
- 5) conservation au frais et à l'abri de la lumière avant dépôt au laboratoire d'analyses

6.5.1.3 Traçabilité & Standardisation des opérations

Un dispositif de traçabilité des mesures/prélèvements/observations a été mis en place par la constitution d'un ensemble de fiches signalétiques standards (Cf. Annexe 8.5.5, p 85) permettant un contrôle qualité postérieur (localisation et observations sur le point de prélèvement, étalonnage des sondes, relevés des paramètres physico-chimiques, identification des échantillons, paramètres de filtration/acidification, type de flaconnage, bordereau de remise des échantillons au laboratoire d'analyses, QAQC).

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 52/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

Pour standardiser les futures opérations et assurer la qualité de leur traçabilité, un manuel a par ailleurs été réalisé à l'issue des campagnes. Il détaille étape par étape l'ensemble des procédures de mise en œuvre d'une campagne de mesures et de prélèvements des eaux de surface.

6.5.1.1 Analyses

Les échantillons des deux campagnes de prélèvements ont été envoyés au laboratoire SEPA/SAN (AREVA) à Bessines-sur-Gartempe (87) pour une analyse des éléments regroupés dans le tableau suivant (Cf. Tableau 6).

Tableau 6 - Liste des analyses chimiques réalisées en laboratoire pour les campagnes de prélèvements sur le site du Fraisse

Groupes d'analyses	Éléments analysés
Cations majeurs + lithium	Ca, Mg, Na, K, Li
Métaux en traces	Sr, Mo, Cd, Cs, Ba, W, Ti, Pb, Bi, U, Al, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, As, Se
Radioactivité	U, ²²⁶ Ra
Anions & CIT	SO ₄ ²⁻ , Cl ⁻ , NO ₃ ⁻ , F ⁻ , SiO ₂ , NO ₂ , PO ₄ ³⁻ , CIT
COT, ammonium	COT, NH ⁴⁺

6.5.2 Profils physico-chimiques

6.5.2.1 Méthodologie

La réalisation d'un profil des paramètres physico-chimiques d'un cours d'eau permet de déterminer l'évolution longitudinale de ces paramètres de l'amont vers l'aval du cours d'eau, et d'identifier des changements dans la composition de ses eaux. Il permet ainsi d'identifier la présence d'éventuels rejets non identifiés, et d'adapter le cas échéant la campagne de prélèvements. La réalisation des profils physico-chimiques a consisté en la mesure des paramètres de température, de conductivité, de pH, et d'oxygène dissout. La méthode de mesure est identique à celle détaillée précédemment. Seule la chronique de mesure est raccourcie à une durée comprise entre 5 et 10 minutes pour des raisons pratiques. Les mesures physico-chimiques ont ainsi été réalisées sur 3 profils longitudinaux se développant dans le ruisseau du Fraisse, la Couze, et sur les installations de traitement des effluents miniers (Cf. Annexe 8.5.2, p 82).

- **Profil sur le ruisseau du Fraisse**

Les points de mesures physico-chimiques ont été réalisés de la confluence du ruisseau du Fraisse avec la Couze jusqu'à son extrême amont aux abords du site. Les points de mesures ont été réalisés à une fréquence régulière (en fonction des conditions d'accessibilité) et à l'aval de chacune des arrivées latérales identifiable (affluents ou rejets anthropiques). L'ensemble de ces arrivées latérales font également l'objet d'une mesure systématique de leurs paramètres physico-chimiques à l'amont de leur rejet dans le ruisseau du Fraisse. **Le profil des paramètres physico-chimiques sur le ruisseau du Fraisse représente 13 points de mesures répartis sur un linéaire total d'environ 2 km.**

- **Profil sur la Couze**

Les points de mesures physico-chimiques ont été réalisés de l'aval de la zone de mélange théorique estimée, jusqu'à l'amont de la confluence avec le ruisseau du Fraisse. Mis à part la confluence entre la Couze et le ruisseau du Fraisse, la section ne semble pas présenter d'arrivées latérales additionnelles. **Le profil des paramètres physico-chimiques sur la Couze représente 5 points de mesure répartis sur un linéaire total d'environ 500 m.**

- **Profil sur les installations de traitement des effluents miniers**

Les points de mesures ont été réalisés depuis le tuyau d'exhaure des eaux de drainage des anciennes activités minières, jusqu'au point de rejet dans le milieu naturel. **Le profil des paramètres physico-**

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 53/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

chimiques sur les installations de traitement représente 4 points de mesures répartis sur un linéaire total d'environ 1.5 km.

6.5.2.2 Analyse des profils longitudinaux

La représentation des profils longitudinaux se base sur un développement longitudinal de l'amont (fosse MCO-B) vers l'aval (Couze) en fonction de la distance estimée jusqu'au point mesuré le plus en aval (Cf. Annexe 8.5.4, p 84). Pour comprendre l'interdépendance hydrologique des différents profils, la confluence entre deux profils est représentée par une flèche (affluent > cours d'eau récepteur). De cette manière, l'échelle de valeur de chacun des paramètres est identique pour chacun des profils et permet de visualiser leur évolution spatiale. Cette représentation permet également d'identifier l'impact des différentes confluences sur les cours d'eau étudiés.

Conductivité

La conductivité moyenne des eaux prélevées s'élève à 126 $\mu\text{S}/\text{cm}$ et caractérise des eaux faiblement minéralisées représentatives d'un contexte granitique. Elle varie entre une valeur minimale de 50 $\mu\text{S}/\text{cm}$ pour les eaux hors influence minière (amont Couze et amont Ruisseau du Fraisse) à une conductivité maximale de 250 $\mu\text{S}/\text{cm}$ pour l'affluent en rive gauche du ruisseau du Fraisse. La conductivité des eaux de l'exhaure minière, du drain, et du rejet, sont relativement proches avec une valeur de l'ordre de 188 $\mu\text{S}/\text{cm}$ et caractérisent des eaux beaucoup plus minéralisées, qui peuvent s'expliquer par leur circulation au contact des anciens travaux miniers.

Le profil de conductivité montre assez clairement l'apport des eaux d'origine minière dans le milieu récepteur avec des profils de mélange à chacune des confluences, et une tendance à la dilution progressive par des apports latéraux de plus faible conductivité.

Oxygène dissout

La concentration moyenne en oxygène dissout dans la Couze, dans le ruisseau du Fraisse, et son affluent en rive gauche présente une concentration moyenne comprise entre 8 et 10 mgO_2/L caractérisant des eaux de surface proche de la saturation. À l'inverse, les eaux d'exhaure sont faiblement saturées avec une concentration de 2 $\text{mg O}_2/\text{L}$, caractérisant des eaux de nature souterraine. Avec une concentration en oxygène dissout de 6.8 $\text{mg O}_2/\text{L}$, les eaux en provenance du drain présente une saturation intermédiaire ne permettant pas d'établir clairement son origine (mélange avec des eaux de surface, fuite résiduelle sous le bassin, drainage préférentiel des eaux de la MCO-B?).

Redox

Les mesures de redox ont été réalisées uniquement sur les eaux prélevées et ne permettent pas de représenter des profils longitudinaux pertinents. Le potentiel redox des eaux prélevées est compris entre des valeurs minimum de 200 mV/ENH pour les eaux d'exhaure et du drain, pour des valeurs maximum de l'ordre de 420 mV/ENH pour les eaux de la Couze et à l'aval du ruisseau du Fraisse.

pH

Les eaux présentent un pH légèrement acide compris entre 6.0 et 7.0 qui sont représentatives d'un contexte géologique granitique. Les eaux d'exhaure et du drain présentent un pH compris entre 6.4 et 6.6, et leur rejet dans le ruisseau du Fraisse implique une augmentation importante du pH de ses eaux qui atteint la neutralité à l'aval du rejet.

Température

La température moyenne des eaux prélevées est de l'ordre de 16°C. Elle varie entre une température minimale de l'ordre de 10°C pour les eaux d'exhaure et une température maximale de l'ordre de 20°C pour les eaux en sortie de lagune de traitement. Les eaux du drain et de l'exhaure minière présentent une température comprise entre 10.5°C et 12.5°C. Le profil longitudinal de température des eaux dans le processus de traitement montre un réchauffement progressif des eaux d'exhaure par le passage successif dans des lagunes de décantation de faible profondeur, en passant d'une température de 10.5°C à l'exhaure à une température de 19°C en sortie de lagune.

Approche multiscalair dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 54/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

Les eaux de la Couze et du ruisseau du Fraisse présentent quant à elles une température moyenne de 16°C. L'évolution des températures sur le profil longitudinal permet d'identifier assez clairement l'apport d'eaux plus chaudes en provenance du rejet, dans le ruisseau du Fraisse, avec une augmentation de sa température de l'ordre de 1°C entre une température de 15.5°C et 16.5°C.

6.5.2.3 Signatures physico-chimiques des eaux

Les différents profils des paramètres physico-chimiques permettent d'établir la signature physico-chimique des eaux souterraines et des eaux de surface à proximité du site :

- la **nature souterraine** des eaux de l'exhaure minière se caractérise par une plus forte minéralisation (conductivité ~190 µS/cm), un milieu plus réducteur et acide (redox~200 mV/ENH et pH~6.5), plus anoxique (~1.5 mgO₂/L), et de plus faible température (~10°C). Les eaux du drain présentent un profil quelque peu semblable à celui des eaux de l'exhaure minière, mais sa saturation plus importante en oxygène (~7 mgO₂/L), son acidité moins marquée (pH~6.8), et sa température plus élevée (~12°C) ne permettent pas d'établir une origine commune.
- la **nature superficielle** des eaux de la Couze (éloignées d'un contexte minier) se distingue par une plus faible minéralisation (conductivité ~50 µS/cm), un milieu oxydant proche d'un pH neutre (redox~420 mV/ENH et pH~6.9), saturé en oxygène (~9.5 mgO₂/L), et de plus forte température (~17°C).

6.5.1 Prélèvements des eaux de surface

Au regard des résultats des différents profils physico-chimiques et des contextes de site, 4 groupes de prélèvements ont été constitués. Chacun de ces groupes de prélèvements répondent à un objectif précis dans la caractérisation des eaux du site (Cf. Tableau 7).

Tableau 7 – Dénomination et localisation des points de prélèvements

Prélèvements	Identifiant	Localisation	Objectifs
Triplet Ruisseau Fraisse / Couze	01 - Aval Couze	Sur la Couze, dans la Zone De Mélange avec le ruisseau du Fraisse	Comprendre l'impact du rejet sur la Couze (Masse d'eau considérée pour le site)
	02 - Amont Couze	Sur la Couze, à l'amont proche de la confluence avec le ruisseau du Fraisse	
	03 - Aval R. Fraisse	Sur le ruisseau du Fraisse, à l'amont proche de la confluence avec la Couze	
Triplet Rejet / Ruisseau du Fraisse (Influence Minière)	04 - ZDM Rejet / R. Fraisse	Sur le ruisseau du Fraisse, en aval du rejet	Comprendre l'impact du rejet dans le ruisseau du Fraisse
	05 - Amont Rejet / R. Fraisse	Sur le ruisseau du Fraisse, à l'amont proche du rejet	
	06 – Rejet	Sur le rejet, en sortie directe de tuyau	
Triplet Drain / Ruisseau du Fraisse (Hors Influence Minière)	07 - ZDM Drain / R. Fraisse	Sur le ruisseau du Fraisse, à l'aval de la confluence avec le ruisseau constitué par le drain	Comprendre l'impact du rejet du drain dans l'amont naturel du ruisseau du Fraisse
	08 - Amont R. Fraisse	Sur le ruisseau du Fraisse, à l'amont proche de la confluence avec le drain	
	09 - Aval drain	Sur le ruisseau constitué par le drain, à l'amont proche de la confluence avec le ruisseau du Fraisse	
Triplet Exhaure minière / Drain / Eau de MCO	10 - Drain sous bassin	Sur le drain, en sortie directe de tuyau	Comprendre l'éventuelle connexion entre les eaux de l'exhaure minière, le drain, et les eaux de drainage des activités minières
	11 - Exhaure minière	Sur l'exhaure, en sortie directe de tuyau	
	16 - MCO B	En bordure sud-est de la fosse MCO-B	

ZDM, Zone De Mélange considérée ; R. Fraisse, Ruisseau du Fraisse

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 55/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

6.5.2 Résultats d'analyse

6.5.2.1 Force ionique, électroneutralité

Les eaux prélevées sur le site du Fraisse présentent de faibles forces ioniques avec des facteurs de 10^{-3} à 10^{-4} caractérisant des eaux faiblement minéralisées (Cf. Annexe 8.5.10, p 89). Cette faible minéralisation peut expliquer en partie le déséquilibre d'électroneutralité des eaux de surface pour lesquels le pourcentage moyen d'erreur s'élève à 24 %. Ce pourcentage d'erreur est acceptable dans ce contexte d'eaux faiblement minéralisées et permet de considérer la validité des prélèvements et de leurs analyses.

Pour les eaux d'origine souterraine comme les eaux d'exhaure et celles du drain, le déséquilibre d'électroneutralité est beaucoup plus marqué avec des pourcentages d'erreurs respectifs de 45 % et de 62 %, marquant un excès de cations ou un déficit d'anions. La nature même des eaux d'origine souterraine prélevées en surface, avec un dégazage partiel du CO_2 , et sans remise à l'équilibre implique un déséquilibre calco-carbonique qui peut expliquer en partie cet écart.

6.5.2.2 Faciès hydrogéochimique

La classification des eaux selon le diagramme de Piper (Cf. Figure 20) montrent des eaux distribuées selon les pôles « calcium/sodium » et les pôles « chlorures/sulfates » avec les faciès hydrogéochimiques suivants :

- un faciès « chloruré-sodique » représentatif des eaux de surface sans influence minière immédiate (eaux de la Couze et section amont du ruisseau du Fraisse)
- un faciès « sulfaté-calcique » pour les eaux souterraines issues des anciens travaux miniers (exhaure, MCO-B, rejet, drain).

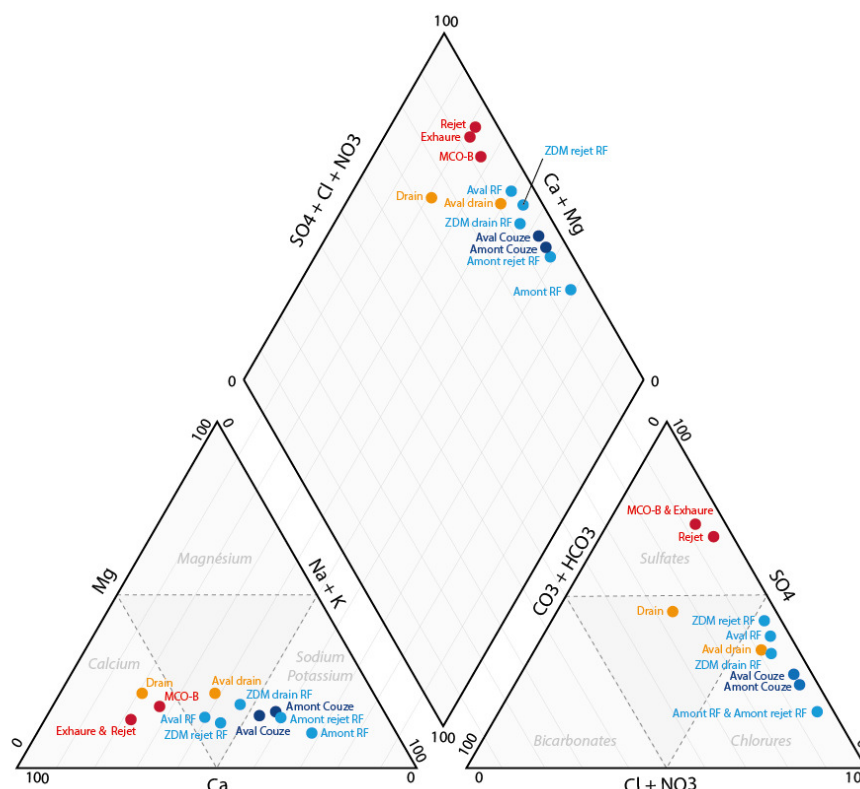


Figure 20 – Faciès hydrogéochimique des eaux prélevées sur le site du Fraisse selon le diagramme Piper

La différence de faciès entre ces eaux s'explique notamment par la signature hydrogéochimique des eaux souterraines. Celles-ci sont naturellement caractérisées par une plus grande concentration en CO_2 impliquant une plus grande acidité (acide carbonique) et ainsi une plus forte propension à mettre en solution les carbonates. Par ailleurs, les concentrations en sulfates peuvent s'expliquer par la présence

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 56/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

de sulfures de fer (pyrite, FeS_2) associés aux minéralisations uranifères en milieu réducteur, et qui se transforment notamment en sulfates au contact d'eaux météoriques oxydantes. Concernant la caractérisation des eaux d'origines souterraines, les différences de composition des eaux du drain par rapport à celle des eaux d'exhaure (pôle « bicarbonaté » plus exprimé que le pôle « sulfaté ») tendent à indiquer une origine différente de ces eaux malgré une localisation contiguë. Seule une campagne d'investigation par traçage permettrait de caractériser l'origine de ces écoulements et leur éventuel mélange.

La représentation selon le diagramme de Piper permet par ailleurs de mettre en évidence une droite de mélange entre les eaux de drainage des anciens travaux miniers et les eaux du milieu récepteur. On observe ainsi un déplacement de la composition des eaux à l'amont des milieux récepteurs initialement « chlorurées-sodiques », vers des eaux plus « sulfatées-calciques » du fait de leur mélange avec les rejets miniers.

6.5.2.3 Métaux en trace

Uranium

La concentration en uranium des eaux du site (Cf. Annexe 8.5.10, p 89) présente des valeurs comprises entre des valeurs minimales de l'ordre $1.3 \mu\text{g/L}$ (+/- 0.8) pour les eaux de la Couze et à l'aval du ruisseau du Fraisse, à une valeur maximale de $31 \mu\text{g/L}$ (+/- 3.6) pour les eaux de l'exhaure minière. La concentration en uranium au niveau du rejet présente une concentration de $5 \mu\text{g/L}$ (conformité réglementaire), et représente un abattement de près de 84 % entre les eaux en entrée et en sortie de station de traitement.

Aluminium

Les concentrations en aluminium sont naturellement élevées dans la Couze et à l'amont du ruisseau du Fraisse avec des concentrations respectives de $150 \mu\text{g/L}$ et de $81 \mu\text{g/L}$. Ces concentrations dépassent très largement la NQEp de $0.06 \mu\text{g/L}$ proposée par l'INERIS, mais sont caractéristiques du bruit de fond en contexte granitique per-alumineux dans lequel s'inscrit le site.

Baryum

Les eaux du rejet présentent de fortes concentrations en baryum (228 à $344 \mu\text{g/L}$) et impactent de façon notable les eaux du ruisseau Fraisse (environ $110 \mu\text{g/L}$ à l'aval du point de rejet). Ces fortes concentrations sont liées à l'utilisation de chlorure de baryum (BaCl_2) comme réactif de traitement du radium. Le dépassement de la NQEp de $58 \mu\text{g/L}$ proposée par l'INERIS est d'ailleurs à l'origine d'une réflexion sur l'arrêt du procédé de traitement actuel et son remplacement par un procédé alternatif.

Manganèse & Fer

Une forte concentration en manganèse s'observe au niveau du drain ($817 \mu\text{g/L}$), alors que les eaux à l'amont du ruisseau du Fraisse et de la Couze présentent des concentrations comprises entre 6 et $12 \mu\text{g/L}$. À l'amont du rejet la concentration élevée en manganèse ($380 \mu\text{g/L}$) peut s'expliquer par le rejet et le mélange des eaux du drain sur la section amont du ruisseau.

On retrouve par ailleurs des concentrations importantes en fer dissout dans les eaux souterraines avec des concentrations de l'ordre de 2.5 à 3.5 mg/L. Présent sous sa forme réduite dans les eaux souterraines (Fe^{+2}), il précipite en hydroxyde de fer (Fe^{+3}) en milieu oxydant (dépôts caractéristiques de couleur rouge observables dans les bassins, et dans le ruisseau du Fraisse).

6.5.3 Évaluation du Risque Écologique

6.5.3.1 Conformité aux Valeurs Guides Environnementales

La démarche d'évaluation graduée du risque écologique se base sur les processus décisionnels proposés par l'IRSN (Cf. Annexe 8.1.2, p72). Afin de comprendre les limites de cette approche et les difficultés de son application, l'ensemble de la démarche est balayée.

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 57/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

6.5.3.1.1 Masse d'eau considérée & Zone De Mélange

Selon le SDAGE Loire-Bretagne, la masse d'eau dont dépend le bassin versant du site correspond à « la Couze et ses affluents depuis la source jusqu'au complexe de Saint Pardoux », avec un objectif d'atteindre le bon état écologique et chimique du cours d'eau à l'horizon 2021 (conformité à la DCE/60/2000). Le SDAGE ne fait pas mention du ruisseau du Fraisse qui n'y est pas répertorié. **La masse d'eau se rattachant au site du Fraisse est donc constituée par la section amont de la Couze** (code FRGR0416a). À titre de comparaison, la méthode d'application des VGE est néanmoins appliquée en considérant le ruisseau du Fraisse comme masse d'eau réceptrice.

6.5.3.1.2 Bruit De Fond

En l'absence d'une étude concernant la détermination du bruit de fond (BDF) pour l'uranium dissout dans la région dans lequel s'inscrit le site du Fraisse, il est difficile d'établir unilatéralement un bruit de fond géochimique régional représentatif. Toutefois, la présence d'un point en extrême amont de la masse d'eau étudié, avec une chronique de suivi importante, et de surcroît hors influence minière, permet d'établir un bruit de fond géochimique de nature locale.

Le point considéré, identifié « MAZ A », fait partie intégrante du suivi réglementaire et se localise sur la Couze au niveau de l'étang « Pierre Millet » du lieu-dit « Le Mazeaud » (commune de Saint-Léger-la-Montagne, 87340). Ce point est considéré hors influence minière étant donné sa localisation en amont du point de rejet de l'ancienne mine d'uranium des Gorces, localisée sur la même commune.

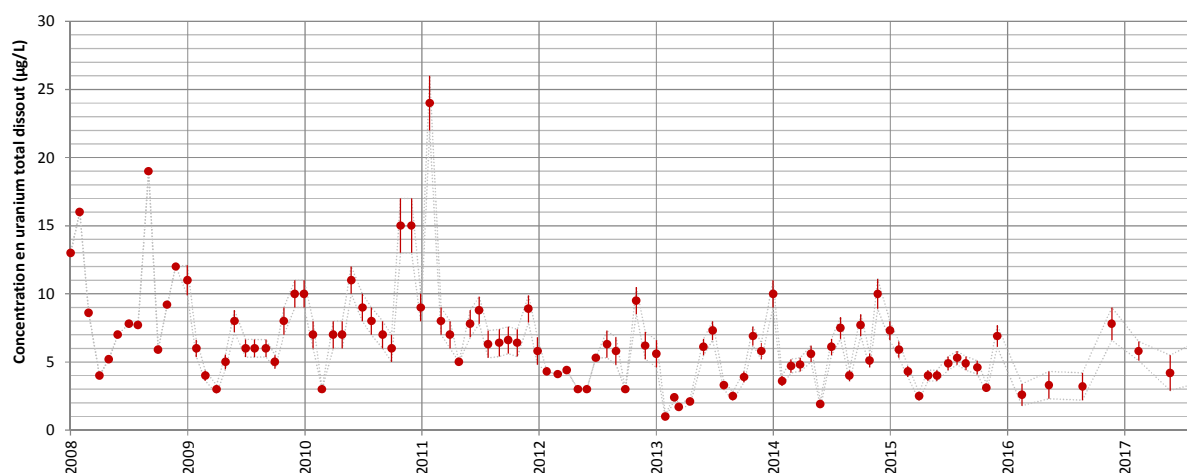


Figure 21 – Evolution de la concentration en uranium total dissout au point le plus extrême de la Couze (MAZ A) et considéré comme hors influence minière.

La chronique de mesure de la concentration en uranium total dissout remonte à 2008 et se compose de prélèvements de fréquence quasi mensuelle (Cf. Figure 21). Les valeurs de concentrations en uranium total dissout sont comprises entre 1 µg/L et 24 µg/L, et présentent une concentration moyenne de l'ordre de 6.5 µg/L pour une valeur médiane à 6.0 µg/L. Du fait du nombre important de valeurs disponibles, et pour s'affranchir des valeurs extrêmes pouvant modifier substantiellement la valeur moyenne à la hausse, **le bruit de fond local considéré pour la Couze se base sur la valeur médiane à 6.0 µg/L**. L'absence d'analyses plus exhaustives sur ce point ne permet pas d'évaluer la fraction biodisponible de l'uranium et son évolution selon cette chronique.



L'établissement du bruit de fond géochimique de l'uranium dissout dans les eaux est indissociable du processus d'application des VGE pour le suivi environnemental des rejets dans une masse d'eau et vérifier leur conformité. Sa définition est critique dans l'application de la VGE puisqu'il constitue la valeur de comparaison avec les eaux à l'aval d'un rejet. La définition de cette valeur doit être réalisée selon une méthodologie standard et approuvée. Le bruit de fond local défini par le point « MAZ A » ne peut prétendre à cette stricte définition. Il constitue uniquement un point de réflexion pour l'application de la VGE sur le site du Fraisse.

6.5.3.1.3 Application de la VGE générique

Le bruit de fond local considéré sur le point « MAZ A » en extrême amont de la Couze, et les points de prélèvement ponctuels du 09/08/2017 en amont direct des zones étudiées présentent des concentrations en uranium total dissout supérieures à la VGE_{générique} de 0.3 µg/L. D'après l'approche graduée proposée par l'IRSN, le dépassement naturel de la VGE générique implique une approche en Risque Ajouté (RA) et la prise en compte de la VGE de façon incrémentale au bruit de fond si celui-ci est connu (BDF+0.3 µg/L), ou l'application stricte de la VGE s'il n'est pas connu.

En suivant la méthodologie proposée par l'IRSN, trois cas peuvent donc être considérés en fonction de l'interprétation que l'on fait de la définition du bruit de fond (Cf.

Tableau 8):

- 1) **BDF_{local} défini par l'amont lointain (« MAZ A »), VGE = 6.3 µg/L**
= CONFORMITÉ des concentrations dans la Couze et le ruisseau du Fraisse
- 2) **BDF défini par l'amont proche**
Point unique sans chronique de suivi : applicable uniquement aux prélèvements à la même date, et non à des valeurs moyennes issues d'une chronique pluri-annuelle (différence d'échelle temporelle)
= CONFORMITÉ des concentrations dans la Couze et le ruisseau du Fraisse
- 3) **BDF inconnu, VGE = 0.30 µg/L**
= NON CONFORMITÉ des concentrations dans le ruisseau du Fraisse et de la Couze

Tableau 8 – Comparaison des différentes modalités d'application de la VGE sur le site du Fraisse selon la méthode d'application proposée par l'IRSN et de la définition du bruit de fond

PARAMÈTRES	Couze <i>Masse d'eau réglementaire</i>		Ruisseau du Fraisse	
	Suivi pluri-annuel	Plvmts. 09/08/2017	Suivi pluri-annuel	Plvmts. 09/08/2017
[Udissout] BDF _{local} « MAZ A »	6.0 µg/L <i>Point MAZA</i>	-	6.0 µg/L <i>Point MAZA</i>	-
[Udissout] amont proche	-	1.40 µg/L <i>Point 02-Amont Couze</i>	-	1.0 µg/L ⁽¹⁾ <i>Point 05-Amont RF</i>
VGE _{générique} <i>Approche du risque</i>	0.30 µg/L <i>Risque Ajouté</i>		0.30 µg/L <i>Risque Ajouté</i>	
[Utotal dissout] aval	2.5 µg/L <i>Point Couze Aval</i>	1.30 µg/L <i>Point 01-Aval Couze</i>	3.60 µg/L <i>Point Couze Aval</i>	2.10 µg/L <i>Point 04-ZDM Rejet/RF</i>
1) VGE _{BDF local} = 6.3 µg/L	CONFORME <6.3 µg/L	CONFORME <6.3 µg/L	CONFORME <6.3 µg/L	CONFORME <6.3 µg/L
2) VGE _{BDF amont proche} = 1.6 µg/L	NA	CONFORME <1.6 µg/L	NA	CONFORME =1.3 µg/L
3) VGE _{BDF inconnu} = 0.3 µg/L	NON CONFORME >0.3 µg/L (ou >1.0 µg/L selon GT)		NON CONFORME >0.3 µg/L (ou >1.0 µg/L selon GT)	

NA, Non Applicable : échelle temporelle différente entre le bruit de fond de l'amont proche de nature ponctuel, et le suivi-pluri annuel sur le point « Aval Couze » ou FRS B ; ⁽¹⁾ inférieur à la limite de détection de 1.0 µg/L

L'identification de trois cas de figure sur le site de Fraisse pour l'application du bruit de fond sur la VGE avec de résultats parfois contraires, démontre toute la difficulté d'appliquer cette méthodologie pour définir la conformité des rejets dans une masse d'eau réceptrice.

Étant donné l'absence d'étude validée par les agences publics concernant l'évaluation du bruit de fond dans le contexte régional dans lequel s'inscrit le site, l'interprétation la plus vraisemblable de la méthodologie proposée par l'IRSN est de **considérer un bruit de fond inconnu, avec une VGE_{BDF} équivalente à la VGE_{générique}**. Ceci implique la non-conformité des rejets dans la Couze et le ruisseau du Fraisse, et l'application de l'étape suivante d'évaluation par la méthode des VGE_{conditionnelles}.

Approche multiscalair dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 59/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

6.5.3.1.4 Application de la VGE conditionnelle

Dans la zone de mélange de la Couze, l'alcalinité calculée à partir de la concentration en CIT (Cf. Annexe 8.5.6, p 86) correspond à une concentration de 1.3 mg/L (HCO_3^-), le pH est acide avec une valeur de 6.9, et la concentration en Carbone Organique Dissout s'élève à 5.1 mg/L (équivalent à la Concentration en Organique Total analysé étant donné la filtration à 0.2 μm). Selon l'arbre de détermination le plus récent proposé par l'IRSN (Cf. Figure 6, p21), les eaux de la Couze appartiennent à la classe n°4, avec une alcalinité $\leq 75\text{mg/L}$ (HCO_3^-), un $\text{pH} \leq 7.5$, et une concentration en COD $\leq 6\text{ mg/L}$. La $\text{VGE}_{\text{conditionnelle}}$ de cette classe correspond à une valeur limite de concentration en uranium total dissout de 0.3 $\mu\text{g/L}$ (ou de 1 $\mu\text{g/L}$ selon l'arbre de détermination proposé dans le Guide Technique de gestion des anciennes mines d'uranium). **Avec une concentration de 1.40 $\mu\text{g/L}$, les eaux de la Couze ne sont pas conformes au critère de $\text{VGE}_{\text{conditionnelle}}$.**

Dans le ruisseau du Fraisse à l'aval du rejet, l'alcalinité présente une concentration de 2.6 mg/L (HCO_3^-), le pH est neutre avec une valeur de 7.0, et la concentration en Carbone Organique Dissout s'élève à 4.2 mg/L. Selon l'arbre de détermination, les eaux du ruisseau du Fraisse appartiennent à la classe n°4, avec une alcalinité $\leq 75\text{mg/L}$ (HCO_3^-), un $\text{pH} \leq 7.5$, et une concentration en COD $\leq 6\text{ mg/L}$. La $\text{VGE}_{\text{conditionnelle}}$ de cette classe correspond à une valeur limite de concentration en uranium total dissout de 3 $\mu\text{g/L}$. **Avec une concentration de 2.10 $\mu\text{g/L}$, les eaux du ruisseau du Fraisse ne sont pas conformes au critère de $\text{VGE}_{\text{conditionnelle}}$.**

Tableau 9 – Application de la $\text{VGE}_{\text{conditionnelle}}$ selon la méthode d'application proposée par l'IRSN

PARAMÈTRES	Couze <i>Masse d'eau réglementaire</i>		Ruisseau du Fraisse	
	Suivi pluri-annuel <i>Point Aval Couze</i>	Plvmts. 09/08/2017 <i>Point 01-Aval Couze</i>	Suivi pluri-annuel <i>FRSB</i>	Plvmts. 09/08/2017 <i>Point 04-Zdm Rejet/RF</i>
Alcalinité (mg/L HCO_3^-)	NA	1.3 mg/L < 75 mg/L	NA	2.6 mg/L < 75mg/L
pH	6.7	6.9 < 7.5	6.8	7.0 < 7.5
COD (mg/L)	NA	5.1 mg/L < 6 mg/L	NA	4.2 mg/L < 6 mg/L
$\text{VGE}_{\text{conditionnelle}}$	NA	0.30 $\mu\text{g/L}$ <i>Classe 4</i>	NA	0.30 $\mu\text{g/L}$ <i>Classe 4</i>
[Utotal dissout]	2.5 $\mu\text{g/L}$	1.40 $\mu\text{g/L}$	3.60 $\mu\text{g/L}$	2.10 $\mu\text{g/L}$
Conformité à la VGE conditionnelle	NA	NON CONFORME >0.3 $\mu\text{g/L}$	NA	NON CONFORME >0.3 $\mu\text{g/L}$

NA, Non Applicable : le suivi environnemental ne faisant pas mention des paramètres d'alcalinité et de COD nécessaires à l'application de l'arbre de détermination

6.5.3.1.5 Évaluation de la fraction biodisponible

Pour évaluer la fraction biodisponible de l'uranium sur les campagnes de prélèvements de juillet/août 2017, un calcul de spéciation de l'uranium a été réalisé par le code PHREEQC, en utilisant la base thermodynamique PRODATA (Cf. Annexe 8.5.9, p 88). Seules les 4 espèces biodisponibles définies par l'IRSN sont prises en compte dans le calcul de la fraction biodisponible. Les résultats des modélisations (Cf. Figure 22 et Annexe 8.5.11, p 90) font ressortir les éléments suivants:

- Une **concentration moyenne en uranium biodisponible d'environ 4 $\mu\text{g/L}$** sur l'ensemble des points prélevés, avec une valeur maximale de 23.40 $\mu\text{g/L}$ au niveau de l'exhaure minière, et une valeur minimale de 0.91 $\mu\text{g/L}$ à l'amont du rejet.
- Une **proportion molaire moyenne en uranium biodisponible d'environ 63 %** sur l'ensemble des points prélevés, avec une proportion minimale de 55 % pour les eaux de la fosse MCO-B, jusqu'à une proportion maximale de l'ordre de 70 % à l'amont du point de rejet, et sur le point val de la Couze.

Approche multiscalair dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 60/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

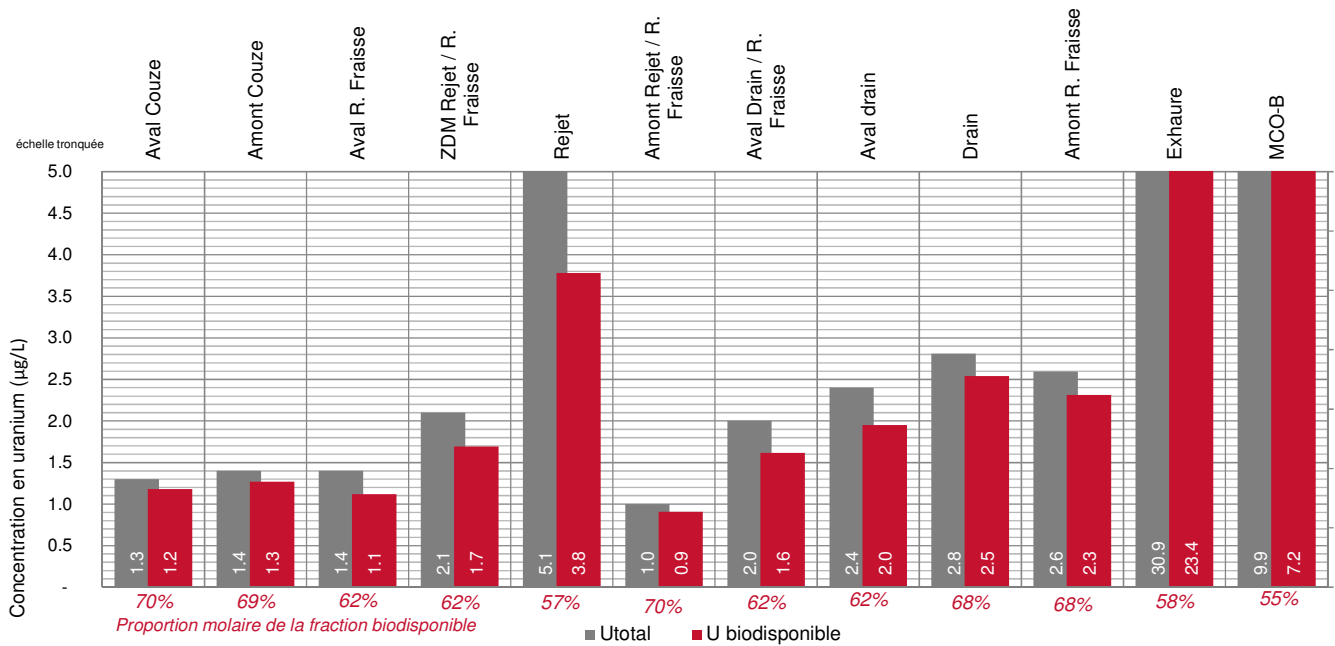


Figure 22 – Concentration en uranium dissout, en uranium biodisponible, et proportion molaire en uranium biodisponible pour les prélèvements d’eaux du 09/08/2017

6.5.3.1.6 Application de la VGEgénérique sur la fraction biodisponible

Les différences de concentration en uranium biodisponible en amont et en aval de la Couze et du ruisseau du Fraisse par rapport au rejet, et leur comparaison à la QS_{eau} de $0.3 \mu\text{g/L}$ établissent la **conformité des eaux de la Couze**, et la **non-conformité des eaux du ruisseau du Fraisse** (Cf. Figure 11).



La conformité réglementaire établie pour les résultats de la campagne du 09/08/2017 n’a de valeur que pour cette date. Seul un suivi régulier associé à des calculs de spéciation pourrait permettre de définir un critère de conformité pérenne. Cette approche impliquerait une modification du plan de suivi environnemental avec la mesure de paramètres physico-chimiques additionnels, et l’analyse d’éléments supplémentaires, nécessitant des besoins humains et financiers plus importants qu’ils conviendraient d’estimer.

Tableau 10 – Comparaison des concentrations en uranium biodisponible entre l’amont et l’aval des cours d’eau par rapport au rejet, et comparaison à la VGEgénérique

PARAMÈTRES	Couze <i>Masse d'eau réglementaire</i>		Ruisseau du Fraisse	
	Suivi pluri-annuel	Plvmts. 09/08/2017	Suivi pluri-annuel	Plvmts. 09/08/2017
[U biodisponible] amont	NA	1.27 µg/L <i>Point 02-Amont Couze</i>	NA	0.91 µg/L <i>Point 05-Amont rejet/RF</i>
[U biodisponible] aval	NA	1.18 µg/L <i>Point 01-Aval Couze</i>	NA	1.69 µg/L <i>Point 04-Zdm Rejet/RF</i>
VGEgénérique	NA	0.30 µg/L <i>Risque Ajouté</i>	NA	0.30 µg/L <i>Risque Ajouté</i>
Delta (amont-aval)	NA	-0.09 µg/L	NA	+0.78 µg/L
Conformité à la VGEgénérique	NA	CONFORME <0.3 µg/L	NA	NON CONFORME >0.3 µg/L

NA, Non Applicable : analyses du suivi pluri-annuel ne permettant pas de réaliser des calculs de spéciation de l’uranium

6.5.4 Étude hydrobiologique

Pour compléter l'approche graduée d'Évaluation des Risques pour les Écosystèmes (ERE), une étude hydrobiologique a été menée en juillet 2017 par le bureau d'étude MICA ENVIRONNEMENT afin de déterminer l'état écologique de la Couze et du ruisseau du Fraise, et évaluer l'éventuel impact des rejets sur ces milieux récepteurs.

L'étude s'est notamment attachée à la détermination d'un Indice Biologique Global (IBG « DCE ») sur les cours d'eau considérés. Cette méthode qui se base sur la sensibilité à la pollution des taxons (espèces) de macro-invertébrés présents dans le cours d'eau, permet d'établir une note de 0 à 20 caractérisant l'état écologique du milieu (0 pour le plus mauvais état à 20 pour le meilleur état).

Concernant la Couze, l'IBG ne montre pas d'impact significatif entre l'amont et l'aval de la confluence avec le ruisseau du Fraise. Le ruisseau du Fraise, quant à lui, se prête mal à l'évaluation d'un IBG du fait de sa configuration morphologique. L'évolution de l'indice IBG entre l'amont et l'aval du rejet ne permet pas de mettre en évidence une différence significative dans l'évolution de la qualité biologique entre ces deux stations.

D'après l'étude, les cours d'eau étudiés présentent les états écologiques suivants :

- Le ruisseau du Fraise présente un état écologique « Moyen ». Aucun impact avéré n'est observé concernant les paramètres physico-chimiques et les macro-invertébrés entre la station amont et aval au rejet.
- La Couze présente un « Bon » état écologique. L'impact de la confluence du ruisseau du Fraise dans la Couze est faible concernant les paramètres physico-chimiques et non significatif concernant les macro-invertébrés.

Selon les résultats de cette première étude hydrobiologique, la Couze constituant la masse d'eau du rejet, présente un « bon état écologique » et le rejet induit un « faible impact ».



La multiplication des campagnes d'évaluation de l'IBG sur ces cours d'eau permettraient de constituer une chronique de données pour suivre son évolution. Par ailleurs des indices complémentaires et plus sensibles comme l'Indice Biologique Diatomées (IBD) pourraient contribuer à la caractérisation de cet état écologique.

6.6 Synthèse des indicateurs

D'un point de vue réglementaire, le rejet des eaux de l'ancien site minier uranifère du Fraise est conforme à l'arrêté préfectoral qui lui est imposé (Cf.).

Dans un exercice de veille réglementaire et de conformité aux propositions de l'IRSN (engagements au titre du PNGMDR), l'étude des eaux dans les milieux récepteurs à l'aval du rejet montre qu'elles ne sont pas conformes à l'application de la VGE générique ($>0.3 \mu\text{g/L}$) et de la VGE conditionnelle ($>0.3 \mu\text{g/L}$). La non-conformité à ces critères impose (d'après la démarche graduée) la réalisation d'une étude sur la biodisponibilité spécifique au site. L'étude réalisée à partir de la campagne de prélèvements du 09/08/2017 montre la conformité des eaux de la Couze à la $QS_{\text{eau}} (\leq 0.3 \mu\text{g/L})$, mais pas pour celles du ruisseau du Fraise.

L'évaluation de l'état écologique de ces cours d'eau menée en juillet 2017 confirme par ailleurs un bon état écologique de la Couze avec un faible impact du rejet, et un état écologique moyen pour le ruisseau du Fraise mais avec un impact non avéré.

Approche multiscalair dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 62/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

Tableau 11 – Comparaison des critères réglementaires et de la démarche d’approche graduée d’Évaluation des Risques Écologiques sur les eaux concernées

PARAMÈTRES		Rejet	Couze	Ruisseau du Fraisse
Conformité réglementaire		CONFORME <1.8 mg/L	NA	NA
VGE proposées	VGE Générique	NA	NON CONFORME >0.3 µg/L	NON CONFORME >0.3 µg/L
	VGE conditionnelle	NA	NON CONFORME >0.3 µg/L (Classe n°4)	NON CONFORME >0.3 µg/L (Classe n°4)
	QSeau & Ubiodisponible	NA	CONFORME ⁽¹⁾ <0.3 µg/L	NON CONFORME >0.3 µg/L
Qualité physico-chimique et écologique	Qualité physico-chimique	NA	BON	BON
	Qualité écologique selon IBG DCE	NA	BON	MOYEN
	Impact du rejet	NA	FAIBLE	NON AVÉRÉ

NA, Non Applicable : critère réglementaire ou indicateur non adapté aux eaux concernées ; ⁽¹⁾ Conformité pour le jeu de données ponctuelles étudié (campagne 09/08/2017) - ne caractérise pas une conformité extrapolable à l'échelle annuelle.

6.6.1 Limites & prospectives

L'application de la méthode d'Évaluation du Risque Écologique proposé dans le Guide Technique de gestion des anciennes mines d'uranium et reprenant la démarche de l'IRSN montre des limites quant à l'application de la VGE générique et conditionnelle :

- la définition du Bruit de fond est essentielle pour caractériser la conformité à la VGE générique et implique une forte sensibilité dans le résultat de la conformité de ces eaux. Ce bruit de fond ne peut pas être défini unilatéralement selon des données locales (chroniques d'analyses en amont), mais doit faire l'objet d'une étude méthodologique à l'échelle régionale.
- l'utilisation de l'arbre de détermination pour estimer la fraction biodisponible en fonction de classes d'eau prédéfinies n'est pas forcément représentative d'eaux de surface en contexte minier (les données du FOREGS utilisées par l'IRSN pour constituer ces classes ne sont pas suffisamment représentatives de ces domaines).
- l'évaluation de la biodisponibilité de l'uranium sur un jeu de données ponctuelles ne peut permettre d'établir une conformité pérenne. La mise en place d'un programme de suivi environnemental adapté au calcul de spéciation des espèces de l'uranium doit être mise en place pour constituer une chronique de données et valider ou non sa conformité à la valeur guide.
- les incertitudes de mesure liée à la mesure de l'uranium, de l'ordre de 1 µg/L, pour les eaux concernées impliquent de fortes incertitudes dans la démarche (VGEc de 0.3 µg/L ou 1 µg/L, QSeau à 0.3 µg/L).

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 63/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

7 Conclusion et perspectives

Les anciens sites miniers uranifères français sont réglementés depuis 1980 par le RGIE en respectant une concentration maximale de 1.8 mg/L d'uranium dissout au rejet. Cette réglementation ne prend pas en compte la sensibilité du milieu récepteur. Depuis 2000, les différentes Directives Cadre sur l'Eau (DCE) ont impulsé une rénovation du cadre réglementaire et des méthodes allouées à la qualité des eaux, avec l'objectif d'atteindre un bon état écologique des cours d'eau à l'horizon 2021. Seulement, par manque de connaissances, l'uranium est encore exempté de toute Norme de Qualité Environnementale réglementant sa concentration dans le milieu naturel.

« une réglementation en pleine évolution »

De ce fait, les pouvoirs publics français ont engagés des groupes de travail concernant la définition de limites écotoxicologiques pour l'uranium. Les travaux réalisés par l'IRSN ont aboutis à la proposition d'une démarche graduée d'Évaluation du Risque sur les Écosystèmes (ERE) qui se base sur une approche décisionnelle séquencée : 1) la conformité des eaux à une VGE_{générique} sur l'uranium de 0.3 µg/L ; 2) la conformité des eaux à une VGE_{conditionnelle} sur l'uranium comprise entre 0.3 et 30 µg/L caractérisant la biodisponibilité de l'uranium en fonction de la composition physico-chimique des eaux ; 3) l'évaluation de l'état écologique des cours d'eau par des études hydrobiologiques normées.

« vers une prise en compte de la biodisponibilité et du bruit de fond »

L'application de ces valeurs guides est pourtant difficile en contexte minier compte tenu des incertitudes de mesures de l'uranium en solution, de la faible représentativité des VGE_{conditionnelles}, d'une liste d'espèces biodisponibles de l'uranium encore trop peu exhaustive, mais également de la difficulté à établir un bruit de fond applicable localement. L'abandon de cette méthode est envisagé par le

ministère de l'environnement (MDDE) lors de la parution très prochaine du Guide Technique sur la gestion des anciennes mines d'uranium. Il proposerait en remplacement, une évaluation de l'impact des rejets uniquement selon des méthodes d'investigations hydrobiologiques permettant de caractériser l'état écologique des cours d'eau et de son évolution (IBG, IBD etc.). Il n'empêche que les travaux réalisés par l'IRSN jusqu'ici vont dans le sens d'une réglementation plus restrictive, entérinant la notion de biodisponibilité avec toute sa complexité, et prenant en compte la notion de bruit de fond géochimique, et pour lesquels un opérateur comme AREVA se doit d'anticiper en vue d'une future évolution de la réglementation.

L'étude conjointe AREVA/CEA, concernant la répartition de l'uranium dissout et de sa fraction biodisponible à partir des données de l'atlas géochimique européen, va dans le sens d'une meilleure compréhension de la distribution de l'uranium biodisponible dans les cours d'eau de surface. Elle a permis par la modélisation de la spéciation de l'uranium dans près de 808 cours d'eau, d'établir des tendances dans son bruit de fond géochimique. L'uranium présente en effet un comportement géochimique peu commun caractérisé par une plus grande solubilité en milieu oxydant qu'en milieu réducteur. Sa fraction biodisponible est quant à elle plus importante en contexte acide qu'en contexte alcalin. On retrouve ainsi un comportement dichotomique entre sa concentration totale dissoute et sa fraction biodisponible en fonction du contexte géologique dans lequel s'inscrit le cours d'eau : les eaux en milieu cristallin, moins minéralisées et de pH plus acide, présentent une concentration moyenne en uranium dissout dans les eaux plus faibles, et une concentration moyenne en uranium biodisponible plus importante ; les eaux en milieu sédimentaire, plus minéralisées et de pH plus basique, présentent une concentration moyenne en uranium dissout dans les eaux plus fortes, et une concentration moyenne en uranium biodisponible moins importante.

« un bruit de fond régional peu applicable à l'échelle locale »

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 64/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

L'échelle de cette étude ne permet pas d'appliquer directement ces résultats à une échelle locale requise pour la définition de la vulnérabilité du passif minier français. Ces sites, sous la responsabilité d'AREVA, sont l'héritage de l'exploitation de l'uranium depuis 1950, et ayant abouti à l'extraction de près de 76 000 tonnes d'uranium. Les différents rejets qui peuvent se produire sur ces sites sont principalement liés à un noyage des anciens travaux miniers provoquant à leur contact une modification de la composition chimique et radiologique des eaux. Avec pas moins de 250 sites répartis sur le territoire français, le passif minier uranifère présente des niveaux de risques variables pour l'environnement en fonction de la présence de rejets (environ 40 sites), de la nature de ceux-ci, de leur traitement (15 sites), mais également de la sensibilité du milieu récepteur. Ces sites font l'objet d'un suivi environnemental en fonction des contraintes réglementaires, mais ils ne se conforment qu'aux demandes réglementaires en ne concernant qu'une petite quantité de paramètres (U, Ra, pH, DCO, MES, et métaux en trace). L'absence d'analyses exhaustives, notamment sur les éléments majeurs des eaux en aval des rejets ne permet pas de déployer un outil d'évaluation de la fraction biodisponible de l'uranium.

Pour se conformer à la démarche graduée d'Évaluation des Risques sur les Écosystèmes, AREVA a donc engagé par le biais du département de l'Après Mine France de nombreuses études sur ses différents sites prioritaires afin de vérifier leur conformité. Sur les 17 sites pour lesquels une VGE_{conditionnelle} a pu être établie (en prenant en compte les campagnes ponctuelles du département R&D), seuls 7 sites sont jugés conformes à cette valeur. La majeure partie des sites non conformes se localisent en effet en contexte cristallin, avec des eaux peu minéralisées de pH acide, et présentant ainsi les VGE les plus contraignantes. Pourtant les études réalisées par le département R&D sur certains de ces sites non conformes vis-à-vis de la VGE_{cond.} (Bois-Noirs, Hyverneresse, Lombre Cerilly, et Le Fraisse), démontrent par les modèles de spéciation que les concentrations en uranium biodisponible sont largement conformes à la QS_{eau} de 0.3 µg/L. Il en est de même pour les sites dont la conformité vis-à-vis de la VGE était déjà établie. La représentativité des VGE_{cond.} aux contextes miniers est donc largement discutable, probablement à l'origine de la défiance du ministère de l'environnement à l'application d'une telle méthodologie.

**« la VGE_{cond.}
non adaptée en
contexte minier »**

**« une veille
technique et
réglementaire
nécessaire »**

AREVA doit rester cependant proactive sur ces sujets, en poursuivant les études concernant la caractérisation de la biodisponibilité de l'uranium sur ses sites, et envisager une application de la QS_{eau}. Cette démarche doit être priorisée en fonction des enjeux de chacun des sites. La transposition des différents résultats sur le bruit de fond, et des campagnes de caractérisation des VGE sur les sites, indiquent que les sites localisés dans le Massif Central,

le Morvan, ou en Bretagne présentent des concentrations en uranium biodisponible potentiellement élevés et doivent être étudiés en priorités s'ils représentent des enjeux (présence ou non de rejet), à l'inverse des sites aux concentrations en uranium biodisponible potentiellement moins élevées localisées en Vendée, ou encore dans les Cévennes. Par ailleurs, le souhait d'étudier la biodisponibilité à plus large échelle sur l'ensemble des sites disposant d'un suivi environnemental nécessiterait des moyens supplémentaires d'analyses et de calculs de spéciations qui doivent être réalisés de façon régulière, pour caractériser son évolution.

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 65/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

Références bibliographiques

- [1] BEAUGELIN-SEILLER and al. IRSN. «*Is enough information available to derive an overall EQS for uranium in French freshwater, according to European guidance?*», Springer, 1905. 9 p.
- [2] BEAUGELIN-SEILLER. «*Bruit de fond géochimique de l'uranium dans les eaux de rivière de métropole*», IRSN, 2012. 48 p. Réf. IRSN/PRP-ENV/SERIS/2012-00024.
- [3] BEAUGELIN-SEILLER. «*Empoisonnement secondaire par l'uranium en milieu aquatique continental*», IRSN, 2013. 24 p. Réf. IRSN/PRP-ENV/SERIS/2013-00030.
- [4] BEAUGELIN-SEILLER. «*Prise en compte de l'influence de la spéciation chimique de l'uranium dans l'analyse de ses effets écotoxiques en eau douce*», IRSN, 2009. 54 p. Réf. DEI/SECRE/2009-0038.
- [5] BURGEAP. «*Étude environnementale sur le site du Fraisse*», 2006. 8 p.
- [6] CADORET. «*Étude sur les rejets diffus. Division minière de la Crouzille*», AREVA, 2009. 71 p.
- [7] CADORET. «*Surveillance environnementale du site du Fraisse (87), bilan des contrôles 2011-2015*», AREVA, 2016.
- [8] CEMAGREF, «*Appui scientifique à la mise en œuvre de la DCE sur l'eau. Typologie des cours d'eau de France métropolitaine*», 2006. 62 p. Réf. CV 03000102.
- [9] Comité de bassin Loire-Bretagne. «*Schéma Directeur d'Aménagement et de Gestion des Eaux 2016-2021*», 2015.
- [10] CROTEAU and al. USGS. «*Biochemical controls of uranium bioavailability from the dissolved phase in natural freshwaters*», Environmental science & technology, 2016. 8 p.
- [11] DENISON. «*Spéciation de l'uranium (VI), modélisation, incertitude et implication pour les modèles de biodisponibilité, application à l'accumulation dans les branchies chez un bivalve d'eau douce*», Thèse d'état, 2005. 349 p.
- [12] FÉVRIER, BEAUGELIN-SEILLER, GILBIN. «*PNECeau chroniques et aiguës pour l'uranium: valeurs génériques et conditionnelles aux domaines physico-chimiques des eaux douces françaises*», IRSN, 2013. 72 p. Réf. IRSN/PRP-ENV/SERIS/2013-00041.
- [14] FÉVRIER, GILBIN. «*Proposition de valeurs de PNECeau de l'uranium conditionnelles à des domaines physico-chimiques représentatifs des eaux douces françaises*», IRSN, 2015. 101 p. Réf. IRSN/PRP-ENV/SERIS/2014-00028.
- [15] FOREGS. «*Geochemical Atlas for Europe*» [en ligne] [consulté le 20/06/2017] <<http://weppi.gtk.fi/publ/foregsatlas/>>
- [17] GEP, «*Mission complémentaire du groupe d'expertise pluraliste sur les sites miniers d'uranium*», 2013. 84 p.
- [18] GEP, «*Recommandations pour la gestion des anciens sites miniers d'uranium en France. Des sites du Limousin aux autres sites du court au moyen et long termes* », 2010. 196 p.
- [19] GIBEAUX, DELHOUME. «*Bilan d'étape sur la gestion des stations de traitement des eaux d'anciens sites miniers uranifères français*», AREVA, 2015. 282 p. Réf. BES-DIAM-GSF-RAP-0051.
- [20] GIBEAUX, DELHOUME. «*Les procédés de traitement des eaux utilisées sur les sites miniers uranifères français - Journées techniques SFRP*», AREVA, 2014. 18 p.
- [21] IELSCH. «*Estimation and mapping of uranium content of geological units in France*», Journal of environmental radioactivity, 2017. 10 p. Réf. 166 (2017) 210-219.
- [22] INERIS, «*Méthodologie utilisée pour la détermination de normes de qualité environnementale (NQE)*», 2011. 36 p. Réf. DRC-11-118981-08866A.
- [23] IRSN, «*Fiche radionucléide. Uranium naturel et environnement*», 2001. 16 p.

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 66/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

- [24] IRSN, «*Inventaire national des sites miniers d'uranium, version 2*», 2007. 322 p
- [25] IRSN, «*Valeur Guide Environnementale (VGE) et valeurs de référence spécifiques (QS) pour l'uranium*», 2015. 28 p. Réf. IRSN/PRP-ENV/SERIS/2015-004.
- [26] KERN and al. (AREVA). «*Environmental Monitoring System EXPR*», AREVA, 2017. 76 p. Réf. Project 6908.
- [27] LARTIGUE. «*Étude de sensibilité aux calculs géochimiques de la spéciation aqueuse de l'uranium dissout dans les eaux de surface européennes (base FOREGS)*», CEA, 2015. 10 p.
- [29] MATHEWS and al. IRSN. «*A probabilistic assessment of the chemical and radiological risks of chronic exposure to uranium in freshwater ecosystems*», Environmental science & technology, 2009. 7 p.
- [30] MINISTERE DE L'ECOLOGIE ET DU DEVELOPPEMENT DURABLE. «*Circulaire 2007-23 définissant les "normes de qualité environnementale provisoires (NQE_p)" des 41 substances impliquées dans l'évaluation de l'état chimique des masses d'eau ainsi que des substances pertinentes du programme national de réduction des substances dangereuses dans l'eau*», LÉGIFRANCE, 2007. 15 p. Circulaire 2007/23.
- [31] MINISTERE DE L'ECOLOGIE ET DU DEVELOPPEMENT DURABLE. «*Circulaire DCE 2005-12 relative à la définition du "bon état" et à la constitution des référentiels pour les eaux douces de surface (cours d'eau, plans d'eau), en application de la directive européenne 2000/60/DCE du 23 octobre 2000, ainsi qu'à la démarche à adopter pendant la phase transitoire (2005-2007)*», LÉGIFRANCE, 2005. 17 p. Circulaire DCE 2005/12.
- [32] MINISTERE DE L'ENVIRONNEMENT, DU DEVELOPPEMENT DURABLE, ET DE L'ENERGIE, «*Guide Technique de la gestion des anciennes mines d'uranium*», version 2015 (projet non publié). 86 p.
- [33] MINISTERE DE L'INDUSTRIE ET DE L'AMENAGEMENT DU TERRITOIRE, FAUROUX. «*Circulaire du 9 mars 1990 relative au règlement général des industries extractives*», LÉGIFRANCE, 1990. 5 p. Réf. INDD8901050C.
- [34] MINISTERE DE L'INDUSTRIE ET DE L'AMENAGEMENT DU TERRITOIRE, FAUROUX. «*Décret n°90-222 du 09 mars 1990 complétant le règlement général des industriels extractives institué par le décret n°80-331 du 7 mai 1980*», LÉGIFRANCE, 1990. 6 p. Réf. INDD8901050D.
- [35] MINISTERE DE L'INDUSTRIE, GIRAUD. «*Décret n°80-331 du 7 mai 1980 portant règlement général des industries extractives*», LÉGIFRANCE, 1980. Décret 1980/331
- [36] MORTUREUX. «*Avis de l'AFSSA relatif à la détermination d'une exigence de qualité en uranium pondéral dans les eaux destinées à la consommation humaine*», AFSSA, 2010. 23 p. Réf. 2008-A-0380.
- [37] NIPHE and al. «*Water quality standard for uranium*», NIPHE, 2014. 92 p. Réf. 270006003/2014.
- [39] OMS, «*Guidelines for drinking-water quality, fourth edition*», 2011. 564 p. Réf. 9789241548151.
- [41] PARLEMENT EUROPEEN. «*Directive 2008/105/CE établissant des normes de qualité dans le domaine de l'eau*», EURLEX, 2008. 11 p.
- [42] PHROMMAVANH, GIBEAUX. «*Biodisponibilité des contaminants en contexte minier, revue bibliographique*», AREVA, 2013. 123 p. Réf. AMS-DEXP-DRD-RT-0009.
- [43] PHROMMAVANH. «*Caractérisation géochimique des eaux et estimation de la biodisponibilité de U, 226RA et élément en trace en aval d'anciens sites miniers français*», AREVA, 2015. 63 p. Réf. AMS-DOP-DRD-RT-0007.
- [44] SENEZ. «*Recueil et synthèse de données pour le déploiement de solutions de traitement des eaux sur d'anciens sites miniers d'uranium en réponse à l'évolution réglementaire*», AREVA, 2014. 181 p. Réf. AMS-DEXP-DRD-RT-0041.
- [45] VERCOUTER, and al. CEA. «*A modelling exercise on the importance of ternary alkan earth carbonate species of uranium (+VI) in the inorganic speciation of natural water*», CEA/IRSN, Applied Geochemistry, 2014. 7 p.

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 67/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

Liste des acronymes

AFSSA, l'Agence Française de Sécurité Sanitaire des Aliments

AMF, Après-Mine France, département appartenant à la direction DSIT AREVA

ANSES, Agence nationale de Sécurité Sanitaire de l'Alimentation, de l'environnement et du travail

ASN, Autorité Sureté Nucléaire

BDF, Bruit De Fond

CEA, Commissariat à l'Énergie Atomique

CFMU, Compagnie Française des Minerais d'Uranium ayant exploité des mines d'uranium en Lozère

CIT, Carbone Inorganique Total

COGEMA, Compagnie Générale des Matières nucléaires, ayant exploité la majeure partie des mines d'uranium françaises, et intégrée depuis 2001 dans AREVA

COT, Carbone Organique total

DCE, Directive Cadre Européenne

DGT, Diffusive Gradient in Thin films

DSIT, Direction Sécurité et Intégration dans les Territoires, AREVA

EXPR, EXPertise Radioprotection

FGN, Fond Géochimique Naturel

FOREGS, *Forum of the European Geological Surveys*

IBG, Indice Biologique Global

INERIS, Institut National de l'Environnement et des Risques Industriels

IRSN, Institut de Radioprotection et de Sureté Nucléaire,

ISR, *In-Situ Recovery*

LEMA, Loi sur l'Eau et les Milieux Aquatiques,

MCO, Mine à Ciel Ouvert

MIMAUSA (inventaire), Mémoire et Impact des Mines d'urAniUm, Synthèse et Archives réalisé par l'IRSN de 2003 à 2007

MSNR, Mission de Sureté Nucléaire et de Radioprotection

NA, Non Applicable

NGF, Niveau Géographique Français

NQE, Normes de Qualité Environnementale (*EQS, Environmental Quality Standard*)

NQEp, Normes de Qualité Environnementale Provisoire

PLM, *Permeation Liquid Membrane*

PNEC, voir QS

QS, norme de Qualité Spécifique à un compartiment (*QS, Quality Standard*), anciennement PNEC (Predicted Non Effect Concentration)

RA, Risque Ajouté

RGIE, Règlement Générale de l'Industrie Extractive

RT, Risque Total

SAN, laboratoire d'analyse du SEPA

SCUMRA, Société Centrale de l'Uranium et des Minerais Radioactifs ayant exploité des mines d'uranium dans le Cantal

SEPA, Service Étude Pilotes Analyses

SIMURA, Société Industrielle et Minière ayant exploité des mines en Bretagne

TMS, Travaux Miniers Souterrains

Ub4, uranium biodisponible selon 4 espèces identifiées selon l'IRSN

Ub6, uranium biodisponible selon 6 espèces (4 espèces identifiées selon l'IRSN, et 2 espèces anioniques supplémentaires)

USGS, *United States Geological Survey*

VGE, Valeur Guide Environnementale

VGE, Valeur Guide Environnementale

VGE_{cond.}, Valeur Guide Environnementale conditionnelle

VGE_{gén.}, Valeur Guide Environnementale générique

VGE_{gén.BDF}, Valeur Guide Environnementale générique ajouté du Bruit De Fond

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 68/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

Liste des figures

Figure 1 - Chaîne de décroissance radioactive de l'isotope ^{238}U – IRSN.....	7
Figure 2 - Carte de la production mondiale en uranium – AREVA, rapport annuel 2016.....	9
Figure 3 - Diagramme de Pourbaix de l'uranium en contexte minier et selon la limite réglementaire de rejet (1.8 mg/L). En gris, le domaine de prédominance pour l' U^{IV} ; en jaune, le domaine de prédominance pour l' U^{VI} ; en hachuré, les domaines relatifs aux phases solides – Descostes et al., 2011	10
Figure 4 –Illustration de la spéciation d'une substance M en milieu aquatique et son interaction potentielle avec les sites réactifs biologiques –ligands, L– situés sur les membranes cellulaires - PHROMMAVANH.....	12
Figure 5 – Illustrations de dispositifs de mesure in-situ utilisant un gel de diffusion et un dispositif de capture par résines. A gauche, vue éclatée d'un DGT (Leermarker) ; à droite, schéma de principe d'une moule artificielle (Kibria).	14
Figure 6 - Arbre de détermination des PNECeau conditionnelles de l'uranium à différents domaines physico-chimiques (IRSN, modifié selon proposition GT 2015).....	21
Figure 7 – Évaluation cartographique des teneurs naturelles en uranium dans les formations géologiques de France, à droite. Cartographie des grands districts uranifères, à gauche - Ielsh and al.	25
Figure 8 - Répartition des faciès hydrogéochimique des eaux du FOREGS selon la classification de piper. À gauche, répartition de l'ensemble des points du FOREGS; à droite, répartition en fonction du contexte géologique.	28
Figure 9 – Répartition du pH moyen en fonction du contexte géologique des points de prélèvements du FOREGS.....	29
Figure 10 - Répartition de la concentration moyenne en uranium dissout en fonction du contexte géologique des points de prélèvement du FOREGS.....	30
Figure 11 – Classement des concentrations moyennes en uranium dissout des différents faciès hydrogéochimiques des points de prélèvement du FOREGS.....	31
Figure 12 - Répartition de la teneur moyenne en uranium biodisponible dissout en fonction du contexte géologique des points de prélèvement du FOREGS.....	32
Figure 13 - Répartition de la concentration moyenne en uranium biodisponible (Ub_4 et Ub_6) en fonction du contexte géologique des points de prélèvement du FOREGS.....	34
Figure 14 – Répartition de la proportion moyenne en uranium biodisponible (Ub_4 et Ub_6) en fonction du contexte géologique des points de prélèvement du FOREGS.....	34
Figure 15 – Classement des concentrations moyennes en uranium biodisponible (Ub_4 et Ub_6) des différents faciès hydrogéochimiques des eaux du FOREGS.....	35
Figure 16 – Répartition des concentrations moyennes en uranium total et biodisponible en fonction du pH, et selon le contexte géologique.....	36
Figure 17 - Carte des différentes stations de traitement sur les anciens sites miniers uranifères français (Gibeaux 2015)	40
Figure 18 - Cartographie des points de prélèvements ayant fait l'objet d'une caractérisation de la VGE_{cond} . (pentagones : points FOREGS ; cercles : sites AREVA). En rouge, la VGE de classe 4, en jaune la VGE de classe 2, en vert, la VGE de classe 1). 45	45
Figure 19 – Évolution des concentrations moyennes en uranium et de l'activité en radium 226 soluble des points de surveillance environnementale, de 2011 à 2016 (moyennes prenant en compte la suppression de valeurs mensuelles anormales en accord avec l'AMF : FRS1 24/12/2013 à 438 $\mu\text{g/L}$, FRS2 16/09/2016 à 168 $\mu\text{g/L}$).....	51
Figure 20 – Faciès hydrogéochimique des eaux prélevées sur le site du Fraisse selon le diagramme Piper	56
Figure 21 – Evolution de la concentration en uranium total dissout au point le plus extrême de la Couze (MAZ A) et considéré comme hors influence minière.....	58
Figure 22 – Concentration en uranium dissout, en uranium biodisponible, et proportion molaire en uranium biodisponible pour les prélèvements d'eaux du 09/08/2017	61
Figure 23 - Logigramme présentant le contenu des différentes étapes successives pour l'application de l'ERE (MEDDE, 2014).....	71
Figure 24 - Diagramme décisionnel d'application de la VGE (IRSN, 2015).....	72
Figure 25 - Diagramme décisionnel d'application des VGEconditionnelles (IRSN, 2015).....	72
Figure 26 – Découpage des hydroécorégions en France métropolitaine. À gauche, découpage des 22 hydroécorégions de niveau 1 (HER1) ; à droite, découpage des 120 hydroécorégions de niveau 2 (HER2) - IRSTE.....	80

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 69/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

8 ANNEXES

8	ANNEXES	70
8.1	ÉVOLUTION REGLEMENTAIRE	71
8.1.1	Démarche d'Évaluation du Risque pour les Écosystèmes (ERE)	71
8.1.2	Diagrammes d'application des VGE	72
8.2	ÉVOLUTION DE LA REGLEMENTATION SUR LES REJETS EN URANIUM	73
8.3	BRUIT DE FOND GEOCHIMIQUE	74
8.3.1	Géologie européenne	74
8.3.2	Cartographie du pH et des faciès hydrogéochimiques des eaux de surface européennes	75
8.3.3	Cartographie des concentration en uranium dans les eaux de surface et teneur en uranium dans les sédiments	76
8.3.4	Cartographie des concentrations en uranium dans les eaux de surface (selon faciès hydrogéochimique et pH)	77
8.3.5	Cartographie des concentrations en uranium biodisponible U_{b4} (selon faciès hydrogéochimique et pH)	78
8.3.6	Cartographie des concentrations en uranium biodisponible U_{b6} (selon faciès hydrogéochimique et pH)	79
8.4	PASSIF MINIER FRANÇAIS	80
8.5	ÉTUDE DE L'ANCIEN SITE MINIER « LE FRAISSE »	81
8.5.1	Contexte hydrographique du site du Fraise (87)	81
8.5.2	Campagne de mesure et de prélèvement du 09/08/2017 sur le site du Fraise (localisation des profils physico-chimiques, à gauche ; localisation des points de mesure et de prélèvements des eaux, à droite)	82
8.5.3	Structuration des écoulements sur le site du Fraise	83
8.5.4	Profils physico-chimiques sur le site du Fraise	84
8.5.5	Exemple de fiche de mesure et de prélèvements (point « Exhaure »)	85
8.5.6	Calcul de la concentration en HCO_3^- à partir du CIT	86
8.5.7	Correction des mesures du potentiel d'oxydo-réduction	87
8.5.8	Calcul de la force ionique	87
8.5.9	Exemple de script d'entrée PHREEQC (Point « 01-Aval Couze »)	88
8.5.10	Paramètres physico-chimiques et résultats d'analyses pour les points de prélèvements de la campagne du 09/08/2017	89
8.5.11	Spéciations de l'uranium de chacun des points de prélèvements de la campagne du 09/08/2017, selon modélisations PHREEQC	90

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 70/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

8.1 Évolution réglementaire

8.1.1 Démarche d'Évaluation du Risque pour les Écosystèmes (ERE)

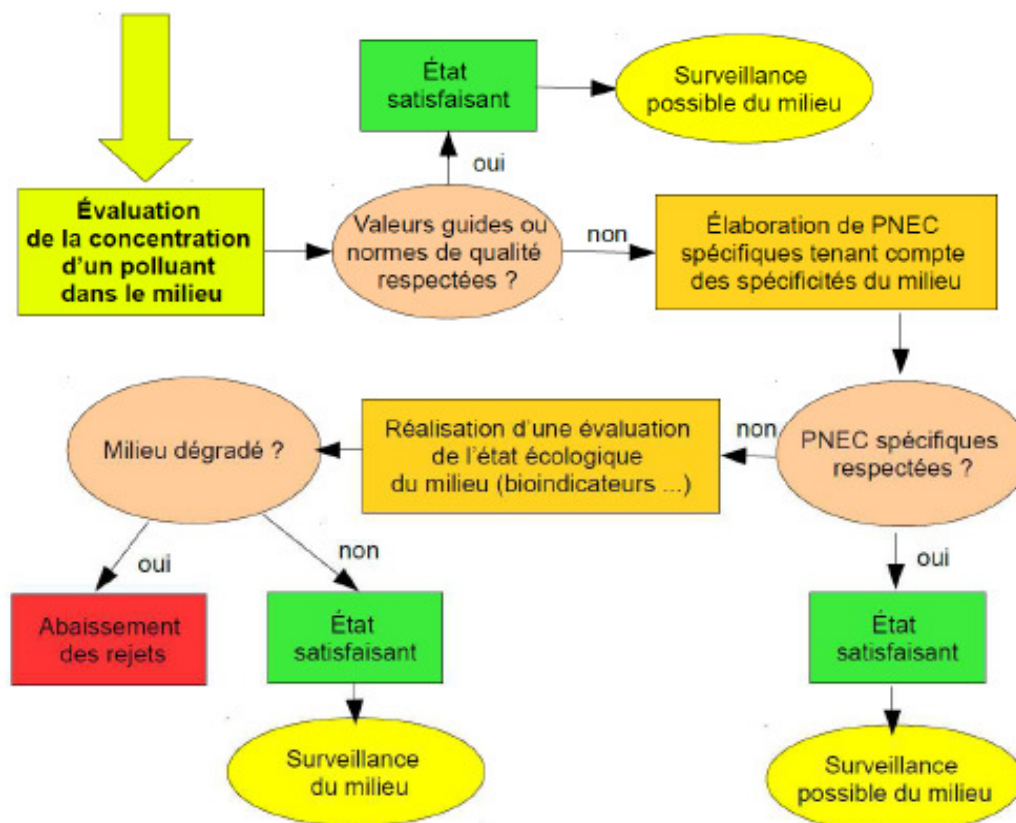


Figure 23 - Logigramme présentant le contenu des différentes étapes successives pour l'application de l'ERE (MEDDE, 2014)

8.1.2 Diagrammes d'application des VGE

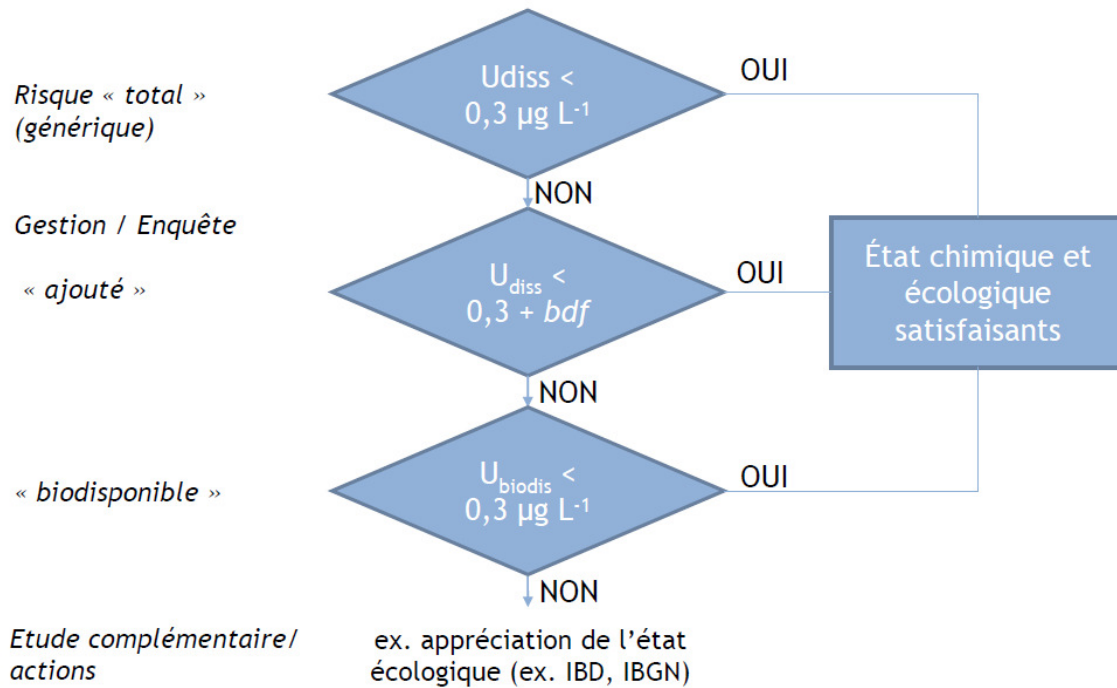


Figure 24 - Diagramme décisionnel d'application de la VGE (IRSN, 2015)

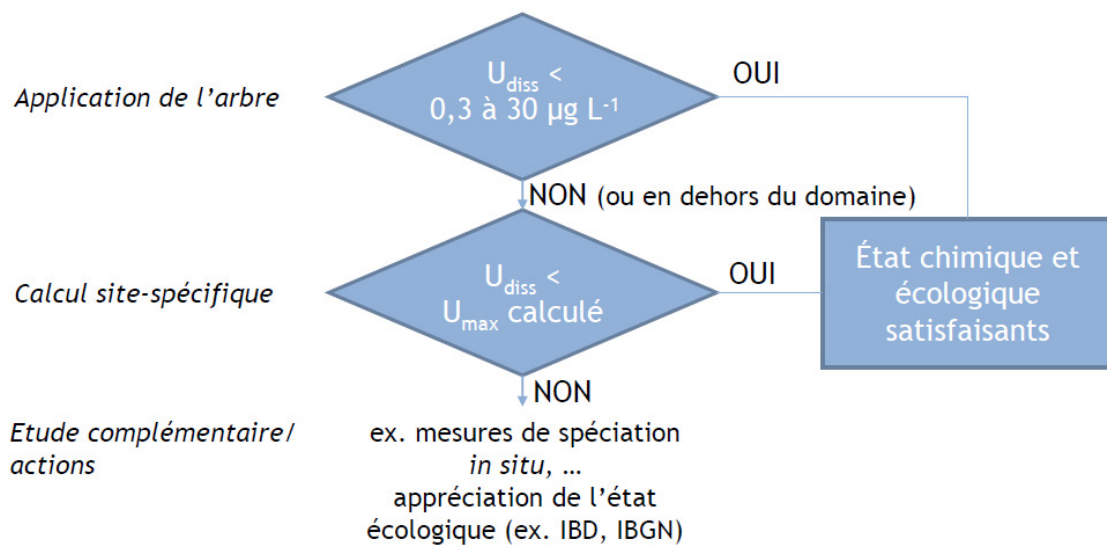














Figure 25 - Diagramme décisionnel d'application des VGE conditionnelles (IRSN, 2015)

Approche multiscalaire dans l'évaluation de l'uranium biodisponible des eaux de surface	Page : 72/91
REILÉ Benoît – Mémoire de fin d'études, mastère EPA 2016-2017 (ENGEES)	AREVA Mines

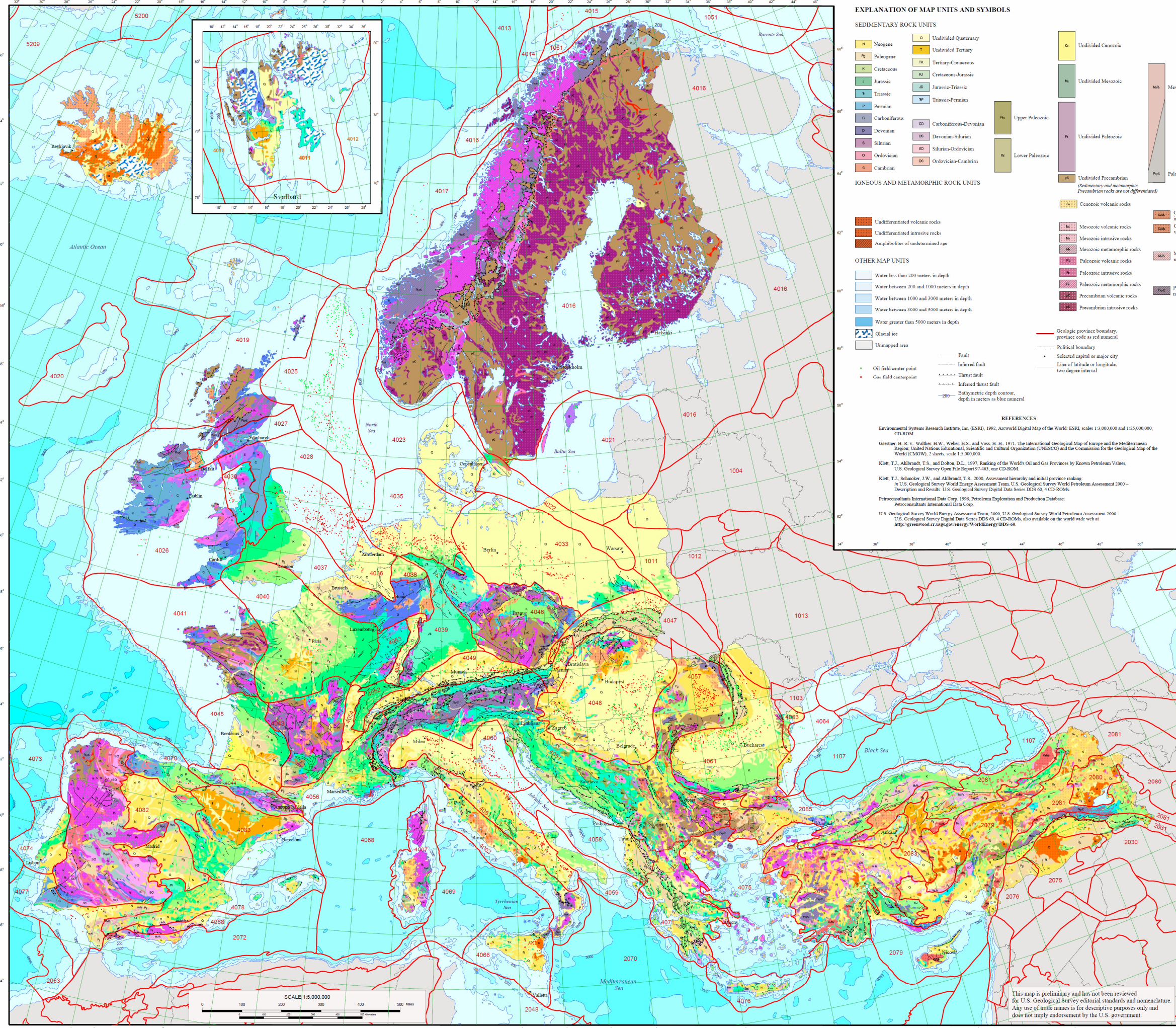
8.2 Évolution de la réglementation sur les rejets en uranium

Dates	Type	Références	Rôle /Objectif	Contenu du texte en relation avec la problématique d'étude	Point clé
1976		Directive du 04/05/1976 (76/464/CEE) - Directive 76/464/CEE			U mentionné dans la liste II
		RGIE			
1980		Décret 80-331	Décret d'application du RGIE	Uranium mentionné dans la surveillance des rejets et du milieu naturel, sans limite réglementaire	Surveillance de l'U dans les rejets et le milieu naturel
		Décret 90-222	Décret complétant le RGIE institué par le décret 80-331)	Uranium mentionné dans la surveillance des rejets et du milieu naturel, sans limite réglementaire	Surveillance de l'U dans les rejets et le milieu naturel
1990		Circulaire du 09/03/1990	Application des décrets 90-222, 88-521 et des directives EURATOM 80-836 et 84-467	Définition des concentrations moyennes annuelles en substance radioactive des rejets liquides (article 9, III), sur fraction dissoute filtrée à 0.45 µm (article 11, IV)	1,8 mg/l 238U soluble
2000		Directive 2000/60/CE du 23/10/2000		Définition de la liste des substances prioritaires (33 ou 41 substances prioritaires)	U non mentionné dans substances prioritaires
		Arrêté du 20/04/2005 (2005-378)	Transposition directive 76/464/CEE :	Définition de la liste des substances dangereuses pour l'environnement (NQ pour 18 substances liste I 76/464/CEE, et NQ pour 18 substances liste II 76/464/CEE)	U non mentionné dans substances prioritaires
2005		Arrêté du 30 juin 2005	Modifiant l'arrêté du 20/04/2005	Modification de la liste des substances dangereuses pour l'environnement (16 substances exclues du programme national), liste de substances et familles pertinentes, objectifs de réduction pour 18 substances pertinentes	U mentionné dans substances pertinentes sans objectif de réduction
		Circulaire DCE 2005/12 du 28 juillet 2005			U non mentionné dans substances prioritaires
		Arrêté du 21/03/2007	Modifiant l'arrêté du 20/04/2005 et du 30/06/2005 :	NQ pour 8 nouvelles substances pertinentes, modification définitive de la liste des substances exclues, et liste des substances pertinentes (114 substances pertinentes, dont 86 ne faisant pas partie des 41 substances d'évaluation état écologique)	U mentionné dans substances pertinentes
2007		Circulaire du 07/05/2007		Définition de NQEp (sans valeur réglementaire) et d'objectifs de réduction pour 41 substances prioritaires (NQEp pour 33 substances prioritaires de la DCE 2000/60/CE, et 8 substances de la liste I de la DCE 76/464/CEE ; objectif de réduction de 30 % à 50 % en 2028), et pour 86 substances pertinentes (NQEp pour 86 substances pertinentes de la liste II 76/464/CEE, <u>dont figure l'uranium</u> ; objectif de réduction de 10 % en 2028).	NQEp : U = BdF + 0.3µg/l (après filtration 0.45µm), non réglementaire
2008		Circulaire (DCE) du 16/12/2008 2008/105/CE)		Définition de NQE pour 45 substances prioritaires, définition des zones de mélange (article 4), définition de NQEp	U non mentionné dans substances prioritaires

Norme en vigueur : RGIE (décret + circulaire 09/03/1990) ou arrêté préfectoraux plus strictes

1,8 mg/l 238U soluble ou arrêté plus strict

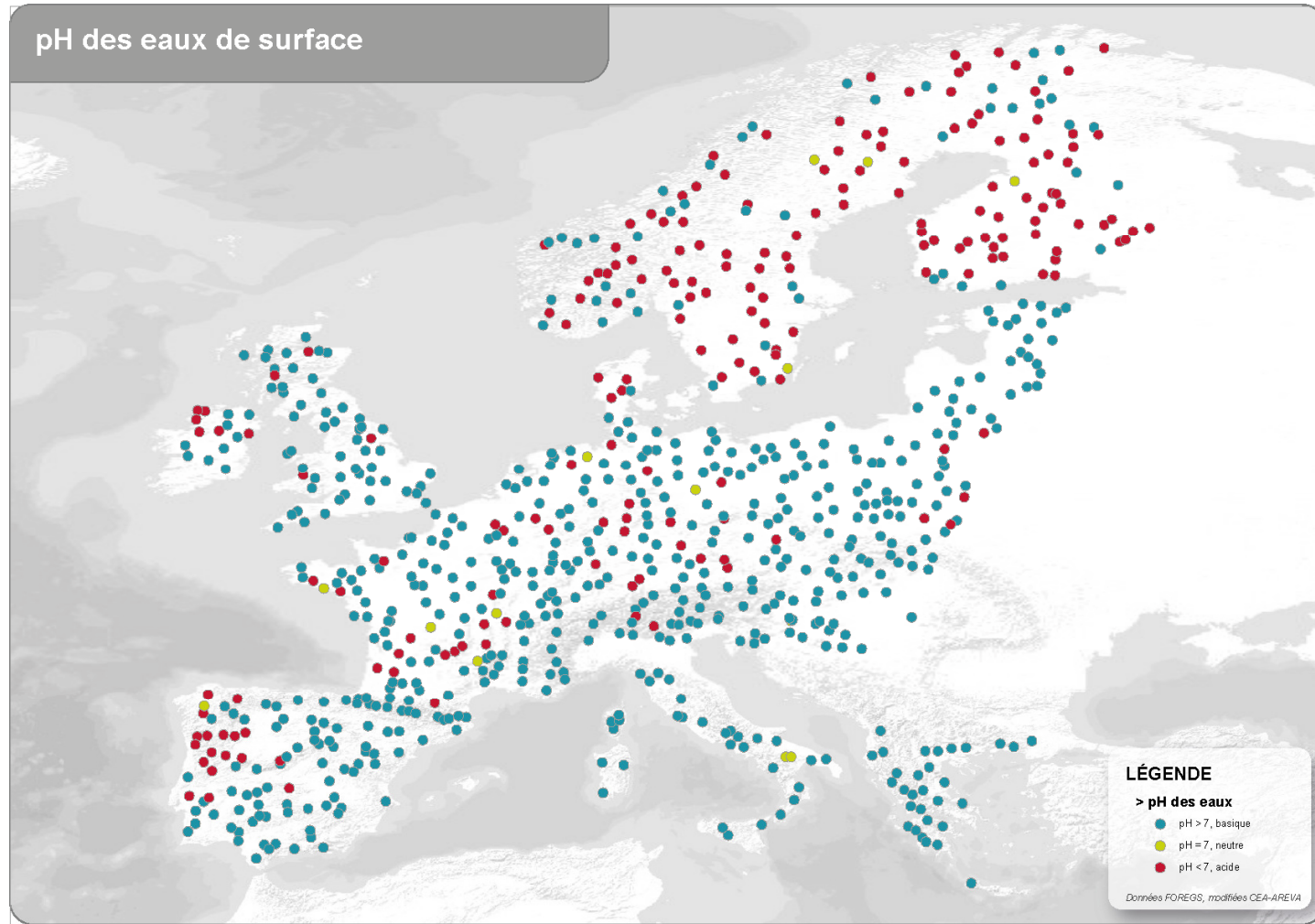
8.3



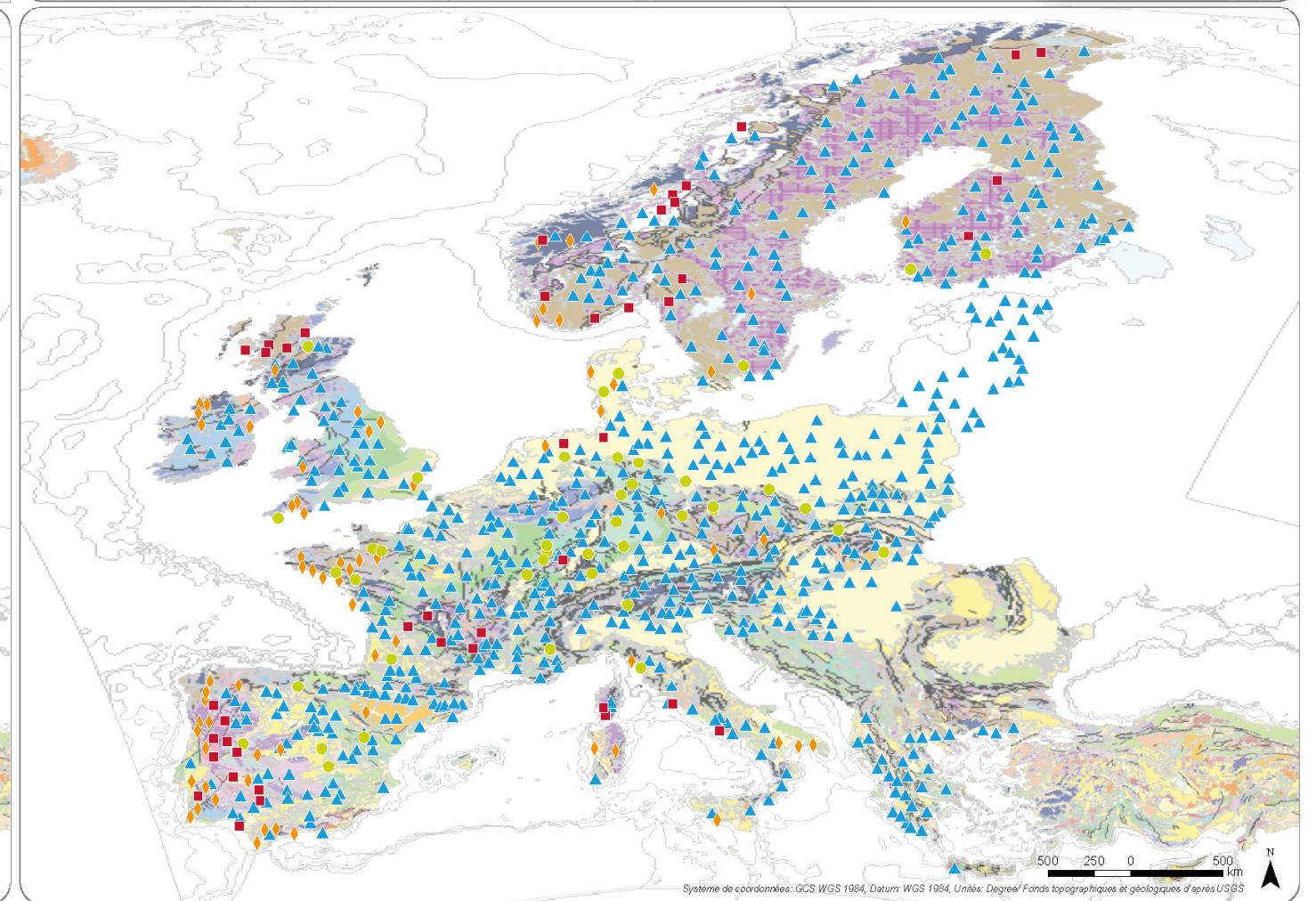
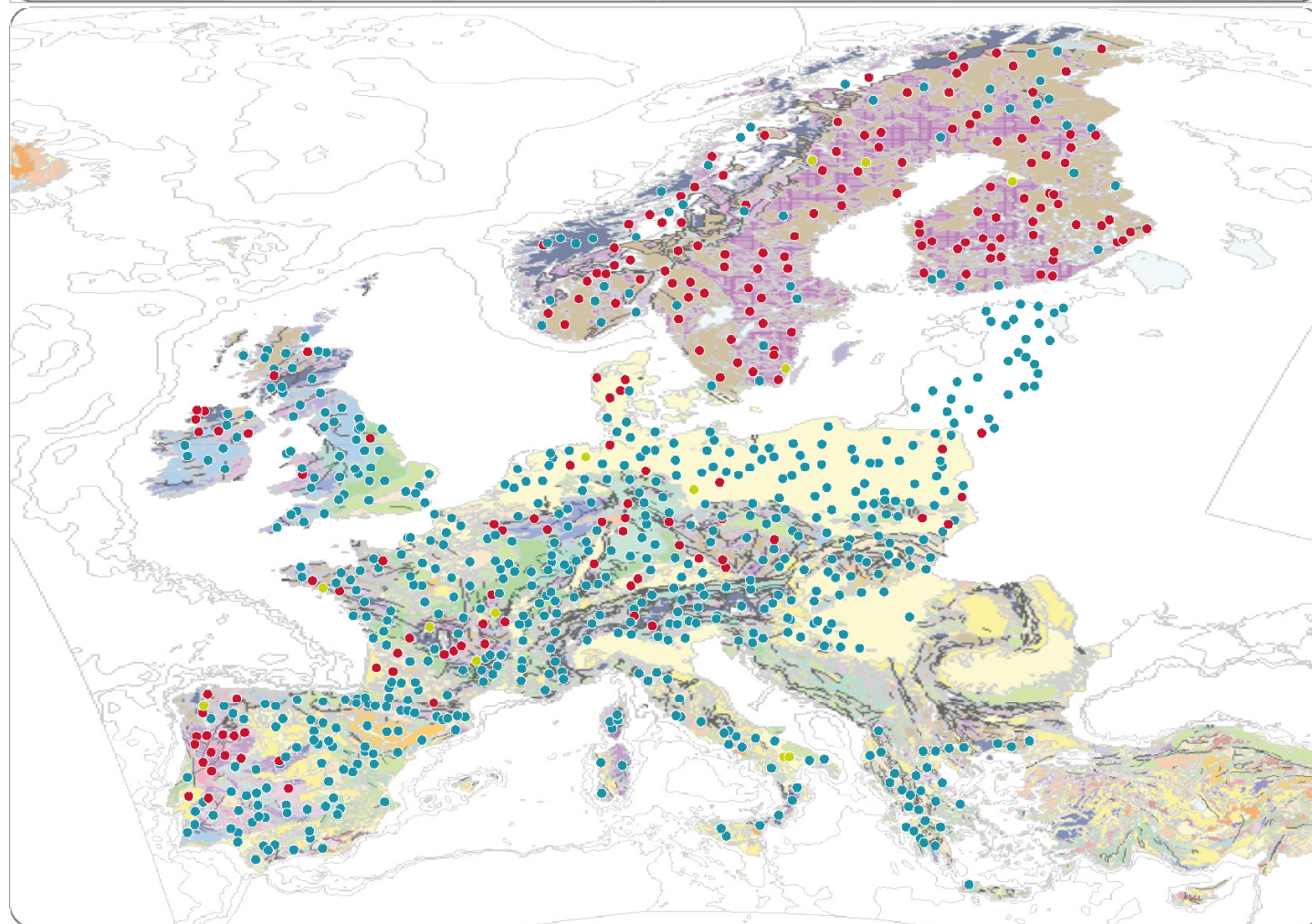
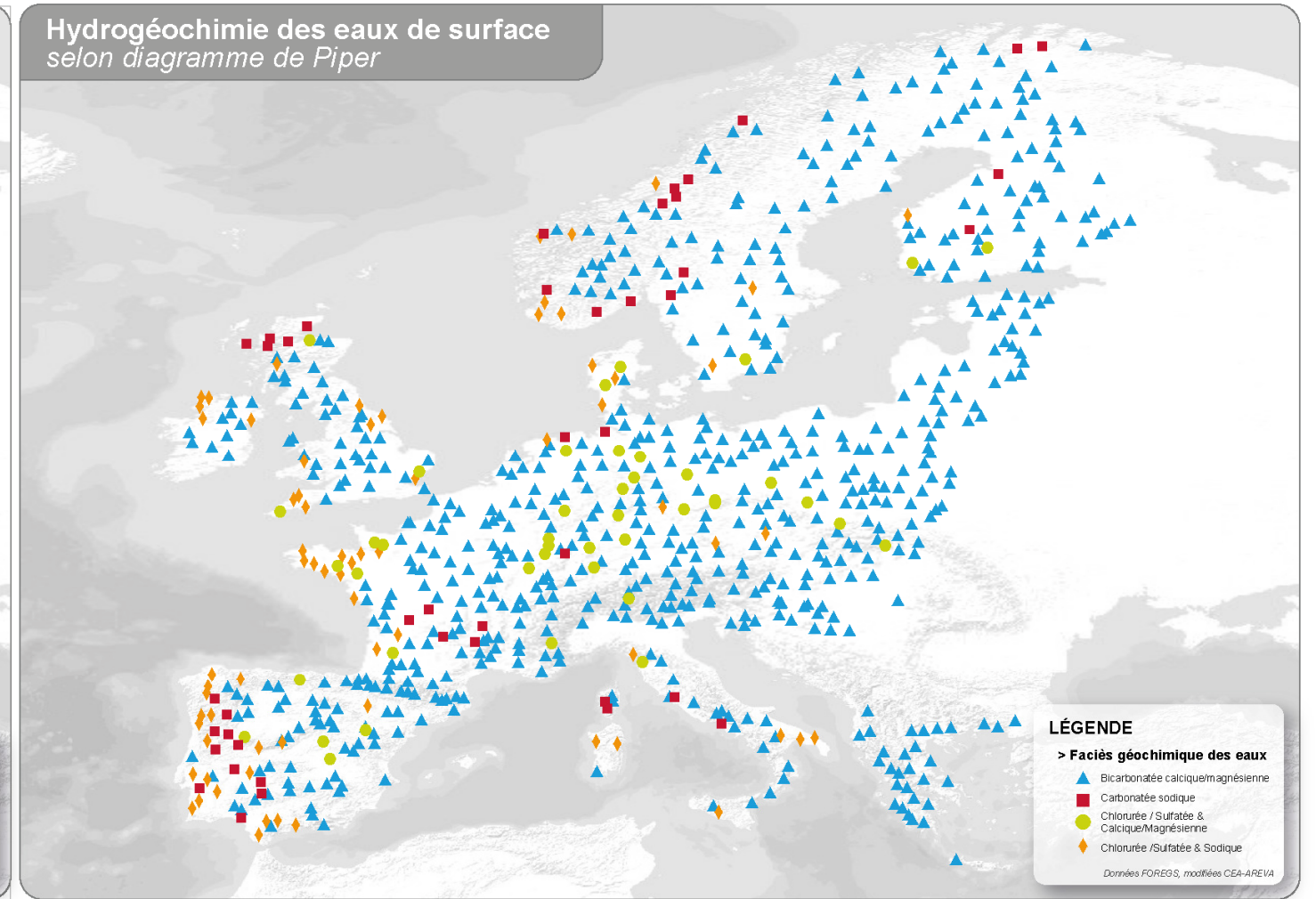
Projection: Lambert Conformal Conic with Two Standard Parallels at 30 degrees North and 60 degrees North Latitude
Central Meridian: 12 degrees East Longitude

Map Showing Geology, Oil and Gas Fields, and Geologic Provinces of Europe including Turkey

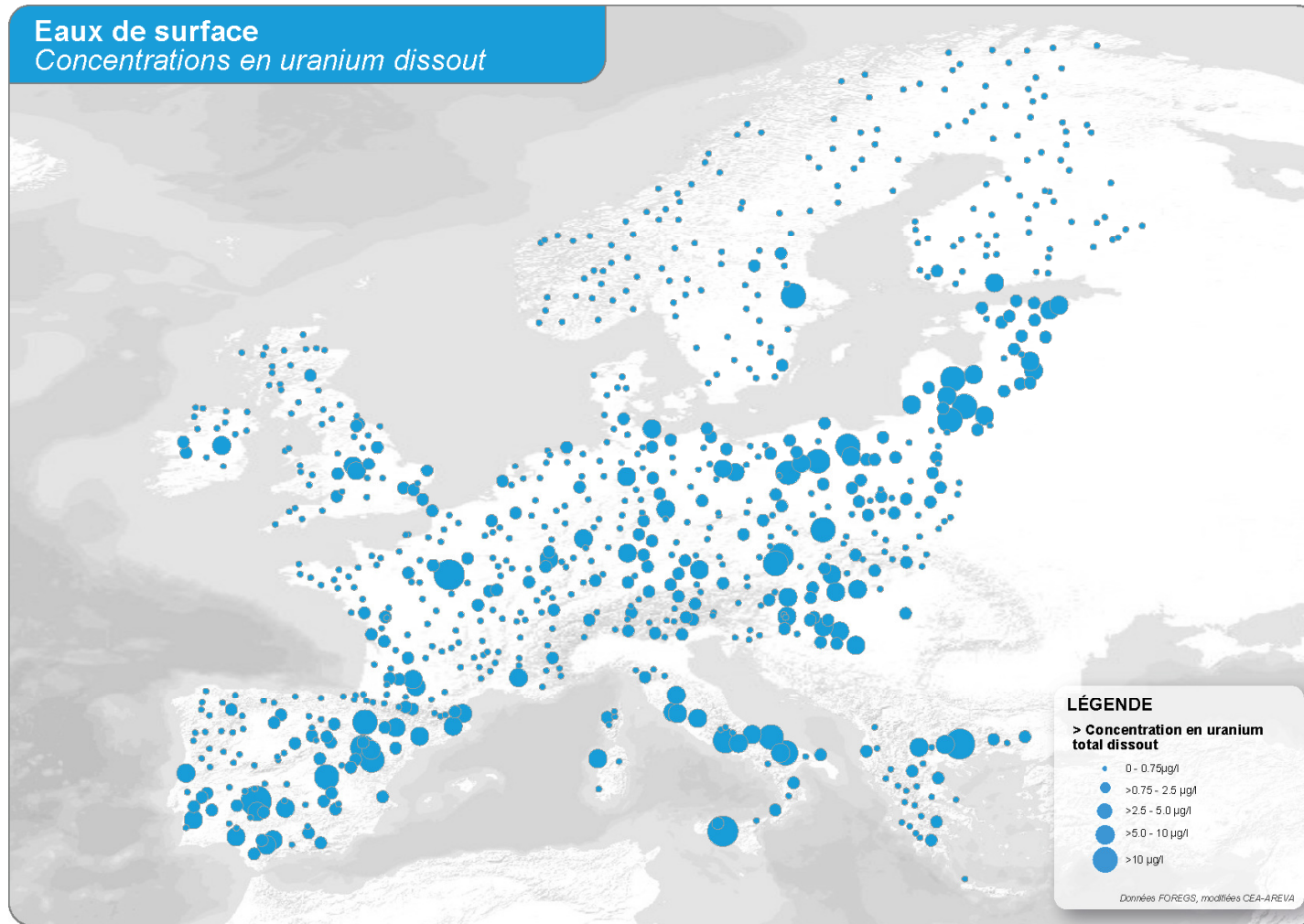
pH des eaux de surface



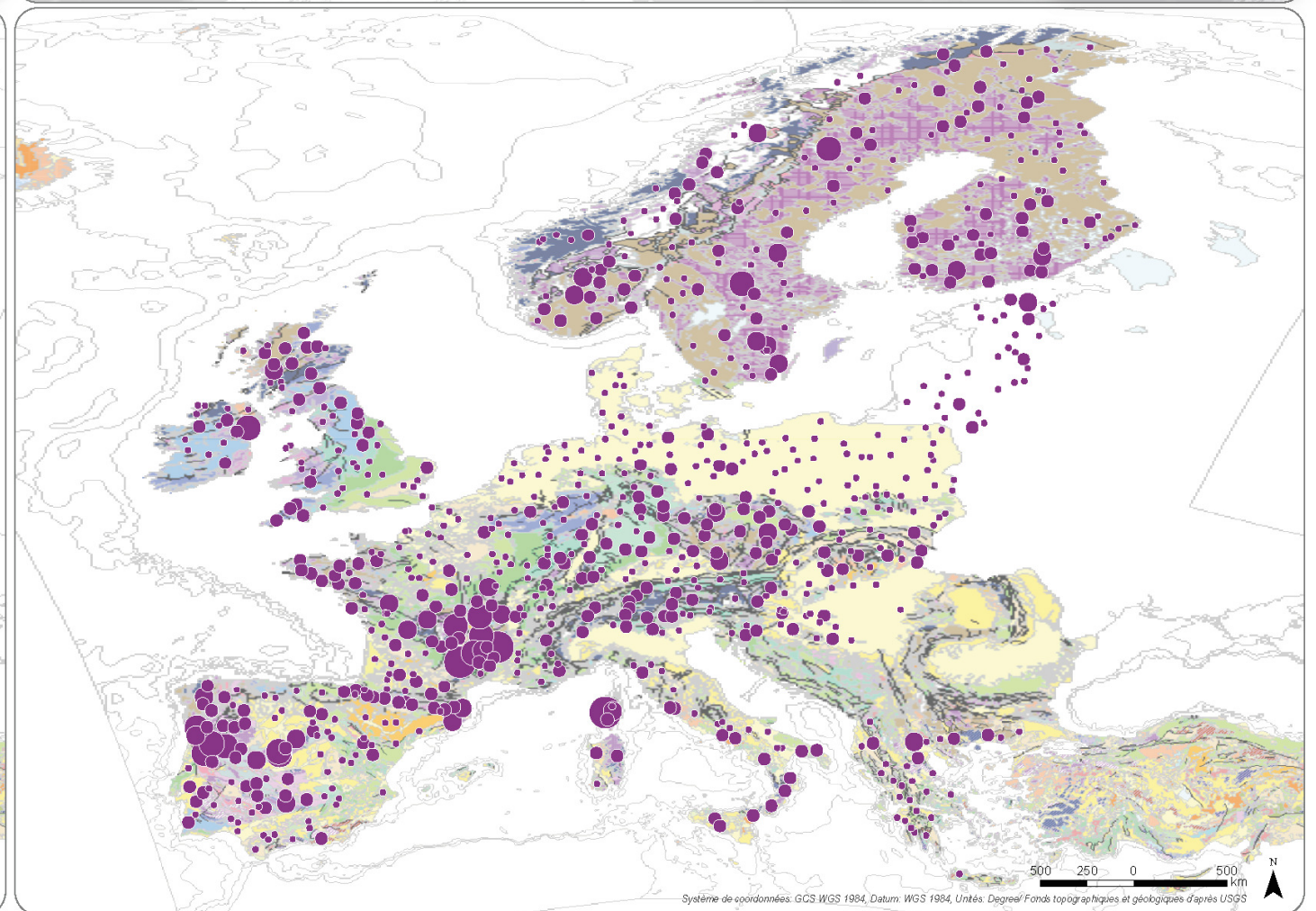
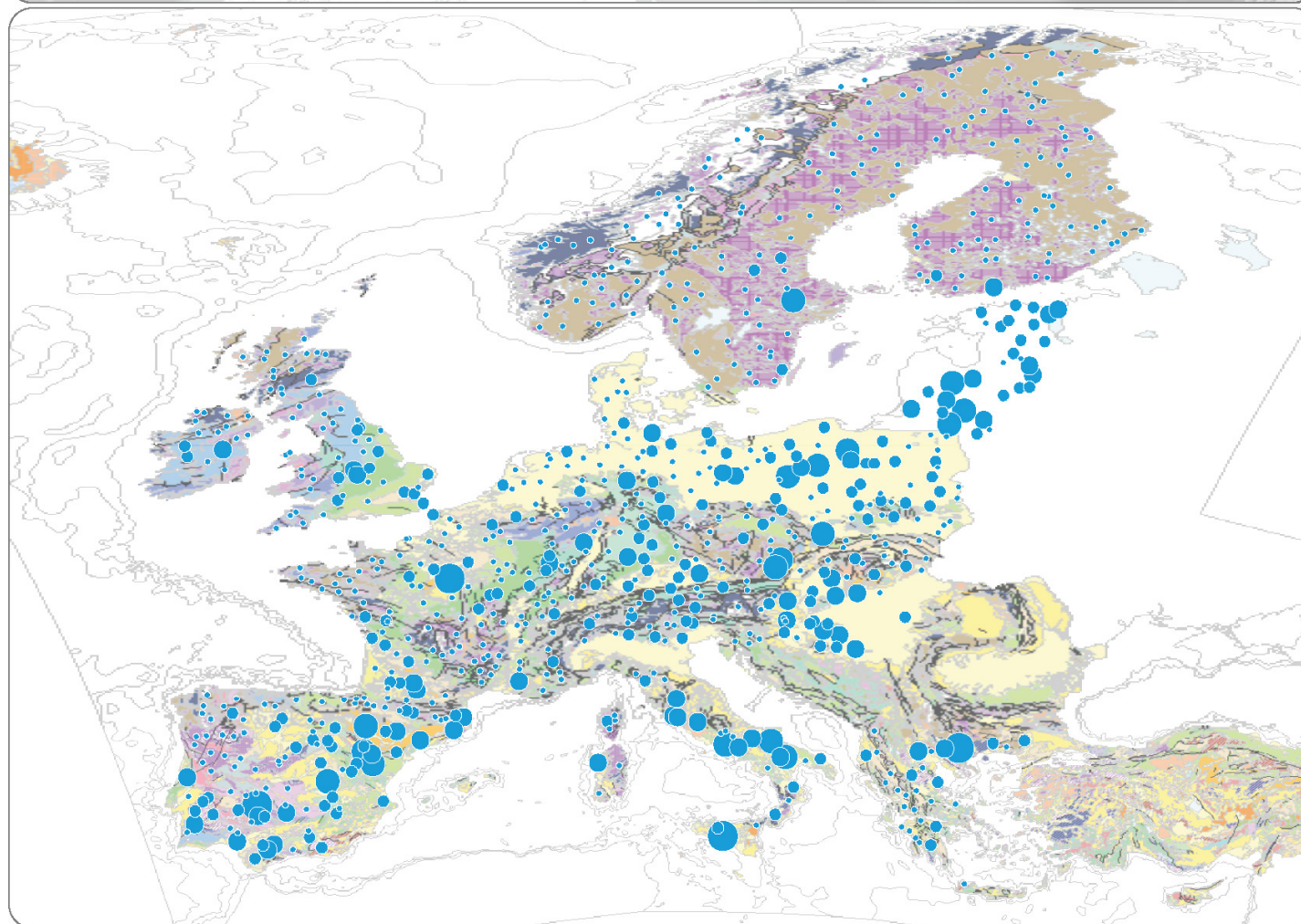
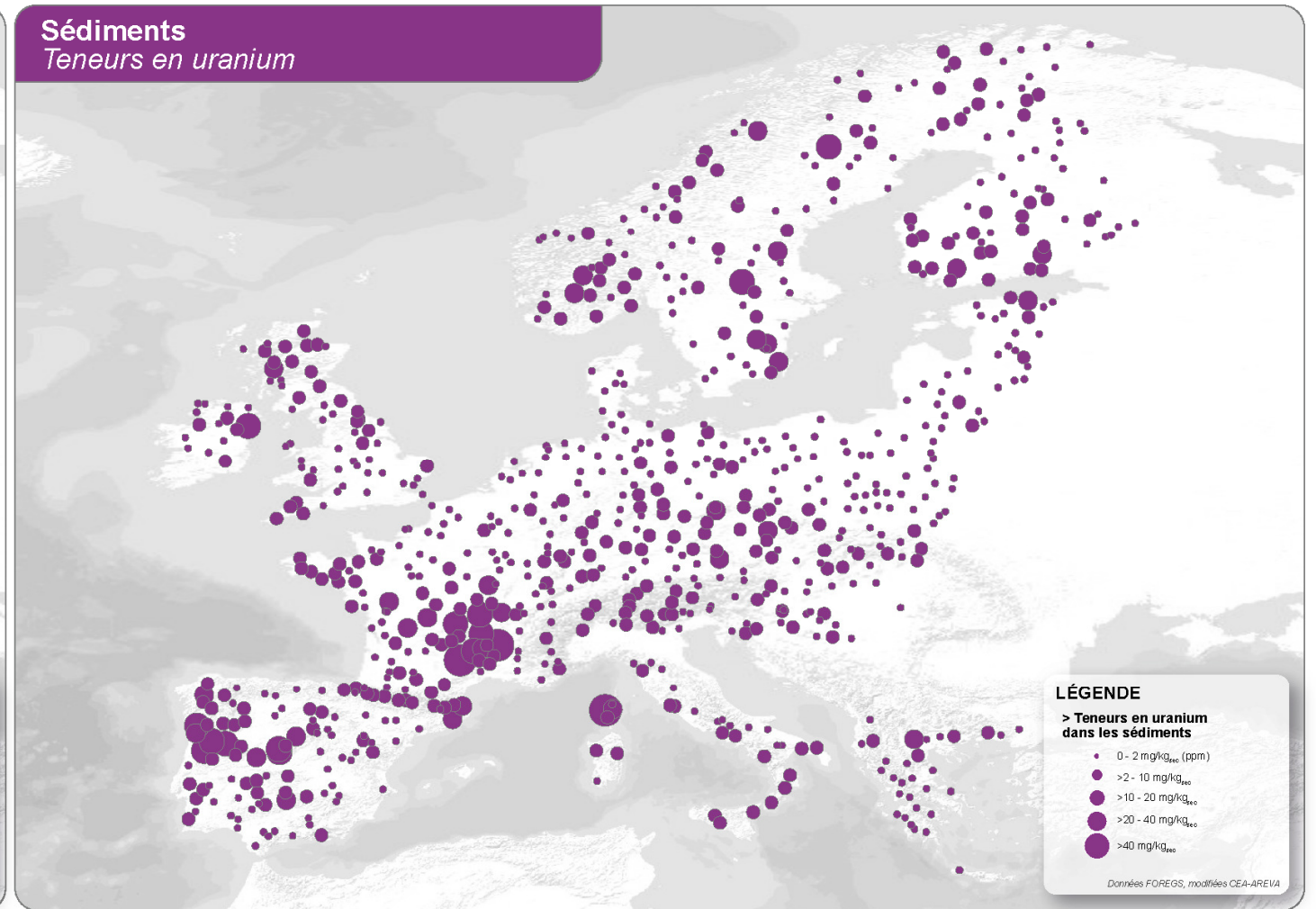
Hydrogéochimie des eaux de surface
selon diagramme de Piper



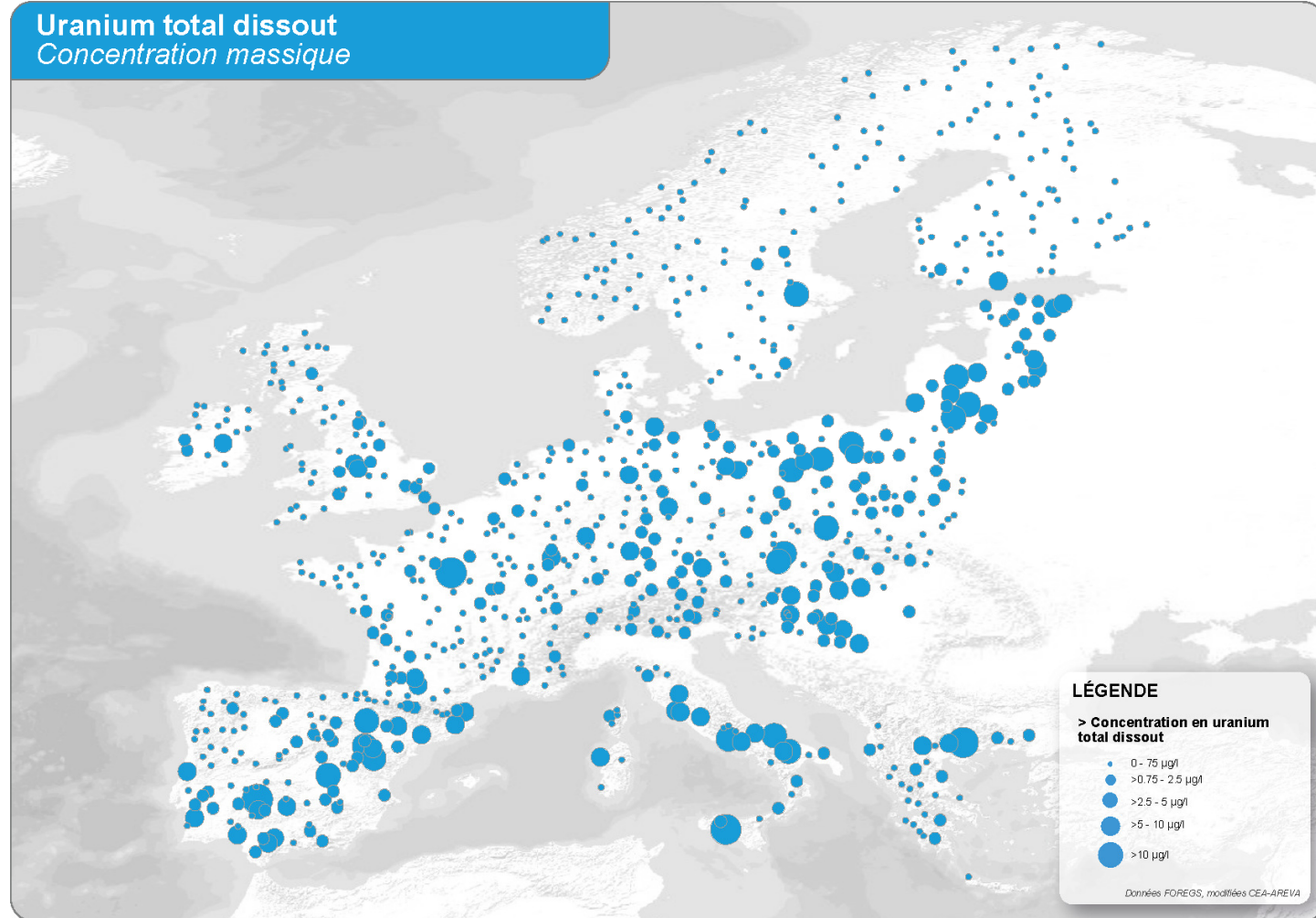
Eaux de surface
Concentrations en uranium dissout



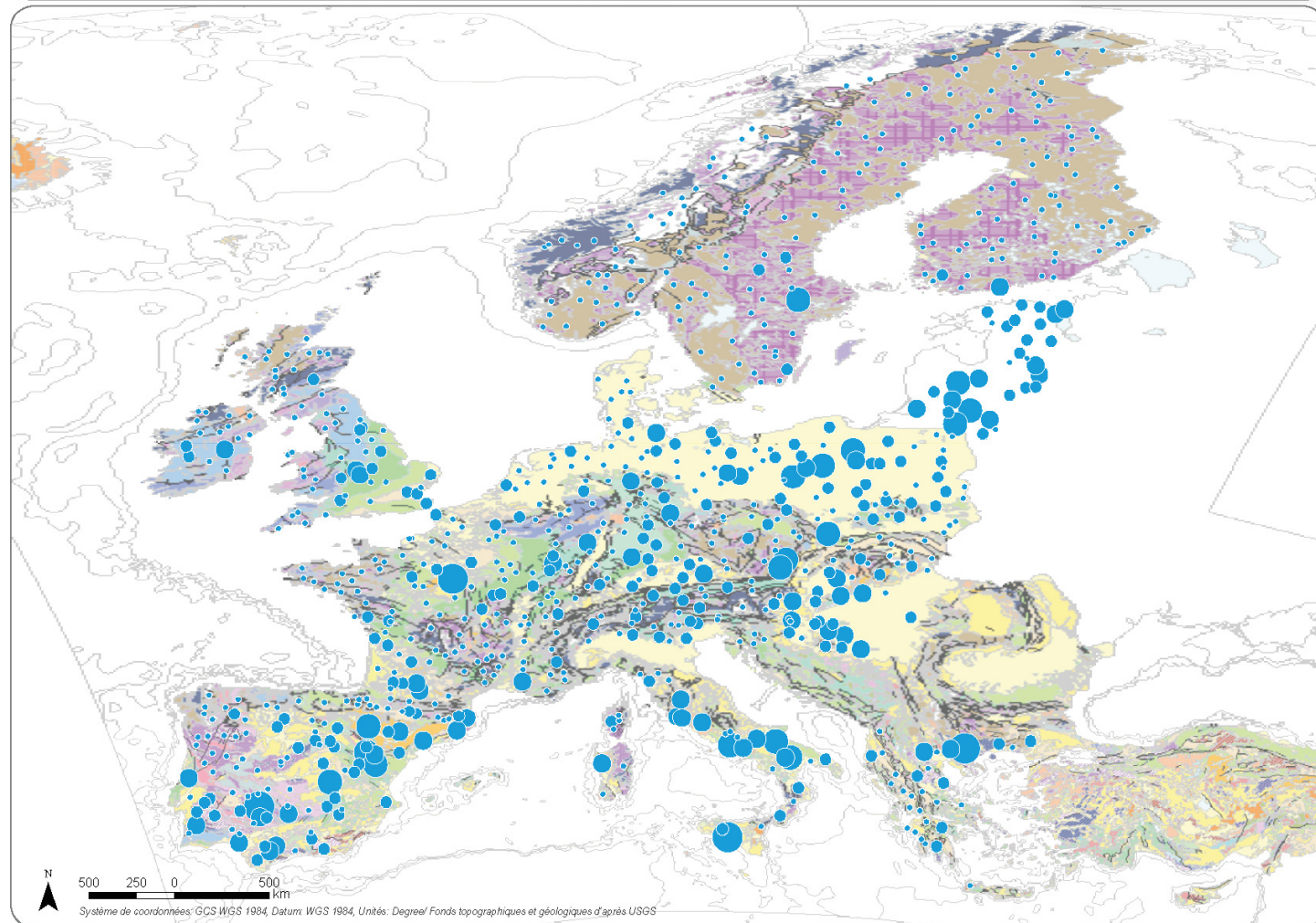
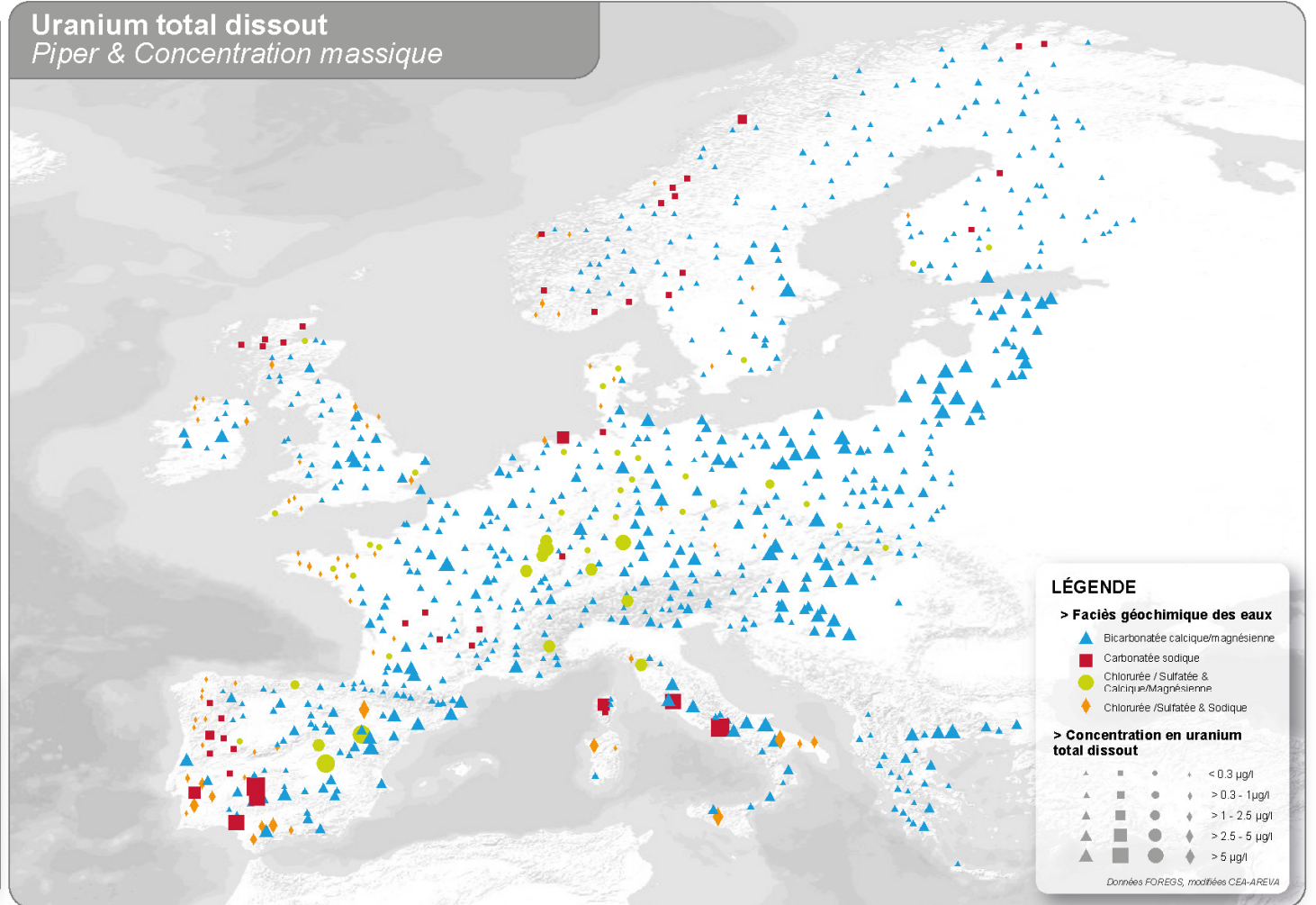
Sédiments
Teneurs en uranium



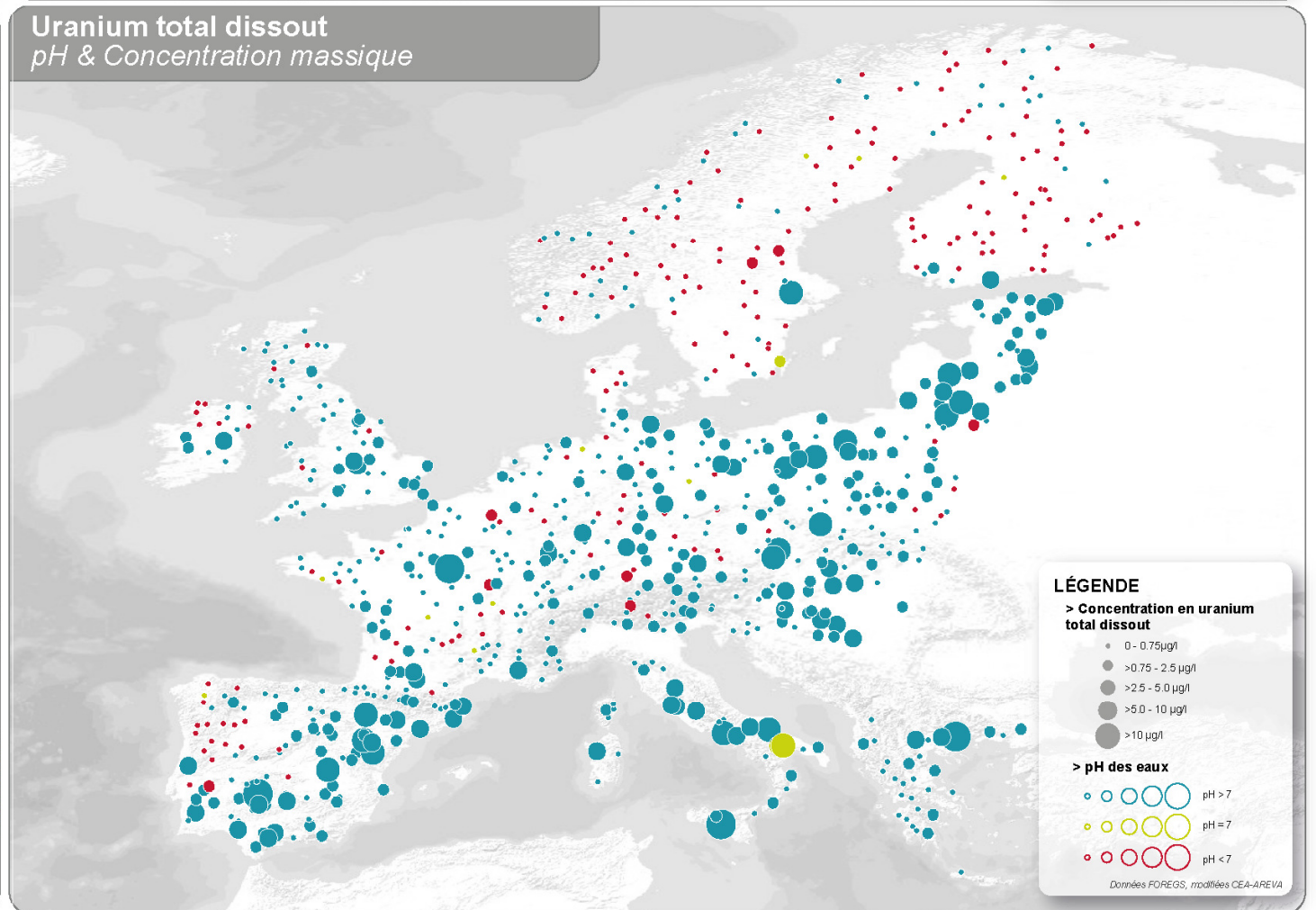
Uranium total dissout
Concentration massique



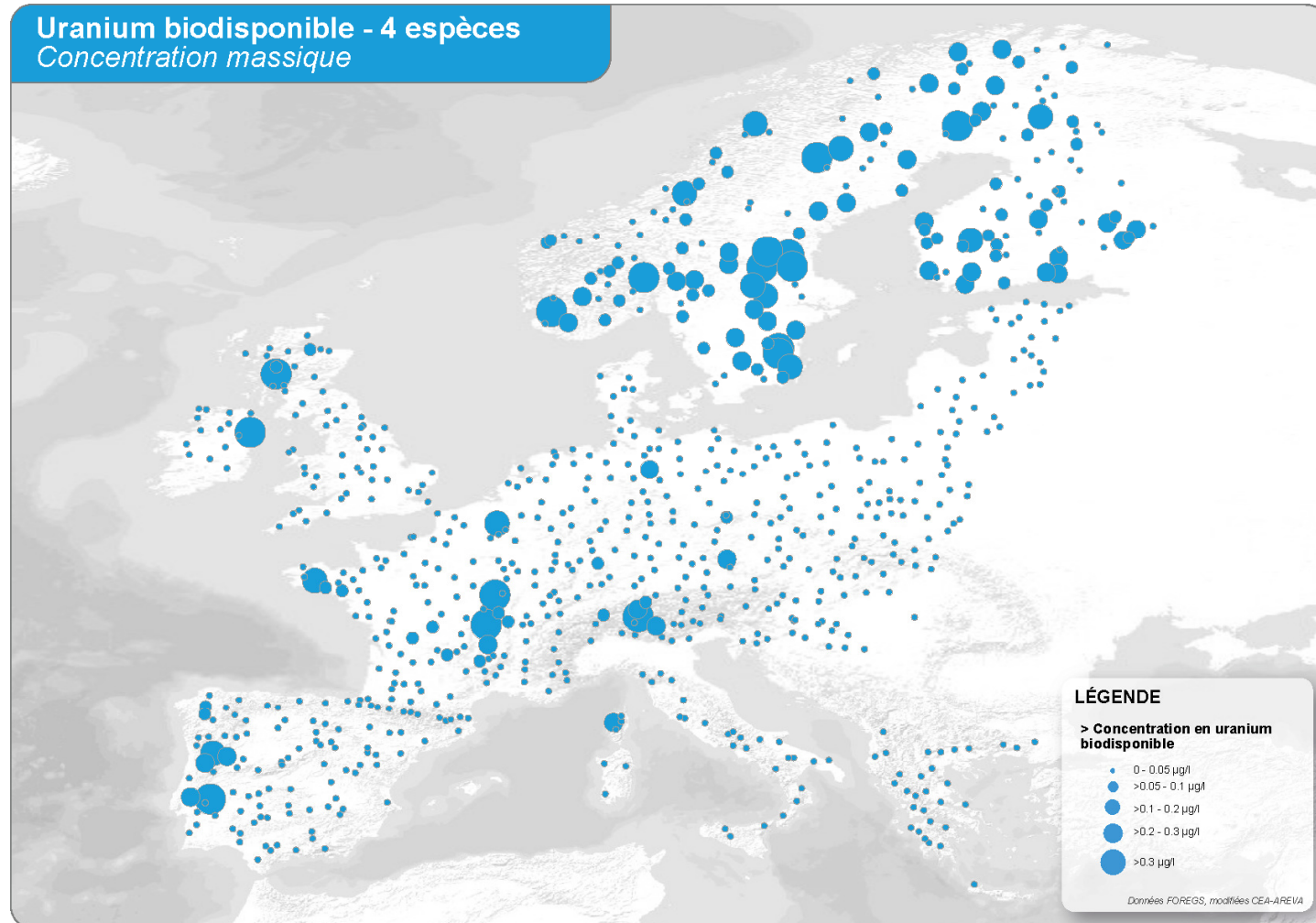
Uranium total dissout
Piper & Concentration massique



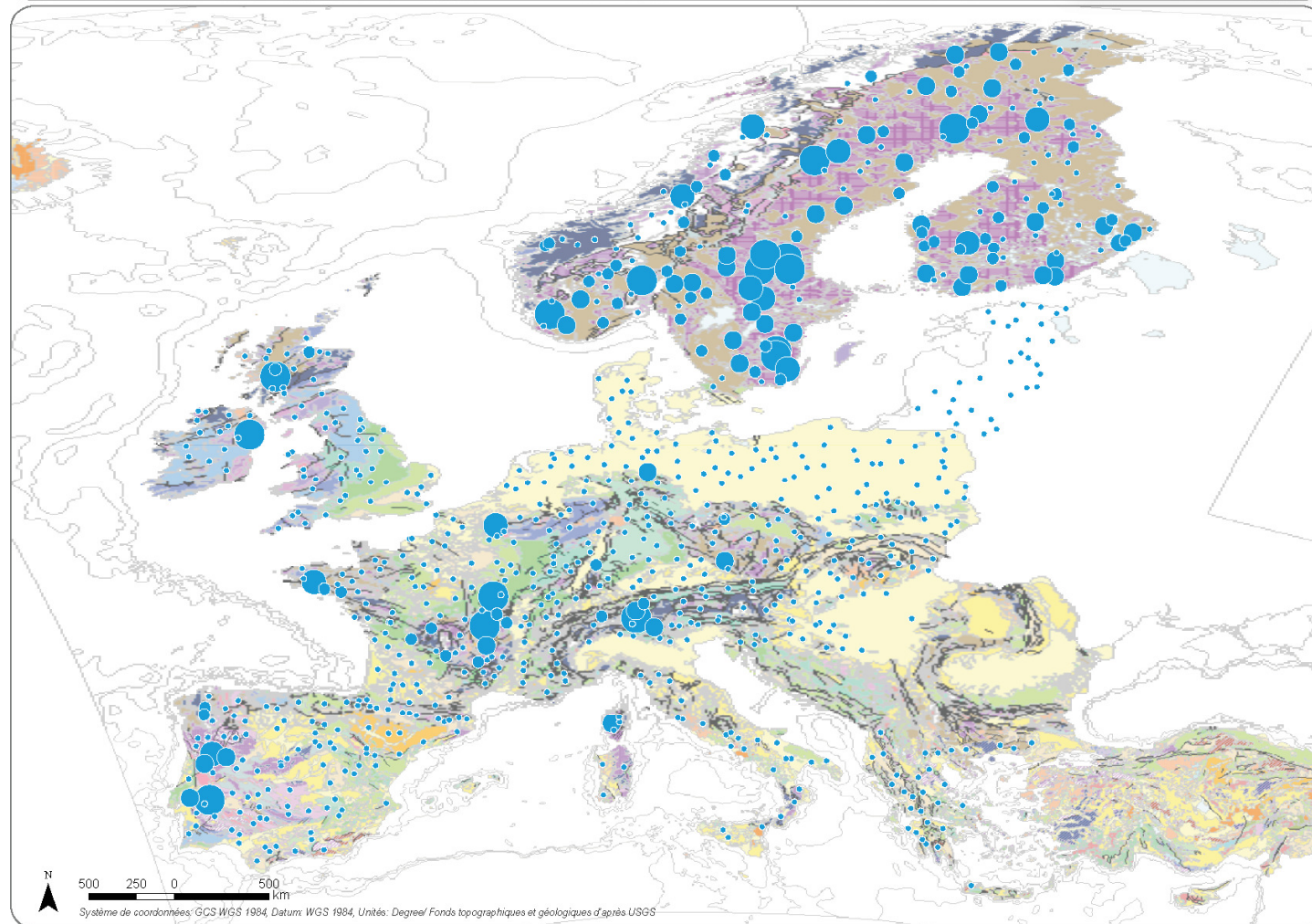
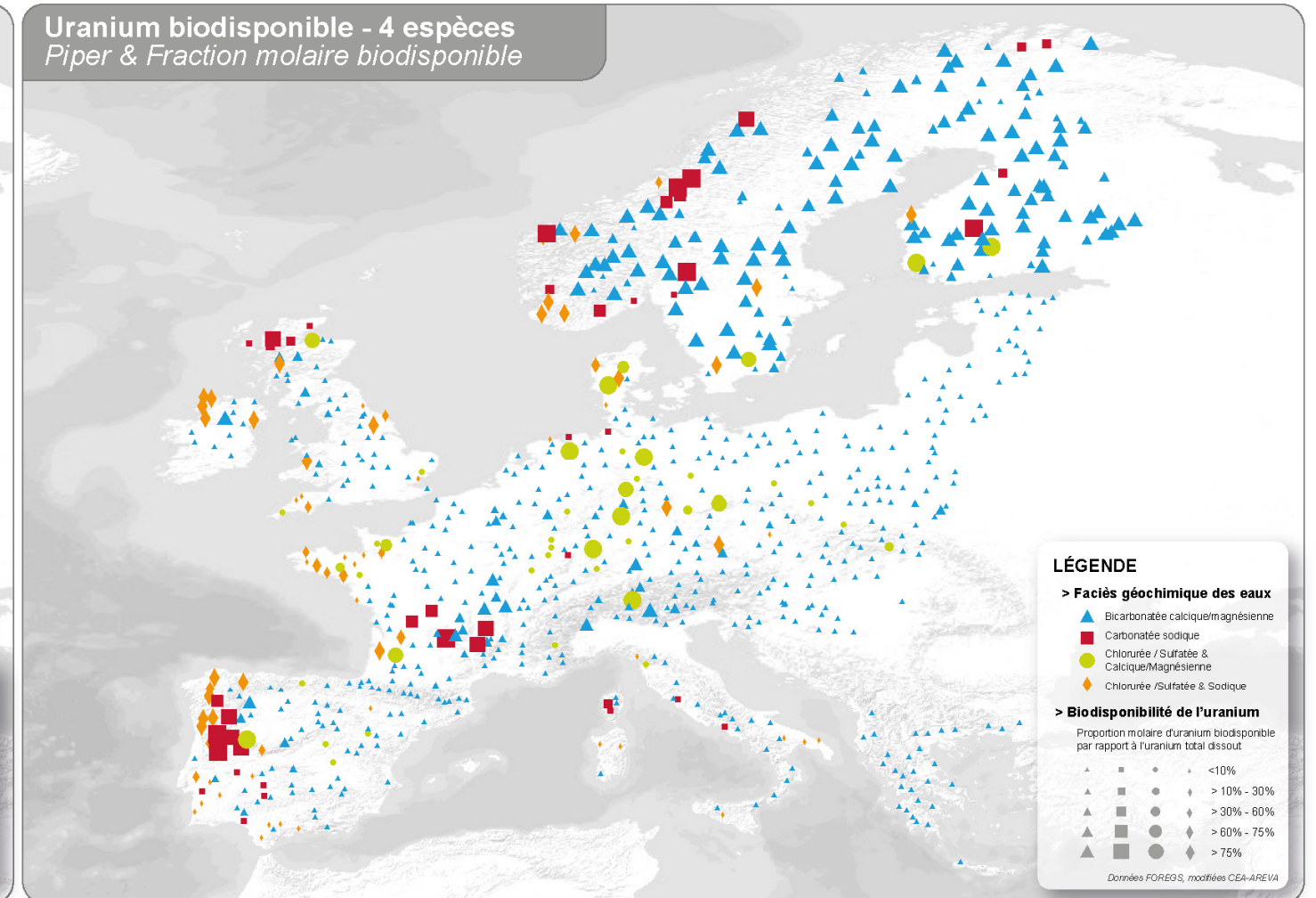
Uranium total dissout
pH & Concentration massique



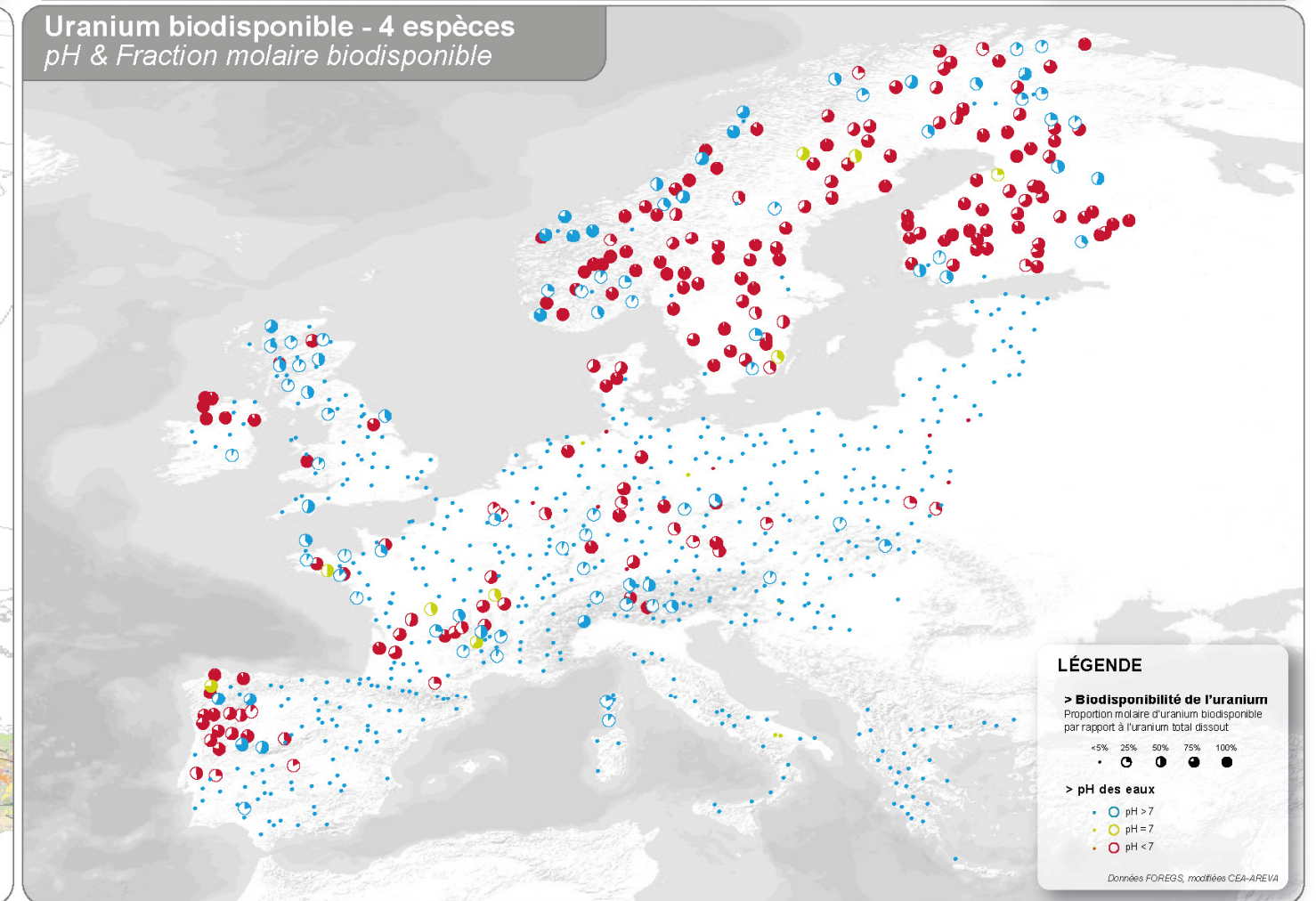
Uranium biodisponible - 4 espèces
Concentration massique



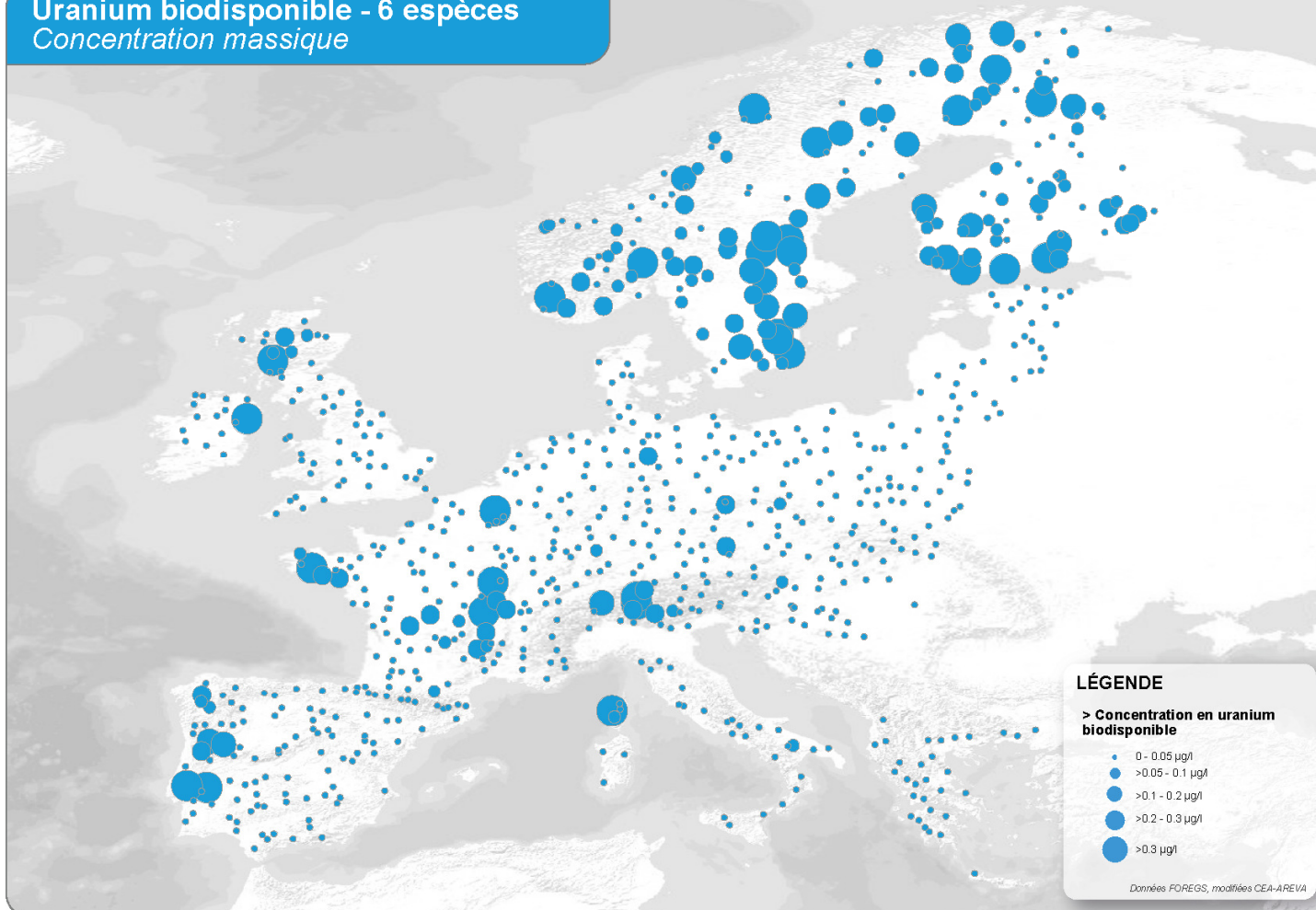
Uranium biodisponible - 4 espèces
Piper & Fraction molaire biodisponible



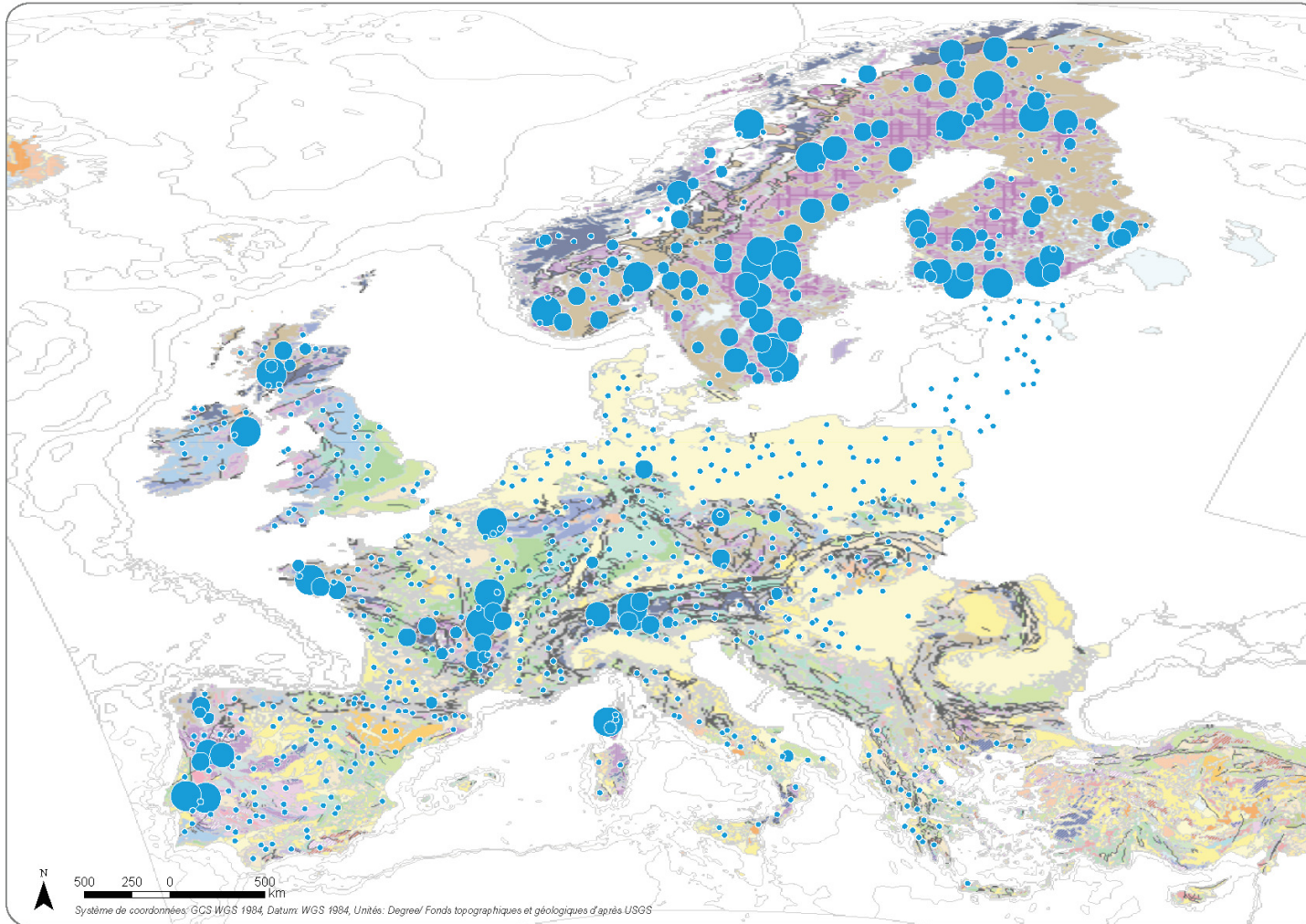
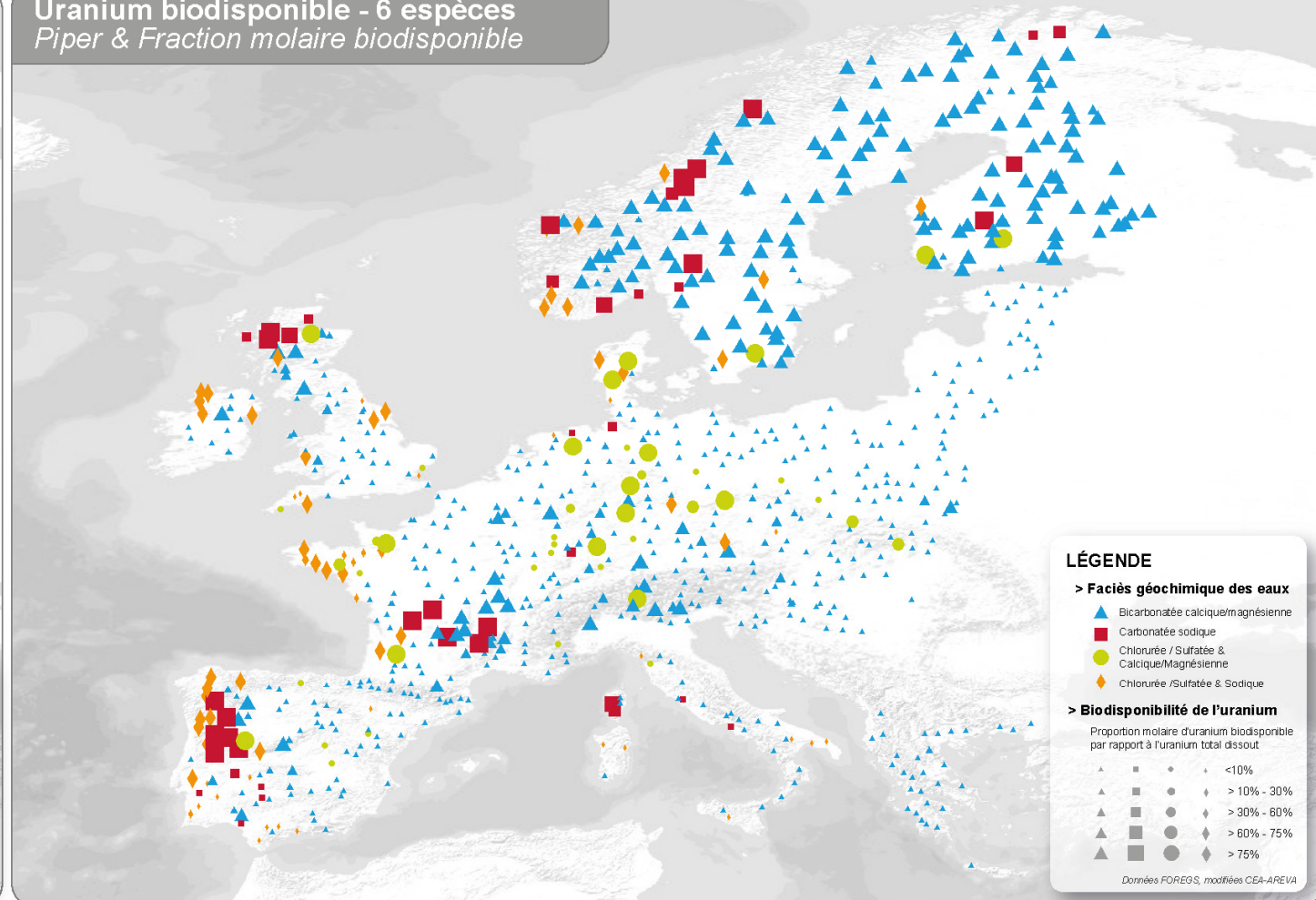
Uranium biodisponible - 4 espèces
pH & Fraction molaire biodisponible



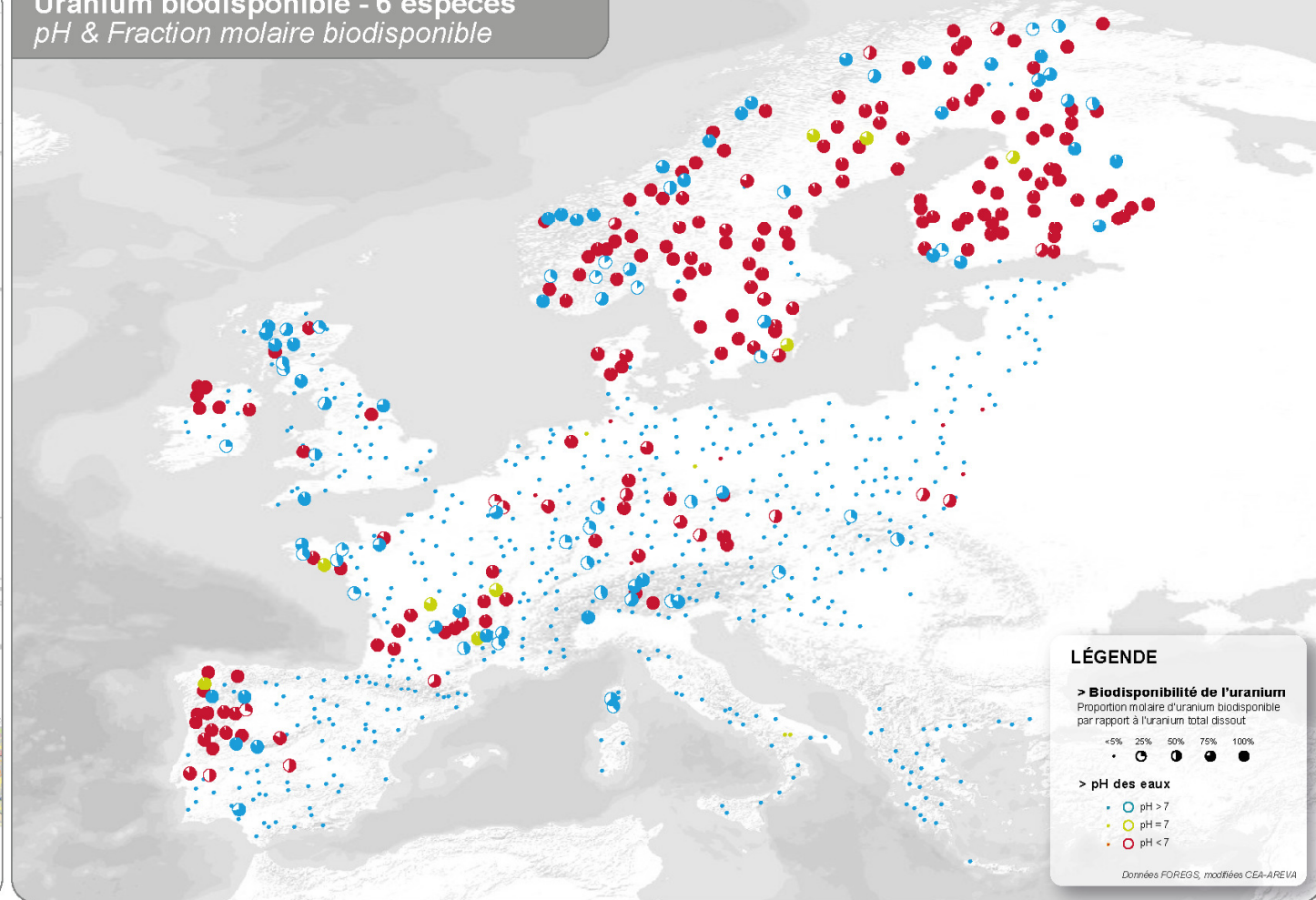
Uranium biodisponible - 6 espèces
Concentration massique



Uranium biodisponible - 6 espèces
Piper & Fraction molaire biodisponible



Uranium biodisponible - 6 espèces
pH & Fraction molaire biodisponible



8.4 Passif minier français

8.4.1.1 Découpage des hydroécorégions

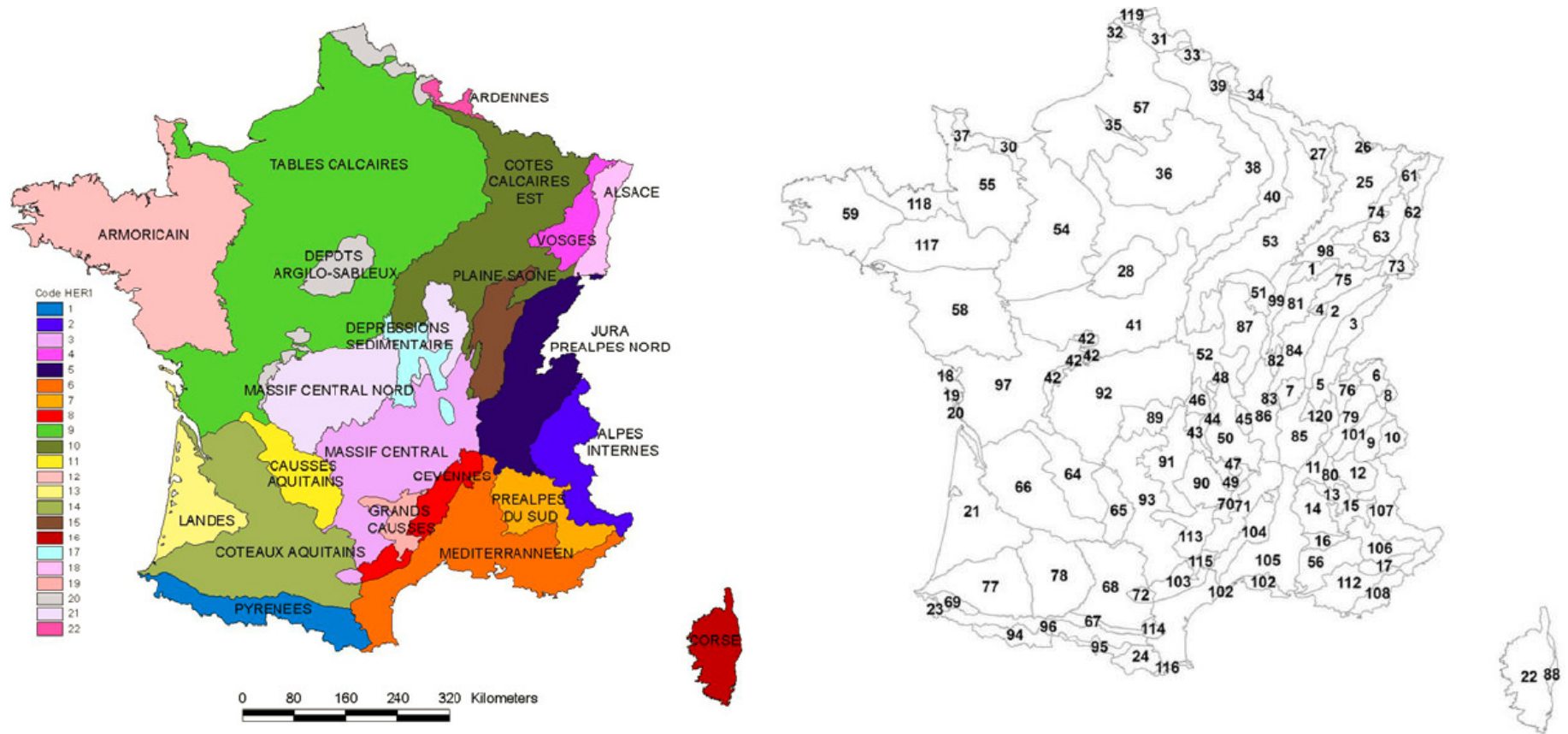
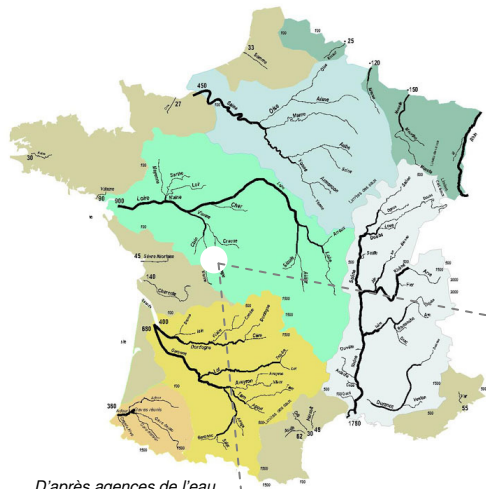


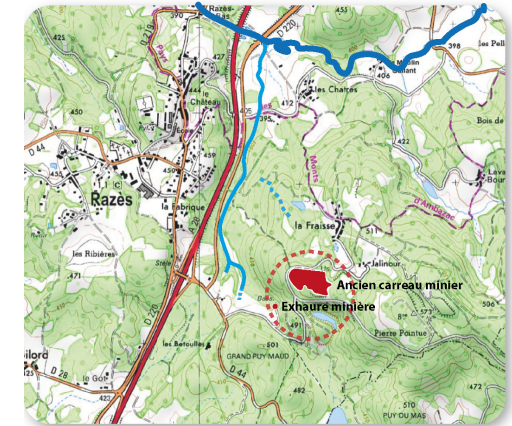
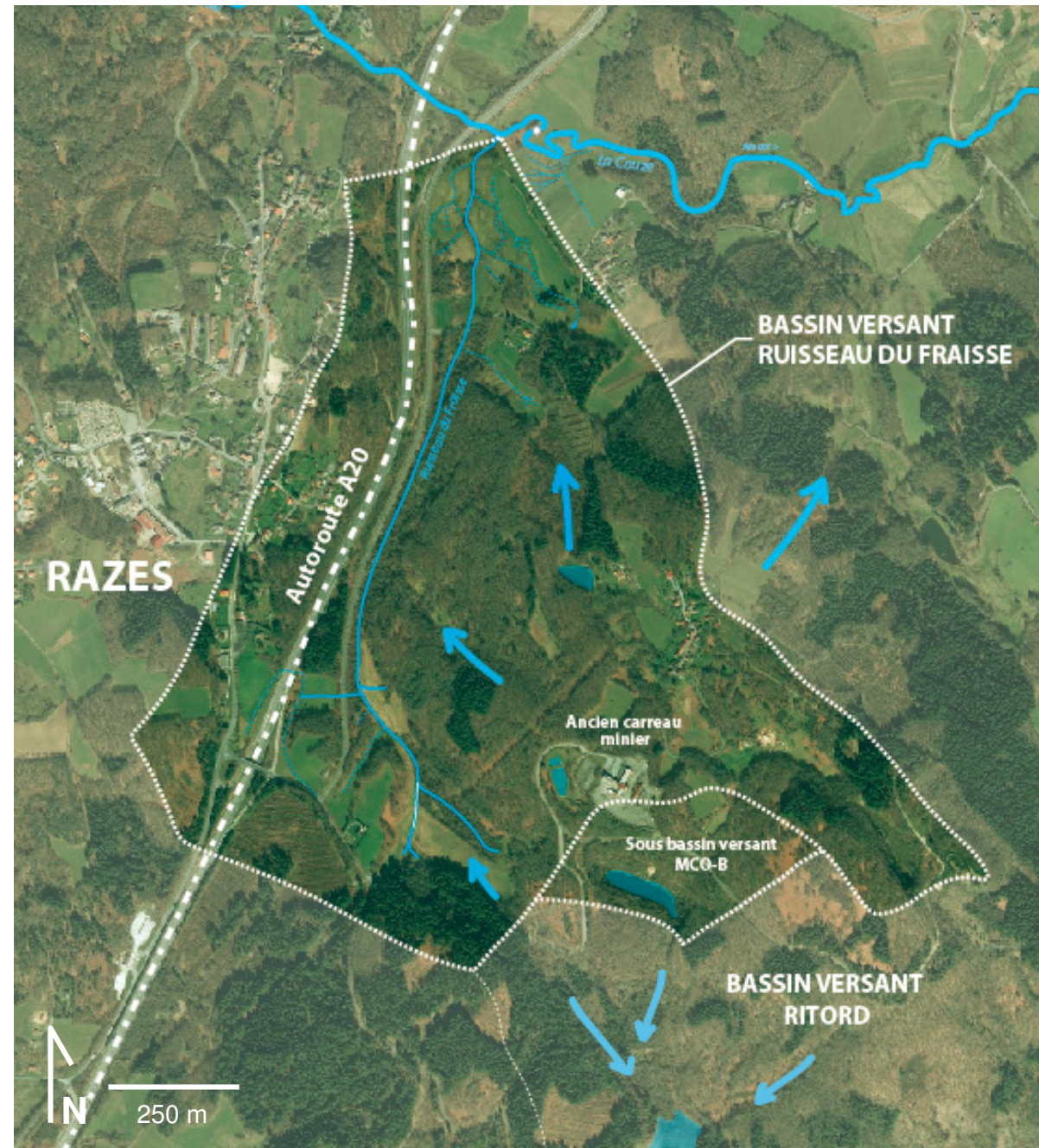
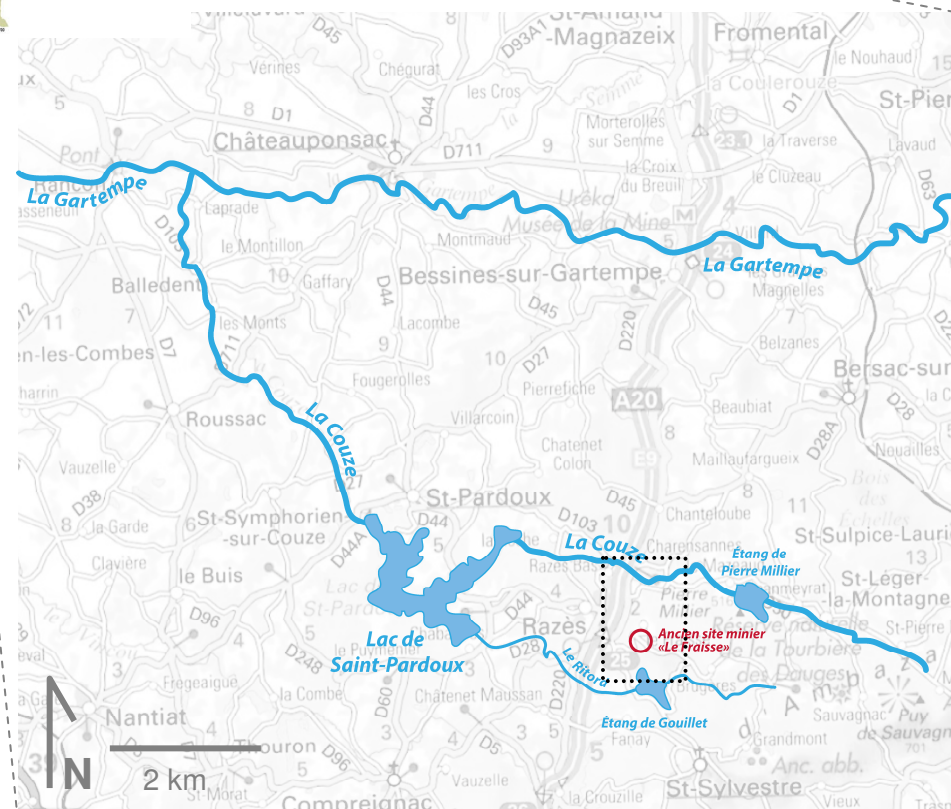
Figure 26 – Découpage des hydroécorégions en France métropolitaine. À gauche, découpage des 22 hydroécorégions de niveau 1 (HER1) ; à droite, découpage des 120 hydroécorégions de niveau 2 (HER2) - IRSTE

8.5 Étude de l'ancien site minier « Le Fraisse »

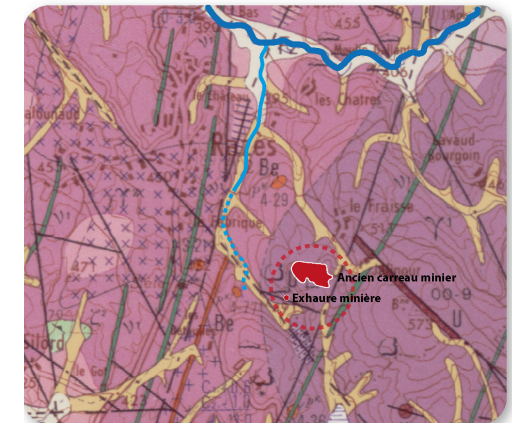
8.5.1 Contexte hydrographique du site du Fraisse (87)



D'après agences de l'eau



CARTE IGN CLASSIQUE (actuelle)

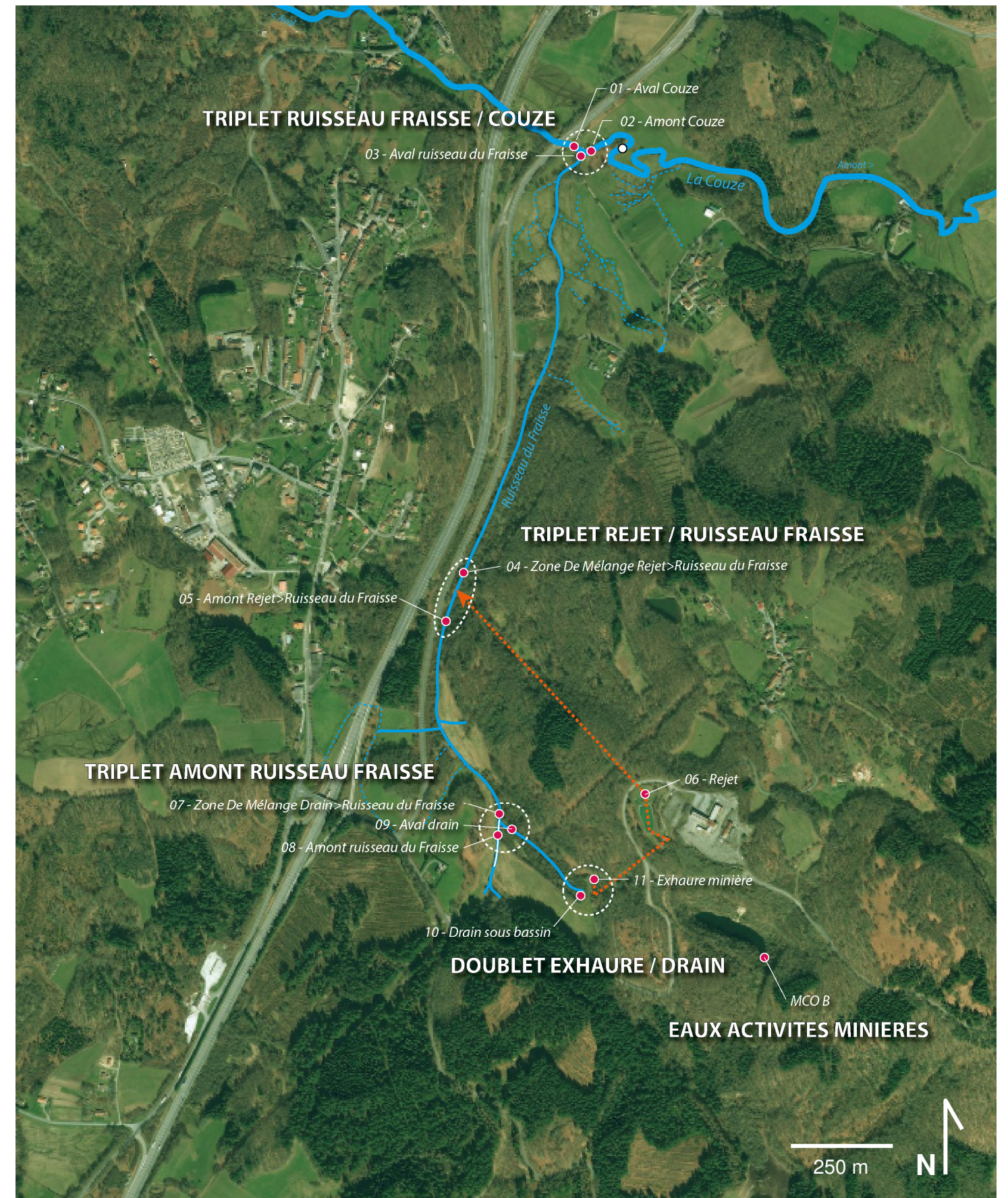
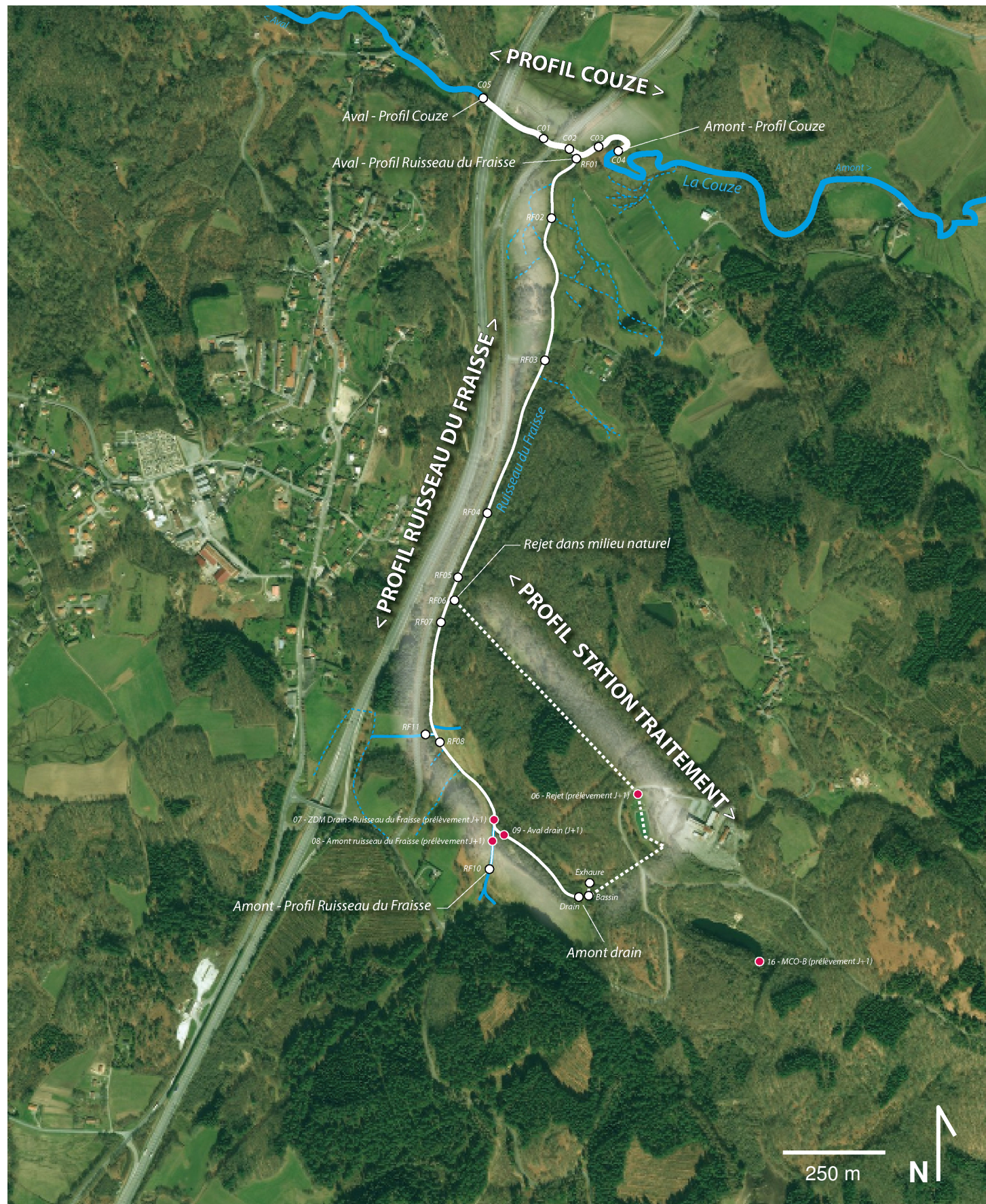


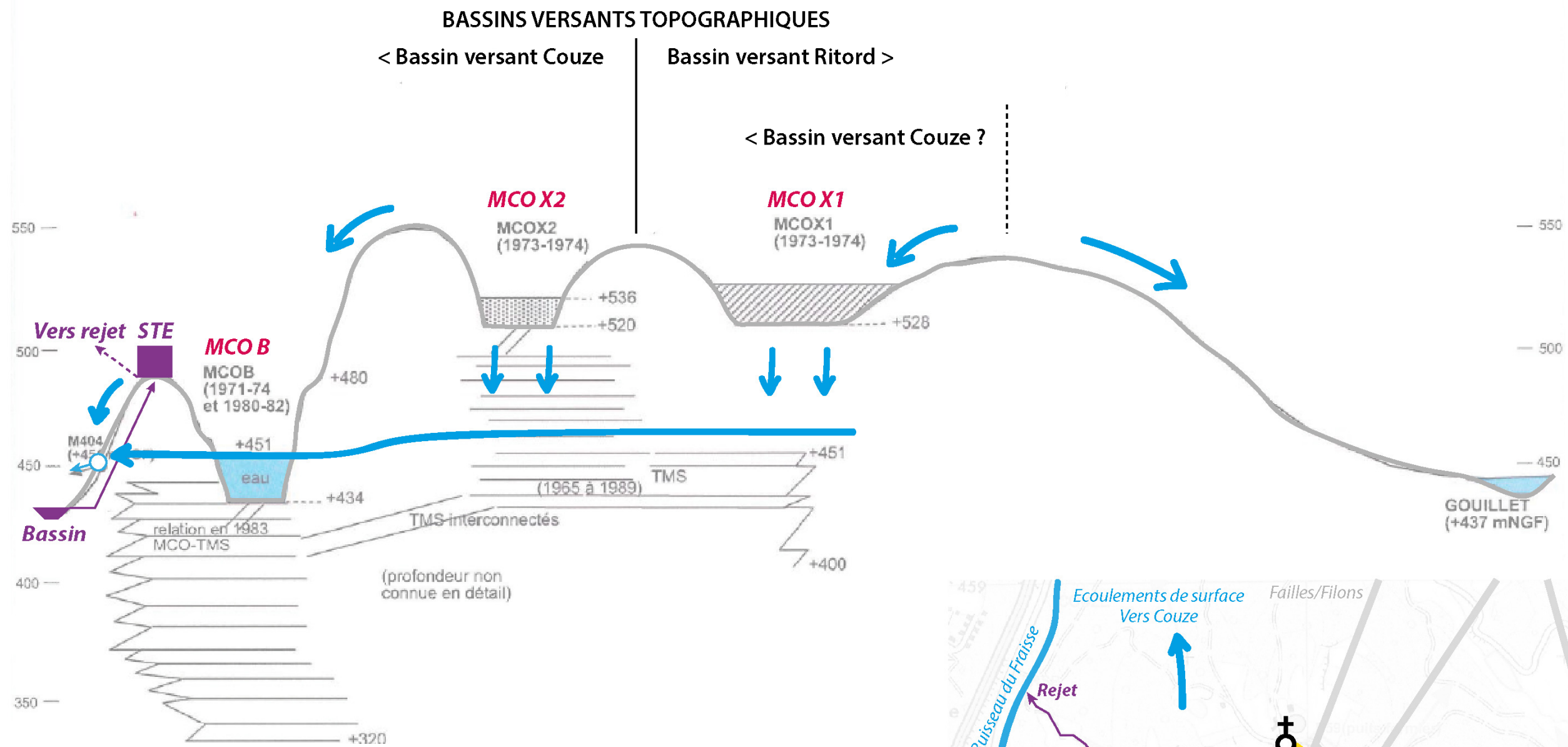
CARTE GEOLOGIQUE 1/50 000ème (actuelle)



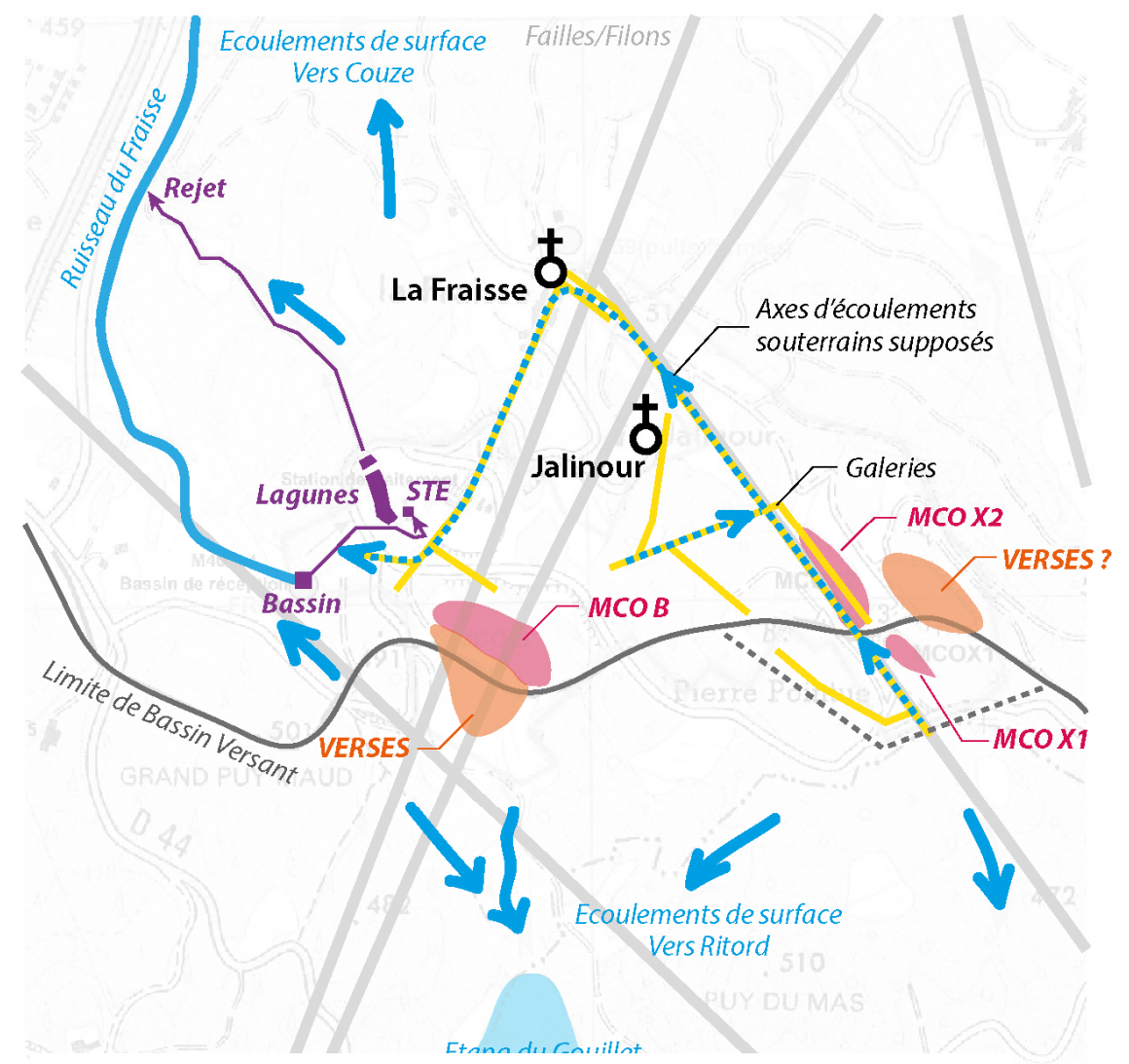
CARTE DE CASSINI (1740)

8.5.2 Campagne de mesure et de prélèvement du 09/08/2017 sur le site du Fraisse (localisation des profils physico-chimiques, à gauche ; localisation des points de mesure et de prélèvements des eaux, à droite)

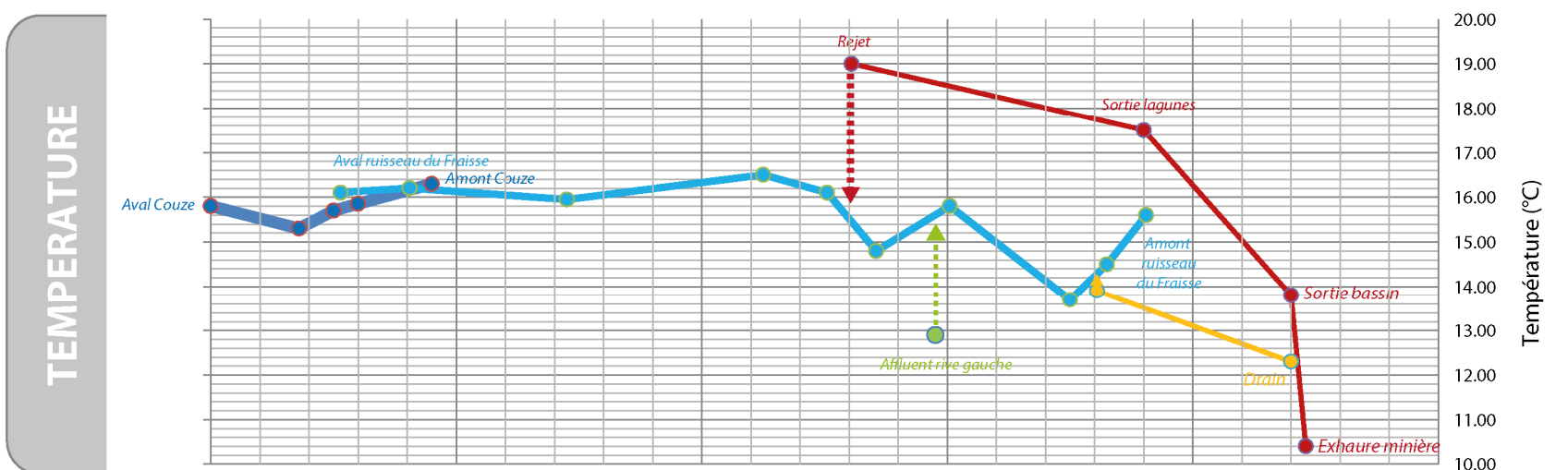
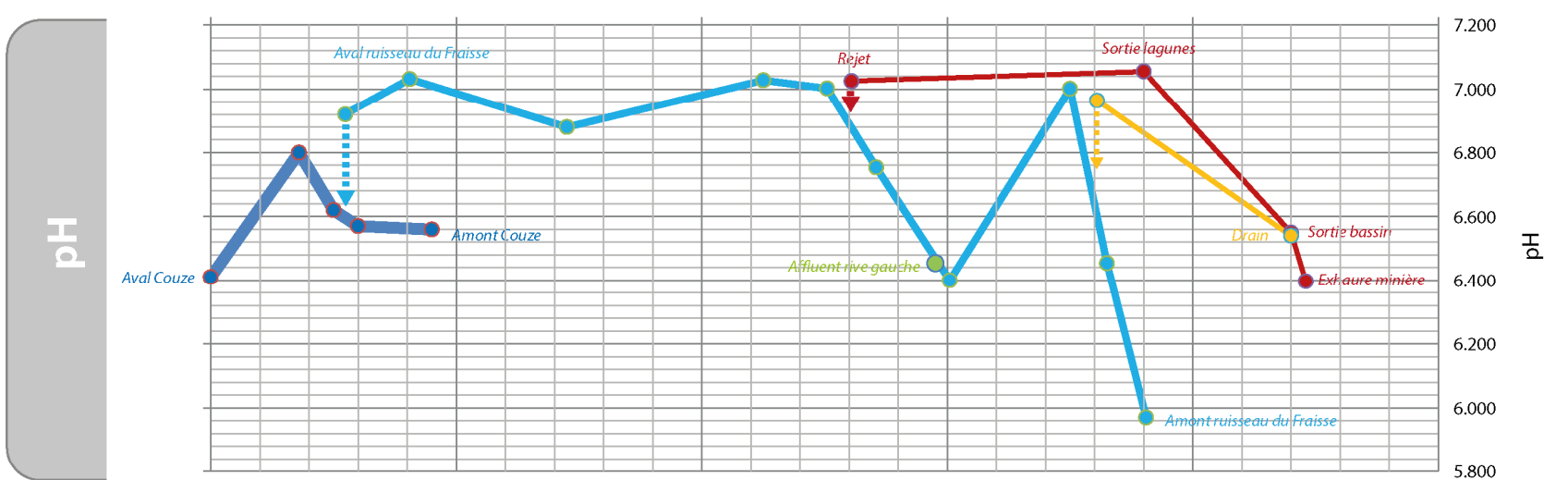
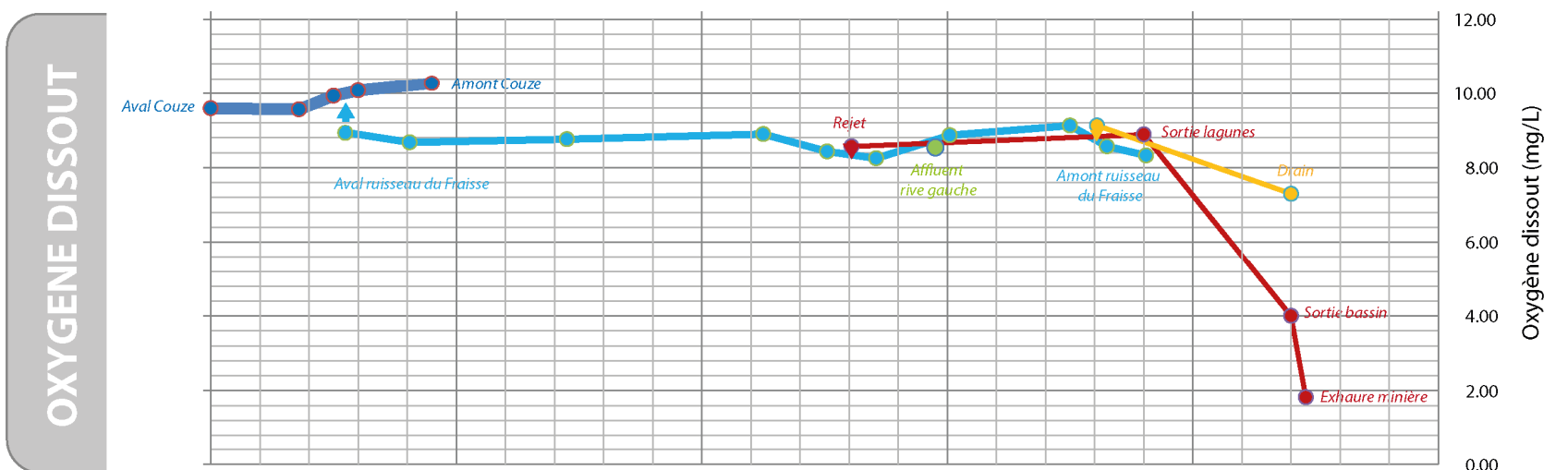
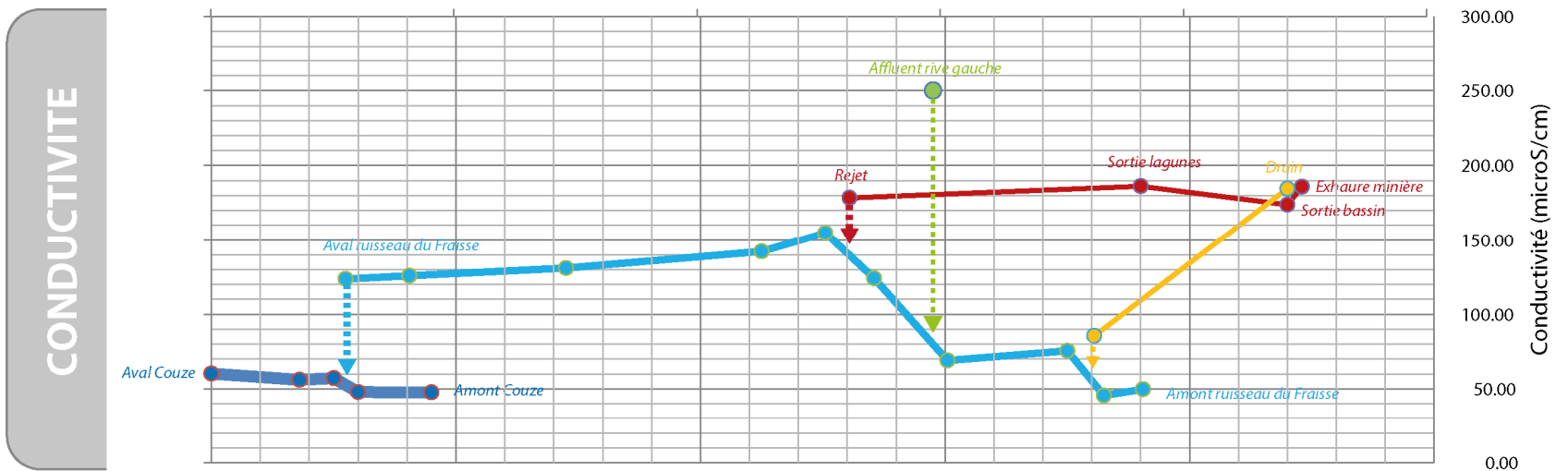
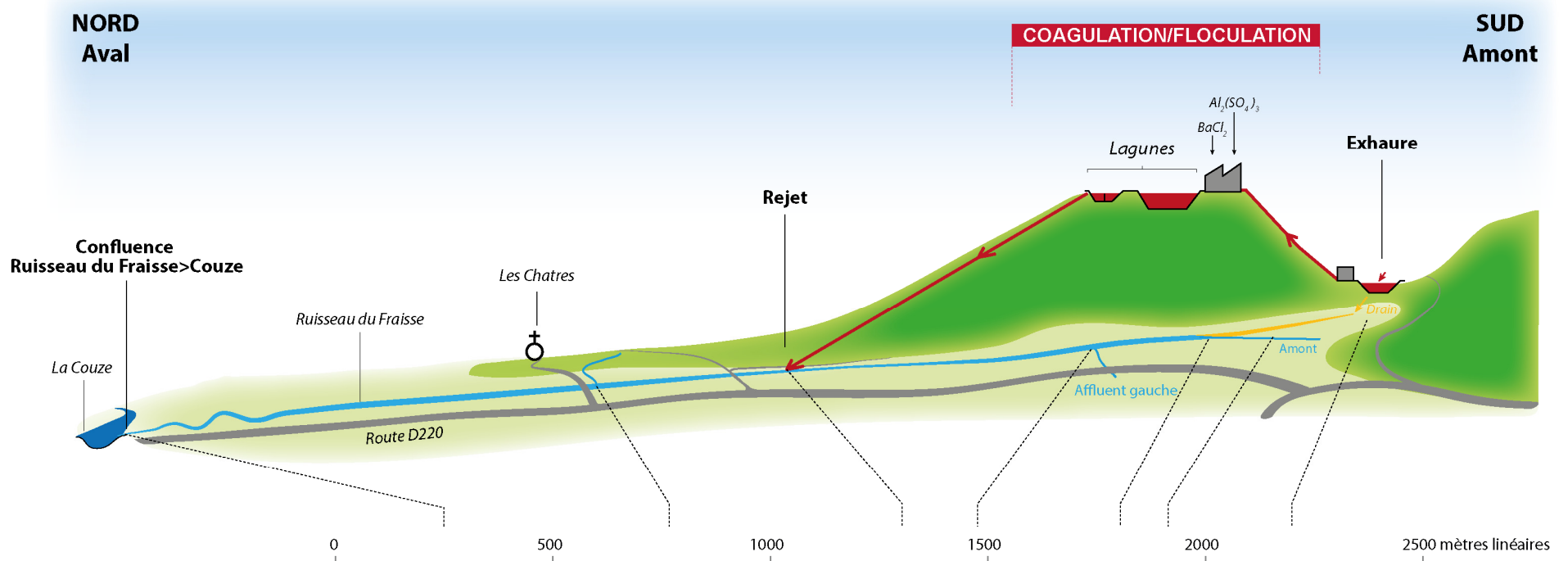




Coupe simplifiée et structuration des écoulements
 D'après étude environnementale, modifiée



Carte des écoulements sur le site du Fraisse



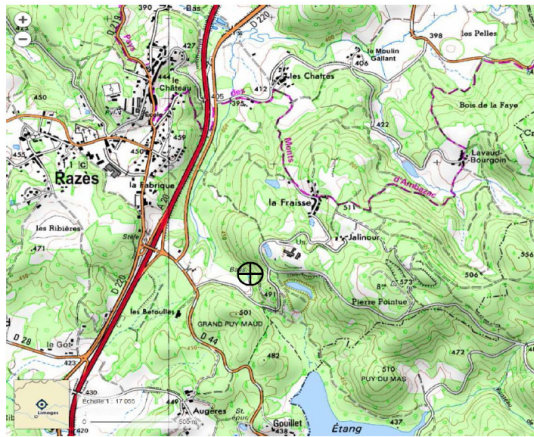
8.5.5 Exemple de fiche de mesure et de prélèvements (point « Exhaure »)

POINT DE MESURES/PRÉLÈVEMENTS – EAU DE SURFACE

RÉFÉRENCES & LOCALISATION

NOM CAMPAGNE	Le Fraisse (II), Août 2017		NOM DU POINT	11 - Exhaure	
DATE & HEURE	09/08/2017	11:29	MÉTÉO & TEMPÉRATURE	☐ ☀ ☑ ☁ ☐ ☔ ☐ ☂ 13 °C	
ADRESSE/COMMUNE	Razès (87640), lieu-dit "Le Fraisse"				
COORDONNÉES GPS	Projection	UTM 31T	X	372 525	Y 5 098 056

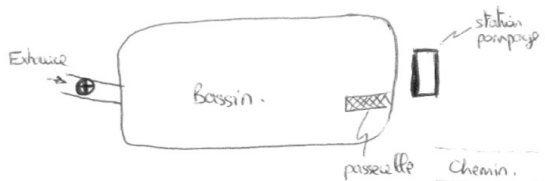
PLAN / CARTE



PHOTO



CROQUIS



REMARQUES / OBSERVATIONS

Mesures réalisées sur l'exhaure minière, environ 2 mètres à la sortie du point d'exhaure des eaux souterraines, au niveau du canal alimentant en cascade le bassin de stockage.
Présence importante de placages d'hydroxydes de fer en fond de canal.
Présence hypothétique d'odeurs (H₂S ?)

HYDROLOGIE

Débit	<input type="radio"/> Jaugé <input checked="" type="radio"/> Estimé	~120-180L/min	Remarques
-------	---	---------------	-----------

MESURES PHYSICO-CHIMIQUES - DONNEES BRUTES

Temps (ou heure)	☑ Température (°C)	☑ pH	☑ Conduct. (µS.cm ⁻¹)	☑ Redox (1) (mV) non corrigé	☑ O ₂ (mg/L)	☐ Turbidité (NTU)	☐ Redox (2)
11:28	10.4	6.515	188.6	16.6	1.56		
11:34	10.4	6.497	188.5	9.2	1.55		
11:38	10.4	6.506	188.5	5.8	1.56		
11:50	10.4	6.497	188.5	1.3	1.56		
11:56	10.4	6.506	188.3	4.4	1.54		
12:00	10.4	6.506	188.4	14.8	1.56		

ANALYSES & FLACONNAGES

ID	Identifiants échantillons	Analyses	Flacons (matériau)	Vol. (mL)	Filtration (µm)	Acidification			QAQC (OK)	
						Acide & Titrage	Vol. (µL)	pH		
1	11 - Exhaure C+ pH2	Cations	HDPE	125	0.2	☑	HNO3 69%	120	2	☑
2	11 - Exhaure A-	Anions	HDPE	250	0.2	☐				☑
3	11 - Exhaure COT pH2	COT	Verre ambré	250	0.2	☑	H2SO4, 1,6N	1500	2	☑
-						☐				☐
-						☐				☐
-						☐				☐
-						☐				☐

8.5.6 Calcul de la concentration en HCO_3^- à partir du CIT

Le carbone inorganique total correspond à la somme de toutes les espèces de carbone inorganique dans une solution, incluant l'ion hydrogénocarbonates (HCO_3^-), l'acide carbonique (H_2CO_3), et les ions carbonates (CO_3^{2-}).

$$\text{Carbone Inorganique Total (CIT)} = [\text{H}_2\text{CO}_3] + [\text{HCO}_3^-] + [\text{CO}_3^{2-}]$$



$$K_{a1} = \frac{[\text{HCO}_3^-] \times [\text{H}^+]}{[\text{H}_2\text{CO}_3]} \quad K_{a1} = 10^{-6.4} \quad pK_{a1} = -\log K_{a1} \quad pK_{a1} = 6.4$$

$$K_{a2} = \frac{[\text{CO}_3^{2-}] \times [\text{H}^+]}{[\text{HCO}_3^-]} \quad K_{a2} = 10^{-10.3} \quad pK_{a2} = -\log K_{a2} \quad pK_{a2} = 10.3$$

$$\text{Carbone Inorganique Total (CIT)} = [\text{H}_2\text{CO}_3] + [\text{HCO}_3^-] + [\text{CO}_3^{2-}]$$

$$[\text{H}_2\text{CO}_3] = \frac{[\text{HCO}_3^-] \times [\text{H}^+]}{K_{a1}}$$

$$[\text{CO}_3^{2-}] = \frac{K_{a2} \times [\text{HCO}_3^-]}{[\text{H}^+]}$$

$$\text{CIT} = \frac{[\text{HCO}_3^-] \times [\text{H}^+]}{K_{a1}} + [\text{HCO}_3^-] + \frac{K_{a2} \times [\text{HCO}_3^-]}{[\text{H}^+]}$$

$$\text{CIT} = [\text{HCO}_3^-] \left(\frac{[\text{H}^+]}{K_{a1}} + 1 + \frac{K_{a2}}{[\text{H}^+]} \right)$$

$$[\text{HCO}_3^-] = \frac{\text{CIT}}{\left(\frac{[\text{H}^+]}{K_{a1}} + 1 + \frac{K_{a2}}{[\text{H}^+]} \right)}$$

$$\text{pH} = -\log [\text{H}^+]$$

$$[\text{H}^+] = 10^{-\text{pH}}$$

$$[\text{HCO}_3^-] = \frac{\text{CIT}}{\left(\frac{10^{-\text{pH}}}{K_{a1}} + 1 + \frac{K_{a2}}{10^{-\text{pH}}} \right)}$$

$$[\text{HCO}_3^-] = \frac{\text{CIT}}{\left(\frac{10^{-\text{pH}}}{10^{-6.4}} + 1 + \frac{10^{-10.3}}{10^{-\text{pH}}} \right)}$$

8.5.7 Correction des mesures du potentiel d'oxydo-réduction

Les mesures du paramètre Redox doivent être corrigées pour prendre en compte la température et le type de sonde, et de la normaliser à une mesure Electrode Standard Hydrogène (ESH).

1. se munir de la feuille de calibration des sondes physico-chimiques, ou à défaut, de la notice de la sonde redox et de la solution de référence
2. définir la **valeur cible de la solution de contrôle** en fonction de la température lors de la phase de calibration, à partir du tableau indiqué sur le flacon de la solution (ou sur sa notice), et d'une extrapolation si nécessaire
3. calculer le **potentiel de jonction** de la sonde (interférences entre la sonde et le boîtier), en faisant la différence entre la valeur cible de la solution de contrôle en fonction de la température avec le potentiel redox mesuré par la sonde (**E mesuré**), selon la formule suivante :

$$\text{Potentiel de jonction} = \text{valeur cible de la solution de contrôle} - E \text{ mesuré}$$

4. définir le potentiel redox de référence (**E réf.** ou U ref.) par rapport à l'électrode ESH en fonction de la température de l'eau, à partir du tableau fourni par la notice de la sonde, et d'une extrapolation si nécessaire
5. corriger la valeur du potentiel redox (**E mesuré**) pour chaque mesure en suivant la formule suivante :

$$Eh \text{ (corrigé)} = E \text{ mesuré} + E \text{ réf.} + \text{Potentiel de jonction}$$

6. convertir la valeur de potentiel redox en Potentiel Eletrique (Pe) d'après la formule suivante :

$$Pe \text{ (V)} = \left(\frac{16.9 \times Eh}{1000} \right)$$

8.5.8 Calcul de la force ionique

La force ionique est calculée par l'application de la formule suivante :

$$I \text{ (mol.L}^{-1}\text{)} = \frac{1}{2} \sum_1^n \frac{C_i}{C_0} Z_i^2 = \frac{1}{2} \sum_1^n C_i Z_i^2$$

avec :

- Zi, valence de l'ion
- Ci, concentration molaire de l'ion
- C₀, concentration de référence 1 mol.L⁻¹

8.5.9 Exemple de script d'entrée PHREEQC (Point « 01-Aval Couze »)

```
22 #
23 SOLUTION 1 : 01-Aval Couze
24
25 #
26 #PHYSICO-CHEMIE
27 pH 6.94
28 temp (°C) 16.7
29 #Conductivité (µS/cm) 55.75
30 #PotentielRedox E (mV/ESH) 433.7
31 #Pe = 16,9xE/1000
32 Pe 7.4
33 #O2 dissout (mg/L) 9.87
34
35
36 #
37 #GENERAL
38 units mol/kgw
39
40 #
41 #MAJEURS
42 # Cations
43 Ca 7.36E-05
44 Na 1.98E-04
45 K 4.25E-05
46 Mg 3.46E-05
47 Sr 1.60E-07
48
49 # Anions S(6):SO42- C(4):HCO3- Si:
50 Cl 1.66E-04
51 S(6) 4.16E-05
52 C(4) 2.06E-05
53 F 7.37E-06
54 Si 1.53E-04
55
56 # Espèces azotées (-3):NH4+ (+3): NO2- (+5):NO3-
57 #N(-3) 1.28E-06
58 #N(+3) 5.43E-06
59 #N(+5) 3.84E-05
60
61 #
62 #TRACES
63
64 P 2.11E-06
65 Al 3.00E-06
66 Ba 1.31E-07
67 Cu 7.87E-08
68 Fe 2.10E-05
69 Mn 2.36E-07
70 Pb 4.70E-08
71 Zn 7.65E-08
72 Li 1.45E-06
73 #Cd 4.45E-08
74 #Cr 9.62E-08
75 #As 6.67E-08
76 #Co 8.48E-08
77 #Mo 5.21E-08
78 #Ni 8.52E-08
79 #Se 6.33E-08
80 #V 9.82E-08
81 #Bi 2.39E-08
82 #Cs 7.52E-09
83 #Tl 1.14E-08
84 #W 1.09E-07
85
86 U 5.46E-09
87
88 END
```


8.5.11 Spéciations de l'uranium de chacun des points de prélèvements de la campagne du 09/08/2017, selon modélisations PHREEQC

		RESULTATS PHREEQC >							
ID_resultats	Date	pH	pe	Activity	Ionic strength	Total alcalinity	Total CO2	Electrical balance	Percent error
Aval Couze	09/08/2017	6.94	7.4	1	5.18E-04	7.30E-05	2.06E-05	2.00E-04	27.2%
Amont Couze	09/08/2017	6.899	7.2	1	4.57E-04	7.30E-05	1.93E-05	1.76E-04	26.6%
Aval R. Fraisse	09/08/2017	7.171	6.9	1	1.41E-03	5.11E-05	4.24E-05	4.41E-04	23.8%
ZDM Rejet / R. Fraisse	09/08/2017	7.002	5.1	1	1.71E-03	5.35E-05	4.34E-05	5.92E-04	26.0%
ZDM Rejet/Ruisseau du Fraisse (bis)	06/07/2017	7.06	4.6	1	1.82E-03	5.09E-05	4.48E-05	4.08E-04	17.1%
Rejet	09/08/2017	7.055	8.3	1	2.24E-03	5.78E-05	6.29E-05	6.55E-04	25.1%
Rejet (bis)	06/07/2017	6.9	6.3	1	2.21E-03	4.64E-05	5.27E-05	6.61E-04	25.4%
Amont Rejet / R. Fraisse	09/08/2017	6.754	4.8	1	1.21E-03	5.93E-05	3.23E-05	4.12E-04	22.6%
Amont Rejet / Ruisseau du Fraisse (bis)	06/07/2017	6.64	3.9	1	1.29E-03	3.41E-05	3.09E-05	4.10E-04	21.1%
Aval Drain / R. Fraisse	09/08/2017	7.001	4.9	1	8.03E-04	4.93E-05	3.41E-05	3.04E-04	27.9%
Aval drain	09/08/2017	6.964	5.9	1	8.92E-04	4.89E-05	4.05E-05	3.46E-04	29.4%
Drain	09/08/2017	6.822	3.6	1	2.05E-03	2.00E-04	1.31E-04	1.45E-03	61.6%
Exhaure	09/08/2017	6.497	3.5	1	2.10E-03	6.14E-05	6.97E-05	1.07E-03	44.5%
MCO-B	09/08/2017	7.349	7.6	1	1.49E-03	5.75E-05	5.86E-05	4.78E-04	27.2%
Amont R. Fraisse	09/08/2017	6.454	5.4	1	4.60E-04	3.27E-05	1.26E-05	9.85E-05	13.4%

		Spéciation U						U(6) biodisponible									
ID_resultats	Date	U(3)	U(4)	U(5)	U(6)	Utotal	U(6) biodisponible	U(6) biodisponible	UO2(OH)+	UO2(OH)+	UO2(OH)2	UO2(OH)2	UO2CO3	UO2CO3	U biod. total	U biod. total	
-	-	mol/L	mol/L	mol/L	mol/L	mol/L	μg/L	μg/L	mol/L	μg/L	mol/L	μg/L	mol/L	μg/L	mol/L	μg/L	
Aval Couze	09/08/2017	0.00E+00	5.00E-27	3.55E-17	5.46E-09	5.46E-09	1.30	3.78E-11	1.02E-02	1.45E-09	4.15E-01	8.06E-10	2.45E-01	1.55E-09	5.10E-01	3.84E-09	1.18
Amont Couze	09/08/2017	0.00E+00	1.59E-26	7.08E-17	5.88E-09	5.88E-09	1.40	4.00E-11	1.08E-02	1.61E-09	4.63E-01	8.15E-10	2.48E-01	1.66E-09	5.47E-01	4.08E-09	1.27
Aval R. Fraisse	09/08/2017	0.00E+00	1.35E-26	3.11E-17	5.88E-09	5.88E-09	1.40	1.50E-10	4.05E-02	1.22E-09	3.50E-01	6.82E-10	2.07E-01	1.57E-09	5.19E-01	3.63E-09	1.12
ZDM Rejet / R. Fraisse	09/08/2017	0.00E+00	1.42E-22	5.17E-15	8.82E-09	8.82E-09	2.10	2.11E-10	5.70E-02	1.47E-09	4.22E-01	1.22E-09	3.70E-01	2.56E-09	8.46E-01	5.46E-09	1.69
ZDM Rejet/Ruisseau du Fraisse (bis)	06/07/2017	0.00E+00	1.43E-21	1.65E-14	1.22E-08	1.22E-08	2.90	2.83E-10	7.63E-02	1.94E-09	5.55E-01	1.73E-09	5.25E-01	3.23E-09	1.07E+00	7.18E-09	2.22
Rejet	09/08/2017	0.00E+00	6.94E-29	4.04E-18	2.14E-08	2.14E-08	5.09	3.39E-10	9.15E-02	3.70E-09	1.06E+00	2.31E-09	7.02E-01	5.84E-09	1.93E+00	1.22E-08	3.78
Rejet (bis)	06/07/2017	0.00E+00	1.58E-24	9.09E-16	2.44E-08	2.44E-08	5.81	6.18E-10	1.67E-01	3.53E-09	1.01E+00	2.68E-09	8.15E-01	7.23E-09	2.38E+00	1.41E-08	4.38
Amont Rejet / R. Fraisse	09/08/2017	0.00E+00	8.67E-22	1.55E-14	4.20E-09	4.20E-09	1.00	6.78E-11	1.83E-02	1.03E-09	2.96E-01	7.08E-10	2.15E-01	1.14E-09	3.78E-01	2.95E-09	0.91
Amont Rejet / Ruisseau du Fraisse (bis)	06/07/2017	0.00E+00	8.01E-20	1.78E-13	4.62E-09	4.62E-09	1.10	9.09E-11	2.45E-02	1.15E-09	3.30E-01	6.07E-10	1.84E-01	1.44E-09	4.75E-01	3.29E-09	1.01
Aval Drain / R. Fraisse	09/08/2017	0.00E+00	3.89E-22	8.81E-15	8.40E-09	8.40E-09	2.00	1.35E-10	3.64E-02	1.60E-09	4.58E-01	1.31E-09	3.97E-01	2.20E-09	7.26E-01	5.24E-09	1.62
Aval drain	09/08/2017	0.00E+00	4.73E-24	1.07E-15	1.01E-08	1.01E-08	2.40	2.07E-10	5.58E-02	1.63E-09	4.68E-01	1.46E-09	4.43E-01	2.99E-09	9.86E-01	6.28E-09	1.95
Drain	09/08/2017	0.00E+00	2.01E-19	2.30E-13	1.18E-08	1.18E-08	2.81	2.70E-10	7.30E-02	1.55E-09	4.46E-01	1.13E-09	3.44E-01	5.08E-09	1.68E+00	8.03E-09	2.54
Exhaure	09/08/2017	0.00E+00	9.59E-18	8.42E-12	1.30E-07	1.30E-07	30.95	4.44E-09	1.20E+00	1.69E-08	4.86E+00	1.56E-08	4.73E+00	3.82E-08	1.26E+01	7.51E-08	23.40
MCO-B	09/08/2017	0.00E+00	8.19E-28	9.51E-18	4.16E-08	4.16E-08	9.90	6.05E-10	1.63E-01	5.54E-09	1.59E+00	4.24E-09	1.29E+00	1.26E-08	4.14E+00	2.29E-08	7.18
Amont R. Fraisse	09/08/2017	0.00E+00	4.10E-22	2.77E-14	1.09E-08	1.09E-08	2.59	1.28E-10	3.46E-02	2.12E-09	6.09E-01	1.49E-09	4.54E-01	3.69E-09	1.22E+00	7.43E-09	2.31

MÉMOIRE DE FIN D'ETUDES

Diplôme :

Mastère

Spécialité :

Eau Potable et Assainissement (EPA)

Auteur :

REILÉ Benoît

Année :

2017

Titre :

« *Approche multiscalaire dans l'évaluation de la biodisponibilité de l'uranium des eaux de surface* »

Nombre de pages : texte principal : 60 pages annexes 20 pages

Nombre de références bibliographiques : 45 références

Structure d'accueil :

AREVA Mines, 1 place Jean Millier, 92084 Paris LA Défense CEDEX

Maître de stage :

PAYRAUDEAU Sylvain (ENGEES), DESCOSTES Michael (AREVA)

Résumé

Le passif minier uranifère français implique la gestion des rejets dans le milieu naturel. La réglementation qui impose seulement des concentrations au rejet, semble évoluer vers une prise en compte des milieux récepteurs. Les méthodes d'évaluation proposées par l'INERIS/IRSN reposent sur la définition de Valeurs Guides Environnementales prenant en considération la fraction biodisponible (écotoxique) de l'uranium, mais également son bruit de fond. De façon multiscalaire, le présent mémoire s'attache à comprendre la distribution naturelle de l'uranium dans les cours d'eau, à évaluer le risque réglementaire sur le passif minier, et à appliquer les méthodes d'évaluation sur un site en particulier.

Mots-clés :

uranium, eau, biodisponibilité, PNGMDR, VGE, bruit de fond, FOREGS