

# IRSN

INSTITUT  
DE RADIOPROTECTION  
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

*Faire avancer la sûreté nucléaire*

## Accumulation de radionucléides et d'éléments traces métalliques autour d'une ancienne mine d'uranium

*De l'échelle kilométrique à micrométrique*



*Thèse codirigée par Gaël le Roux (EcoLab) et Laurent Pourcelot  
(IRSN) et soutenue le 06/11/15*

### Journées techniques de la SFRP

section environnement

6 et 7 février 2019



CUVIER Alicia

# Sommaire

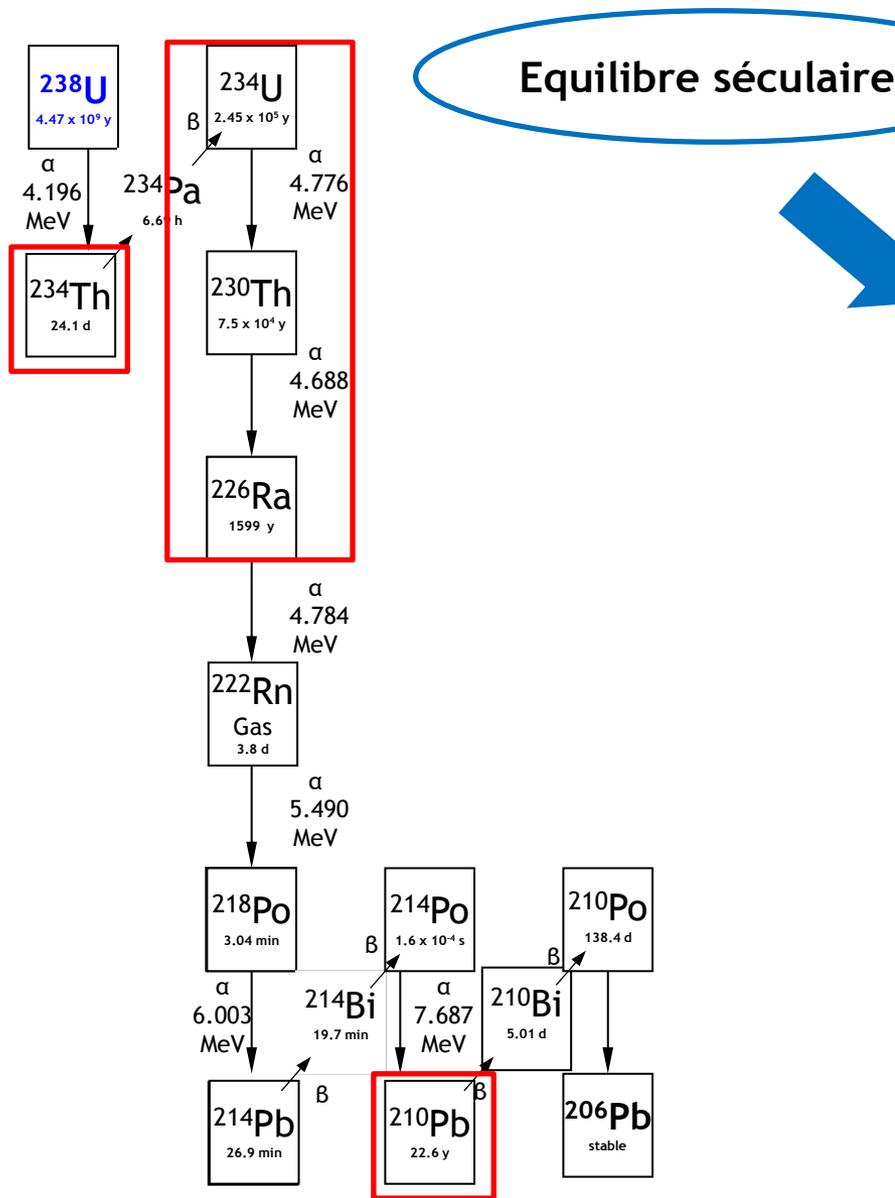
## I- Introduction

## II- Matériel et méthodes

## III- Résultats et discussion

- **Partie I** : Evaluation de l'impact du site minier sur les radionucléides naturels (U-238, Ra-226, Th-230 et Th-232)
- **Partie II** : Evaluation de l'impact du site minier sur la distribution des éléments trace métalliques

## IV- Conclusion



## Propriétés physico-chimiques

- Rn → Gaz
- U → soluble en conditions oxiques
- Mobilité : U > Ra > Th

## Perturbations anthropiques

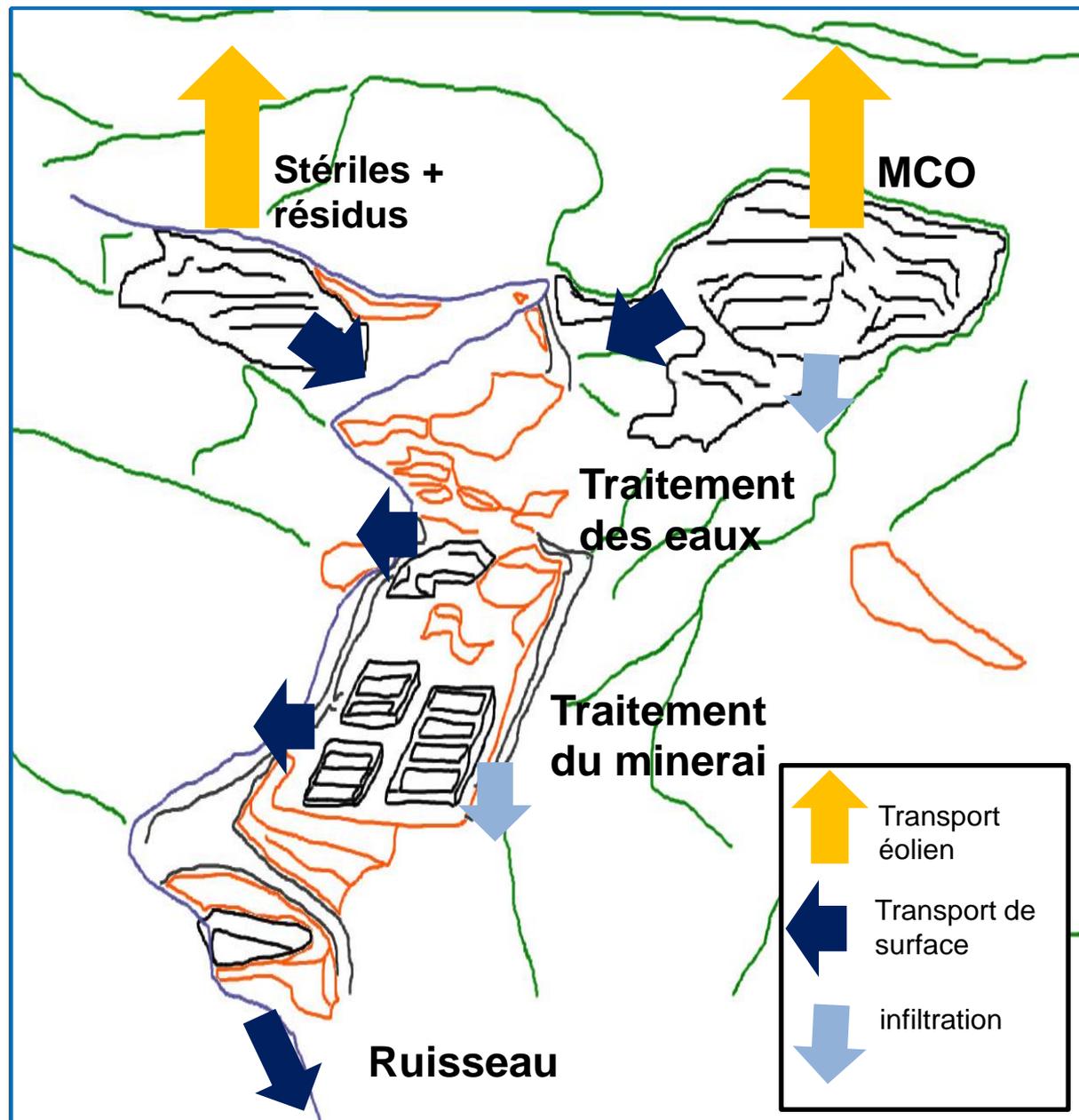
Modification de l'environnement

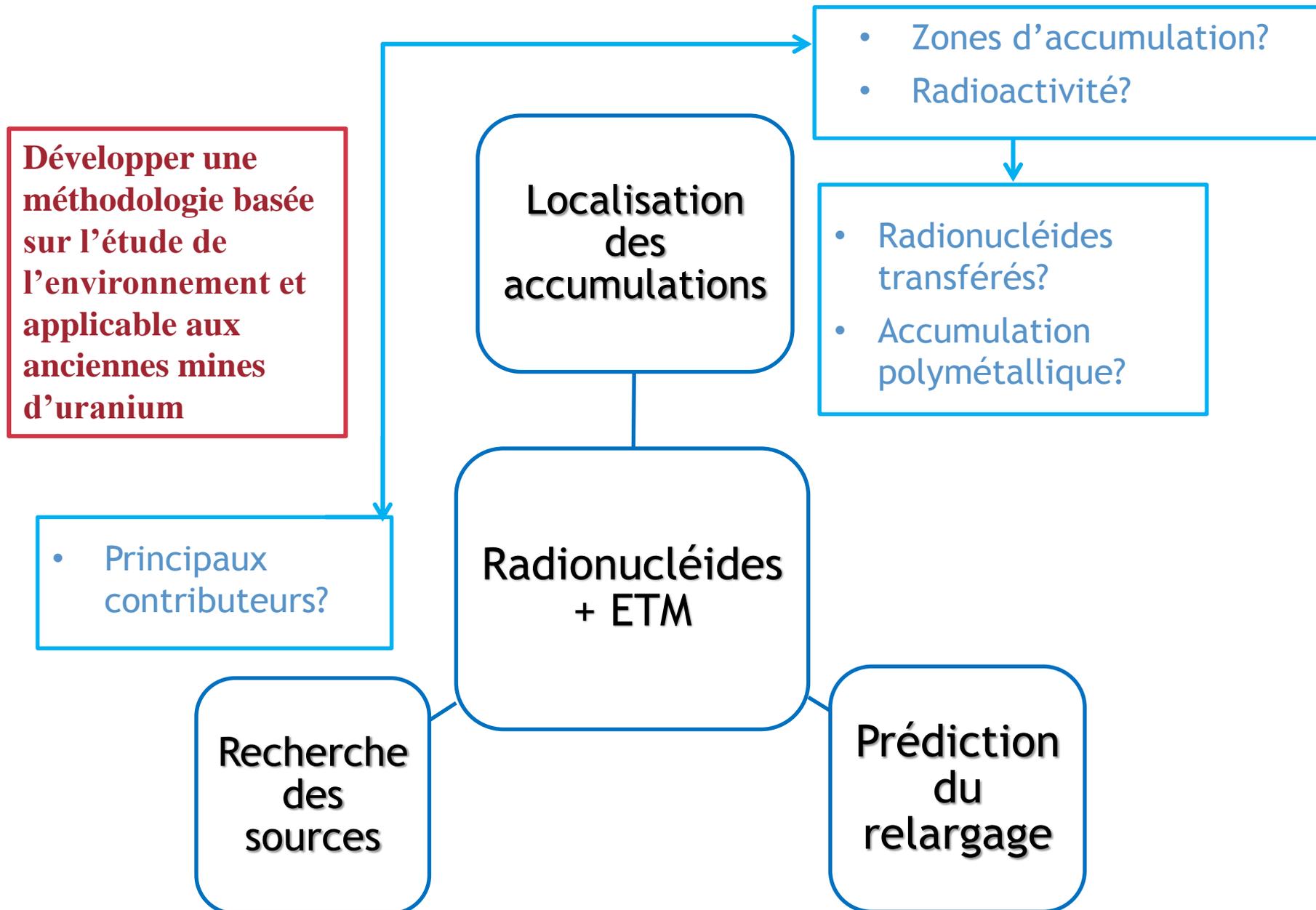
Extraction / Traitement

**Augmentation du déséquilibre radioactif**

## Vecteurs potentiels?

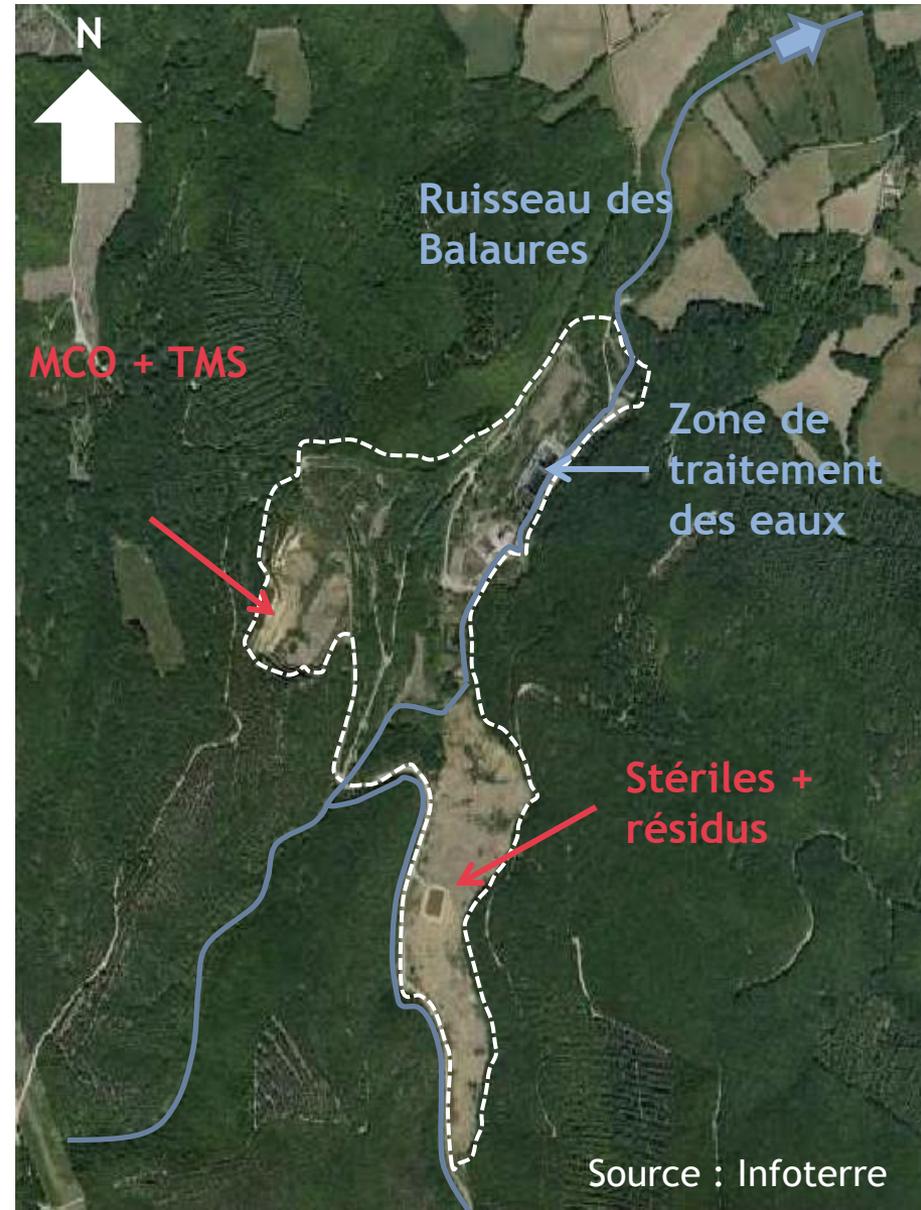
- Vents/  
Atmosphère
- Eaux de surface  
(précipitations,  
cours d'eau)
- Eaux souterraines  
(infiltrations)



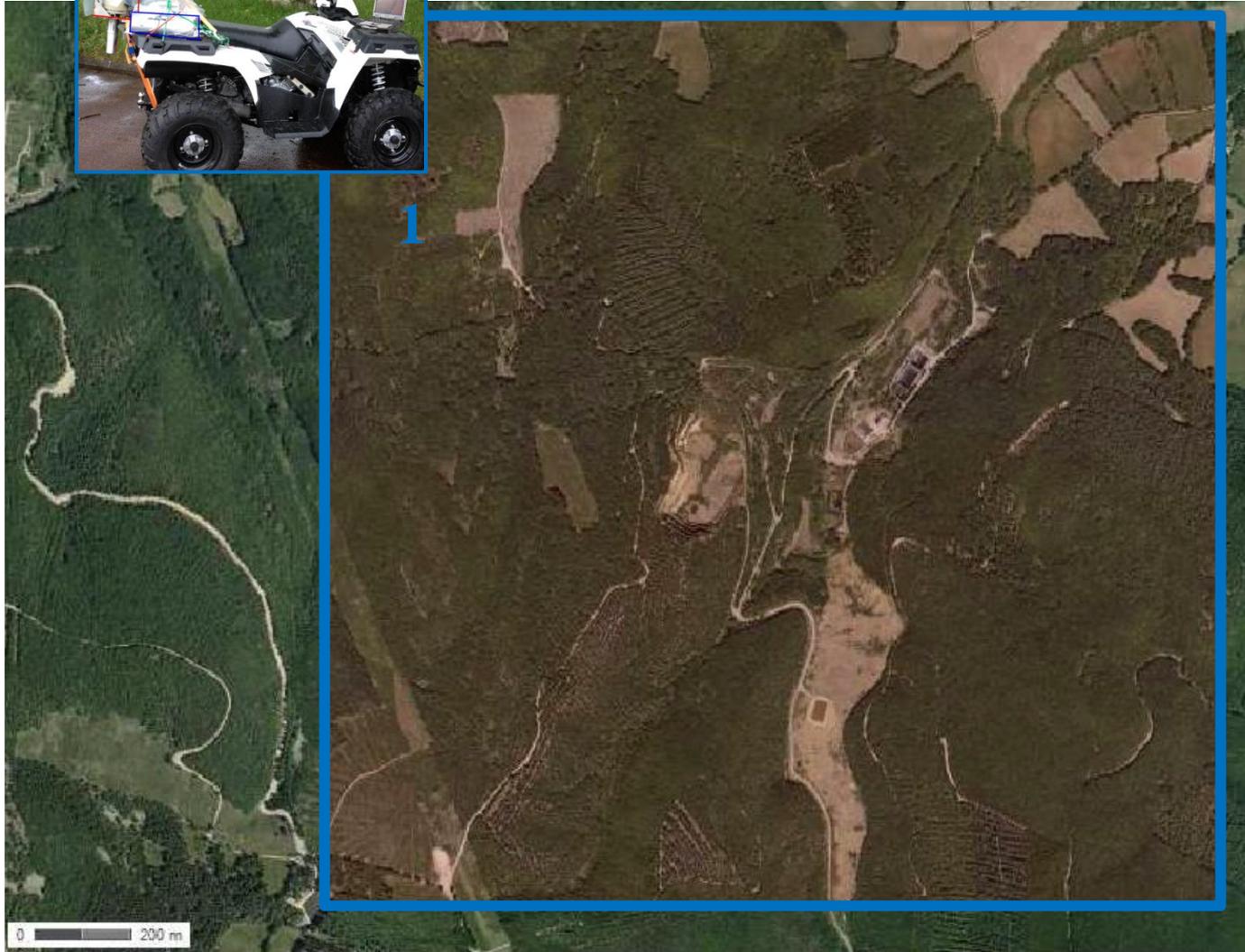


### Mine d'uranium de Bertholène (Aveyron, France)

- Exploitation : 1977-1995
- Minéralisation : **Coffinite + minéraux U (IV)** (altération de surface)
- **Traitement in situ** (750 t de minerai extrait) : **lixiviation en tas**
- **476 000 t de résidus**(stockés sur site)
- Actuellement → **traitement des eaux** (surfaces et souterraines) avant rejet dans les Balaures

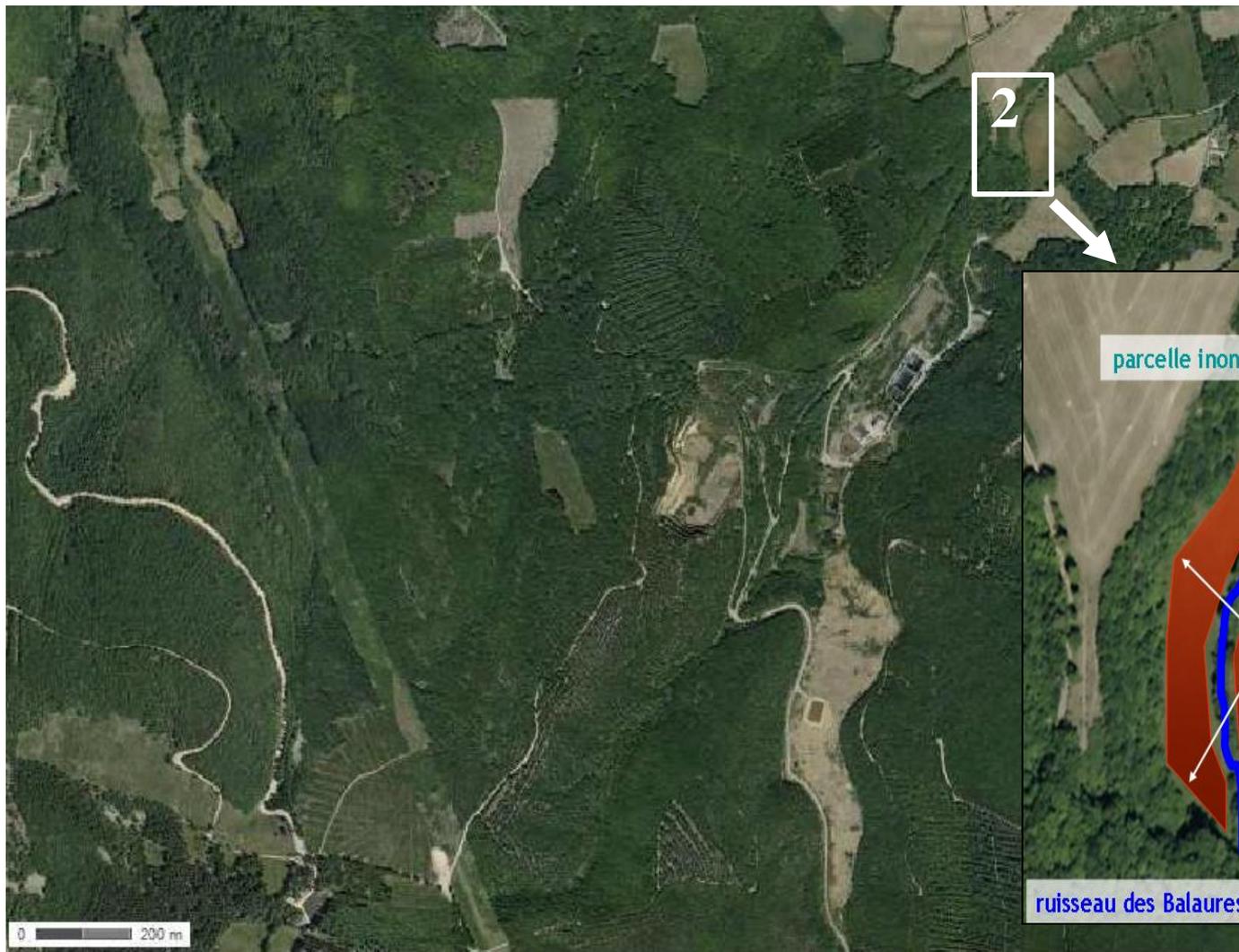


### Identification des zones d'accumulation



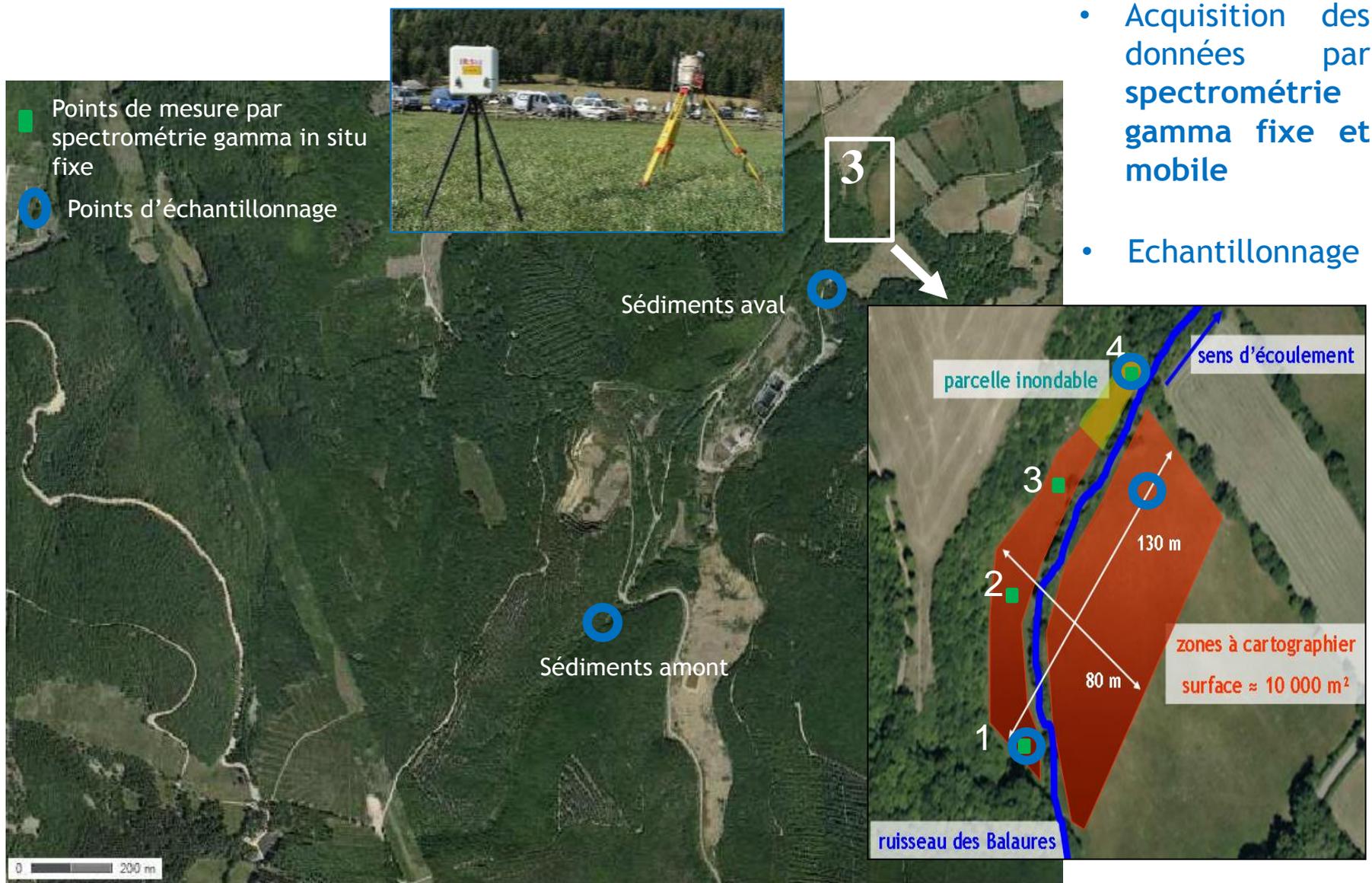
1- Pré-screening de l'environnement du site par spectrométrie gamma in situ mobile (MARCASSIN) (IRSN)

### Identification des zones d'accumulation



2- Identification des accumulations en radionucléides

### Identification des zones d'accumulation

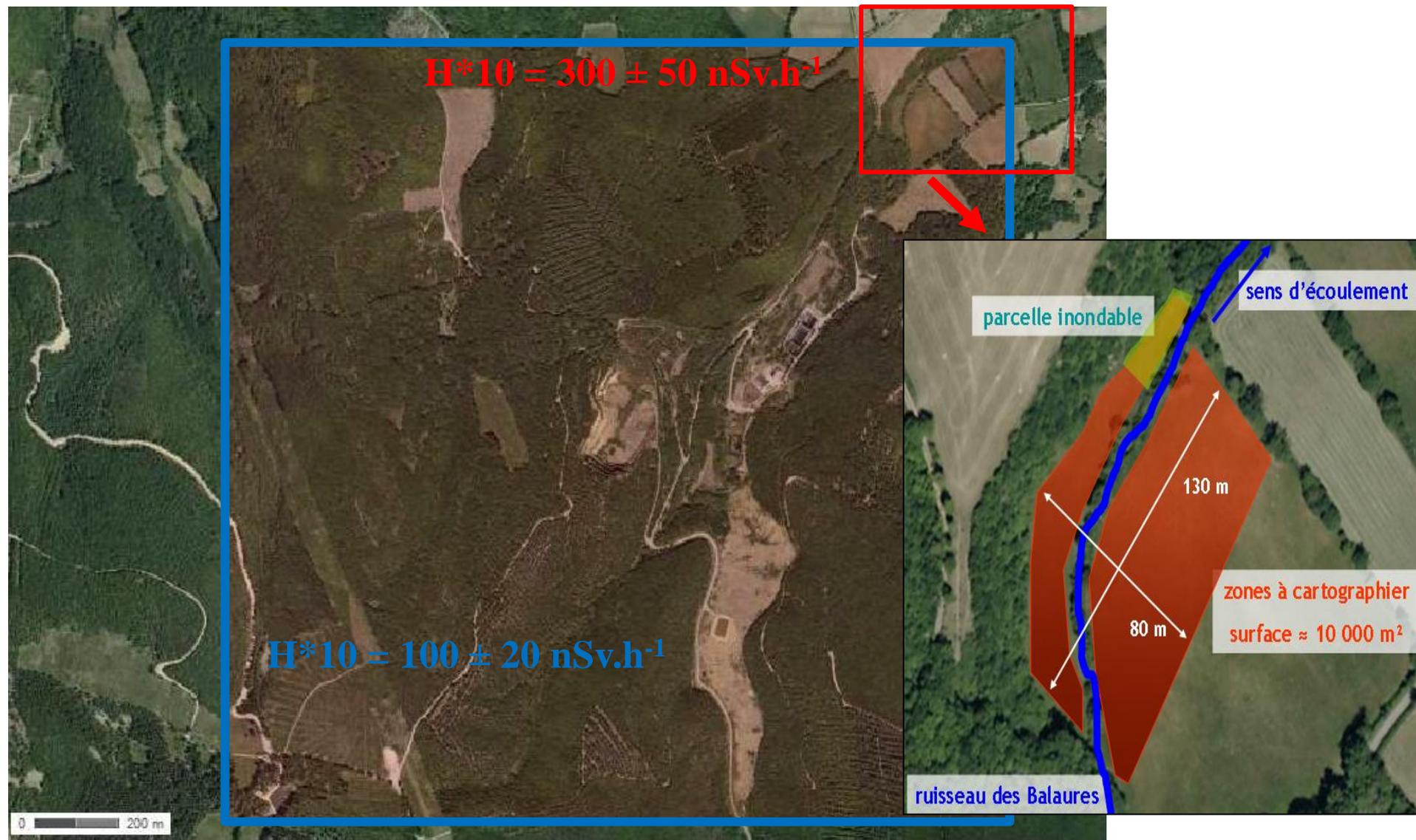


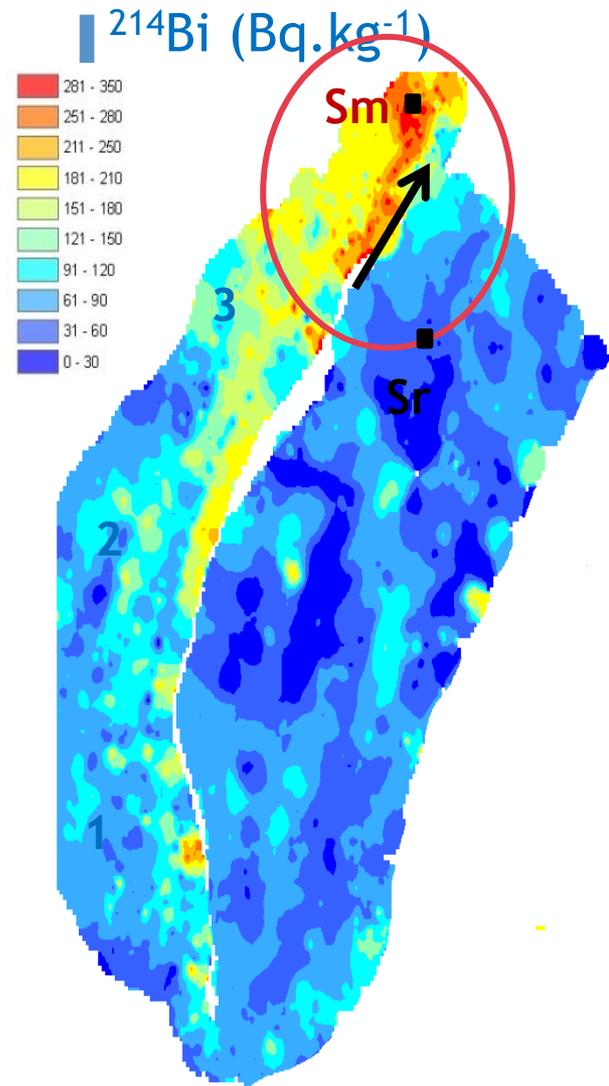
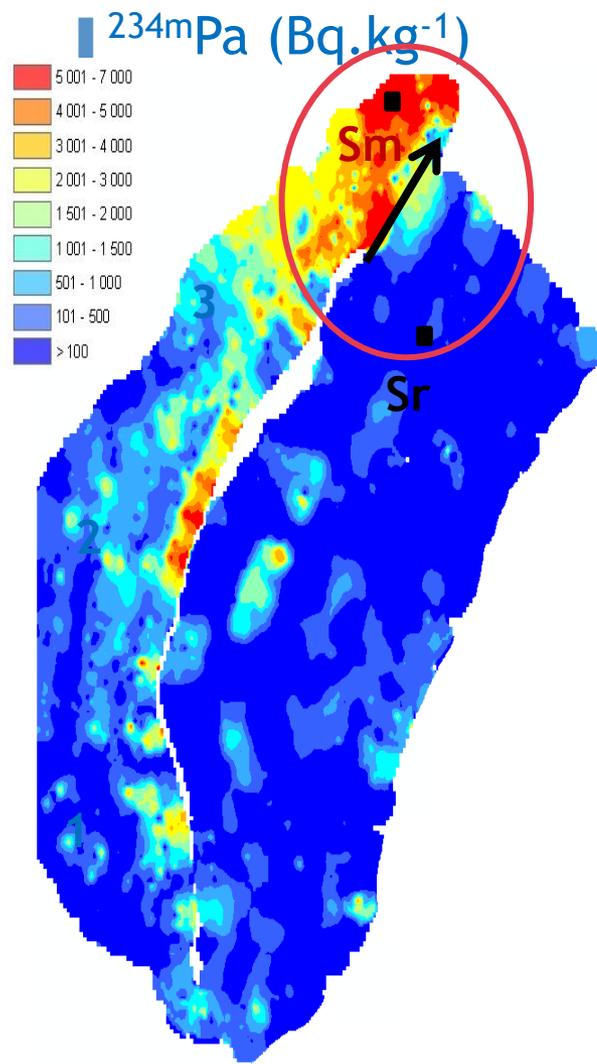
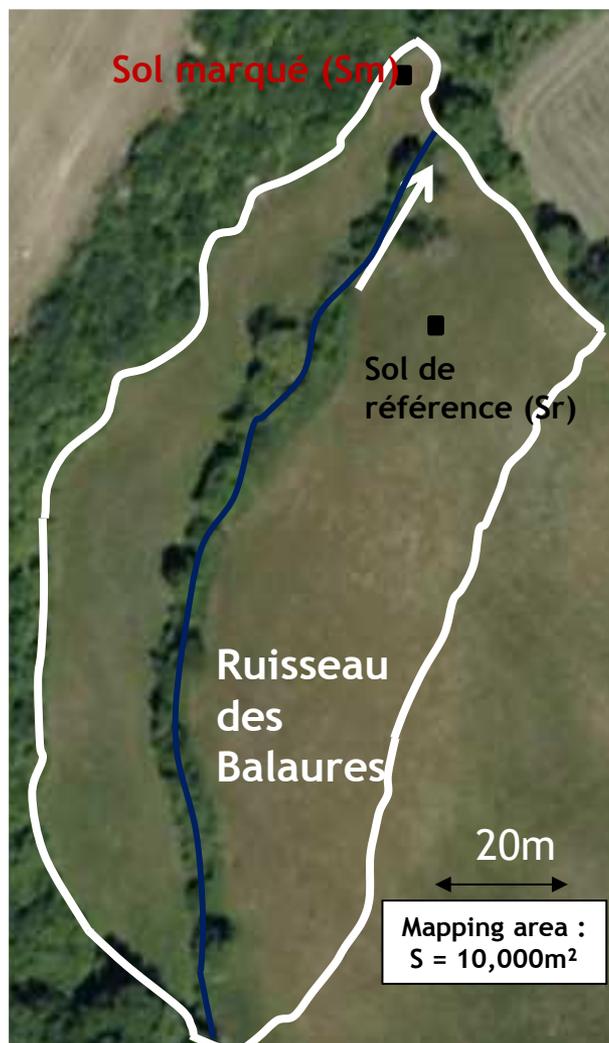
- Acquisition des données par spectrométrie gamma fixe et mobile
- Echantillonnage

# Partie 1 :

## Evaluation de l'impact du site minier sur la distribution des radionucléides naturels (U-238, Ra-226, Th-230 et Th-232)

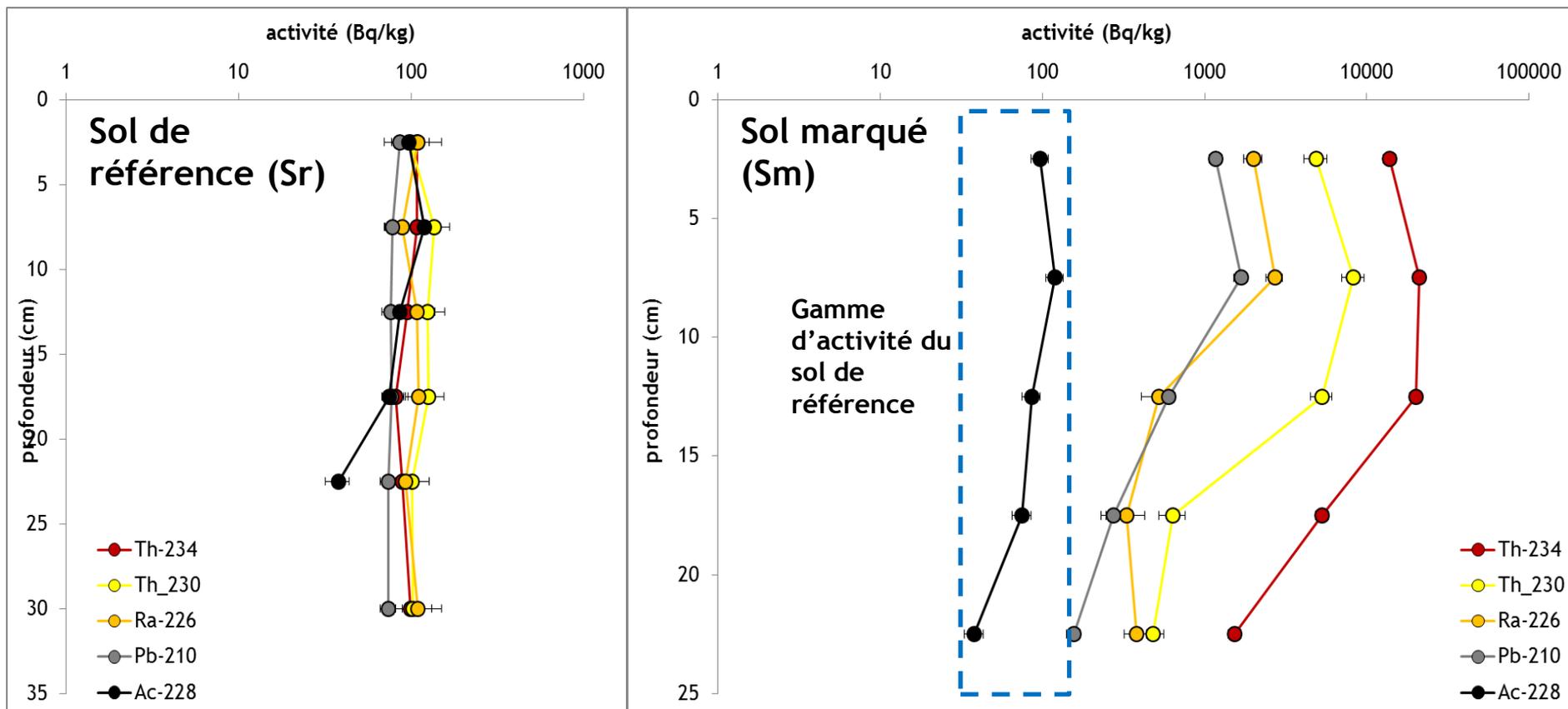
*A. Cuvier, F. Panza, L. Pourcelot, B. Foissard, X. Cagnat, J. Prunier, P. van Beek, M. Souhaut, G. Le Roux, 2015 : Uranium decay daughters from isolated mines: Accumulation and sources, Journal of Environmental Radioactivity, Volume 149*





Identification d'une zone à forte activité d'uranium et de radium en aval du site minier

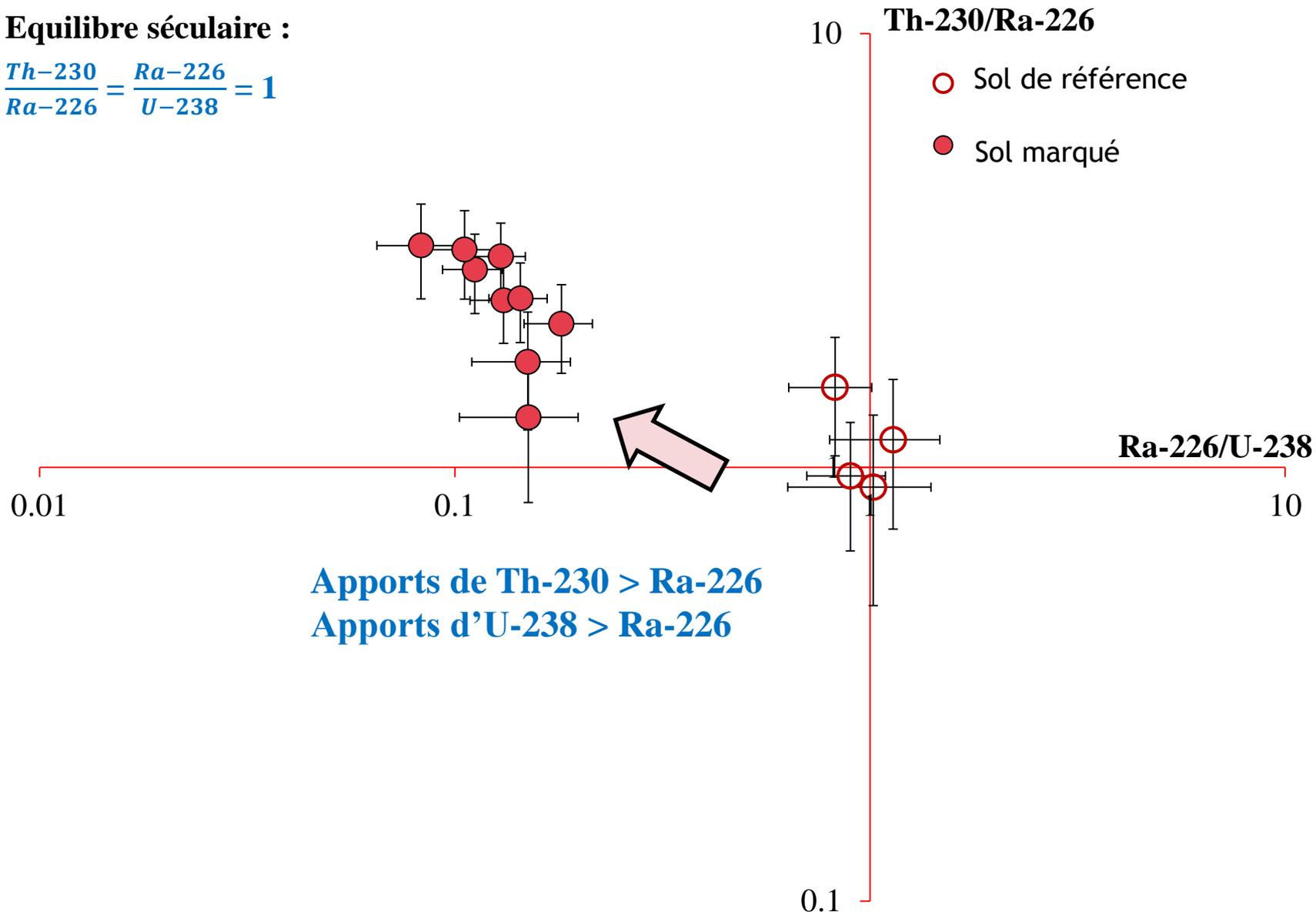
## Sols alluviaux, pH 6-7

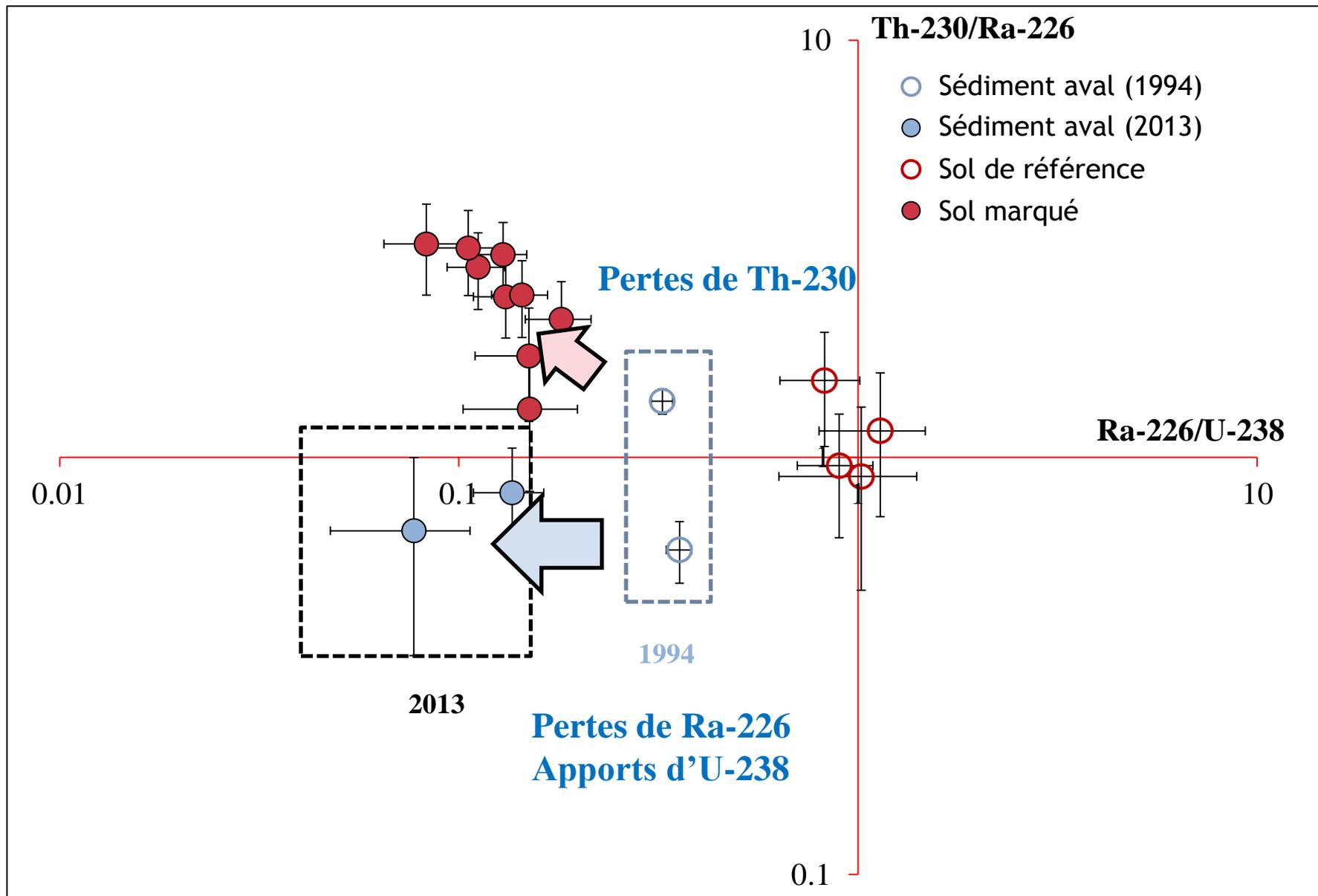


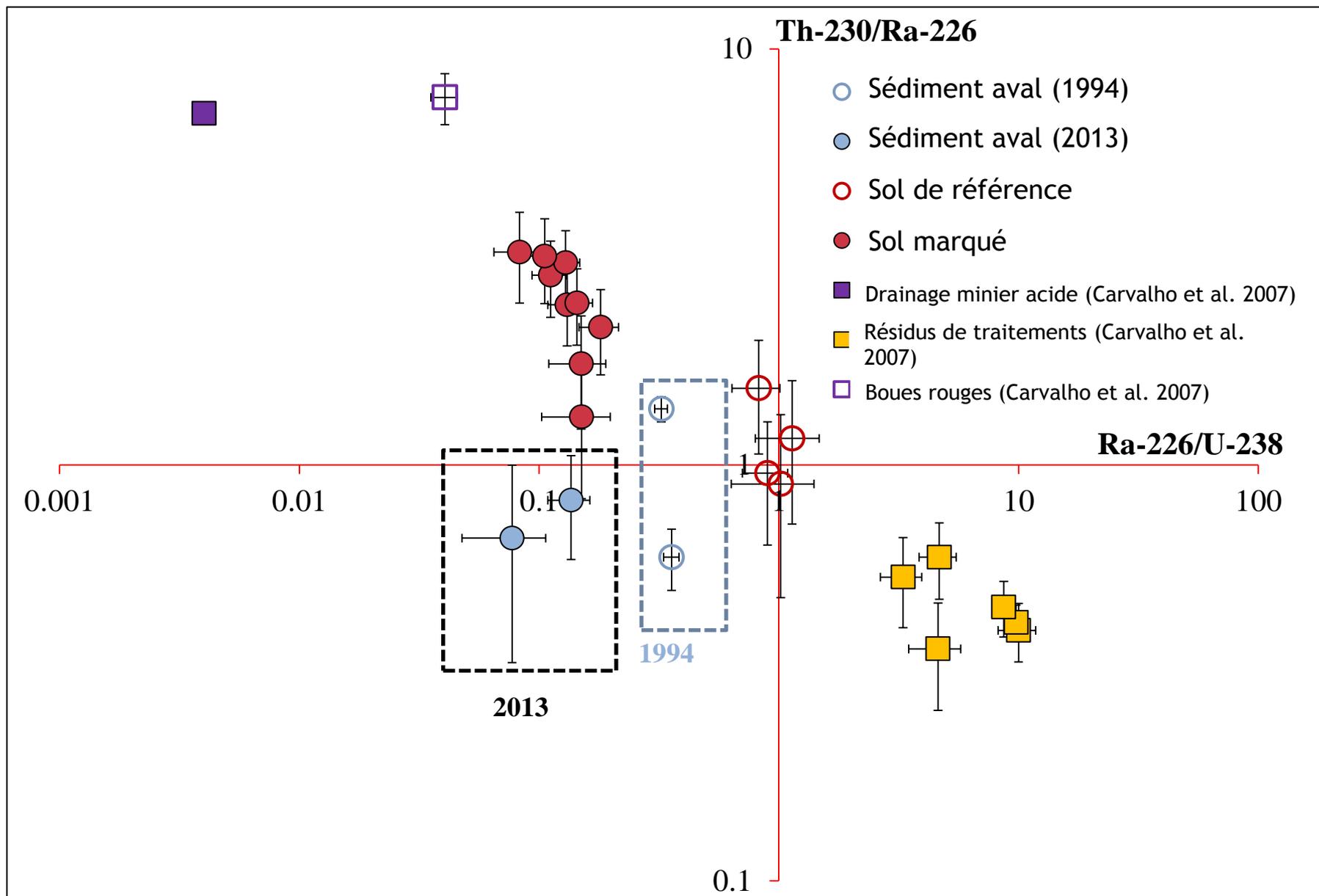
- **Sol de référence** : distribution homogène, équilibre séculaire
- **Sols marqués** : accumulation préférentielle dépendant de la profondeur et des radionucléides, déséquilibre début-fin de chaîne

**Equilibre séculaire :**

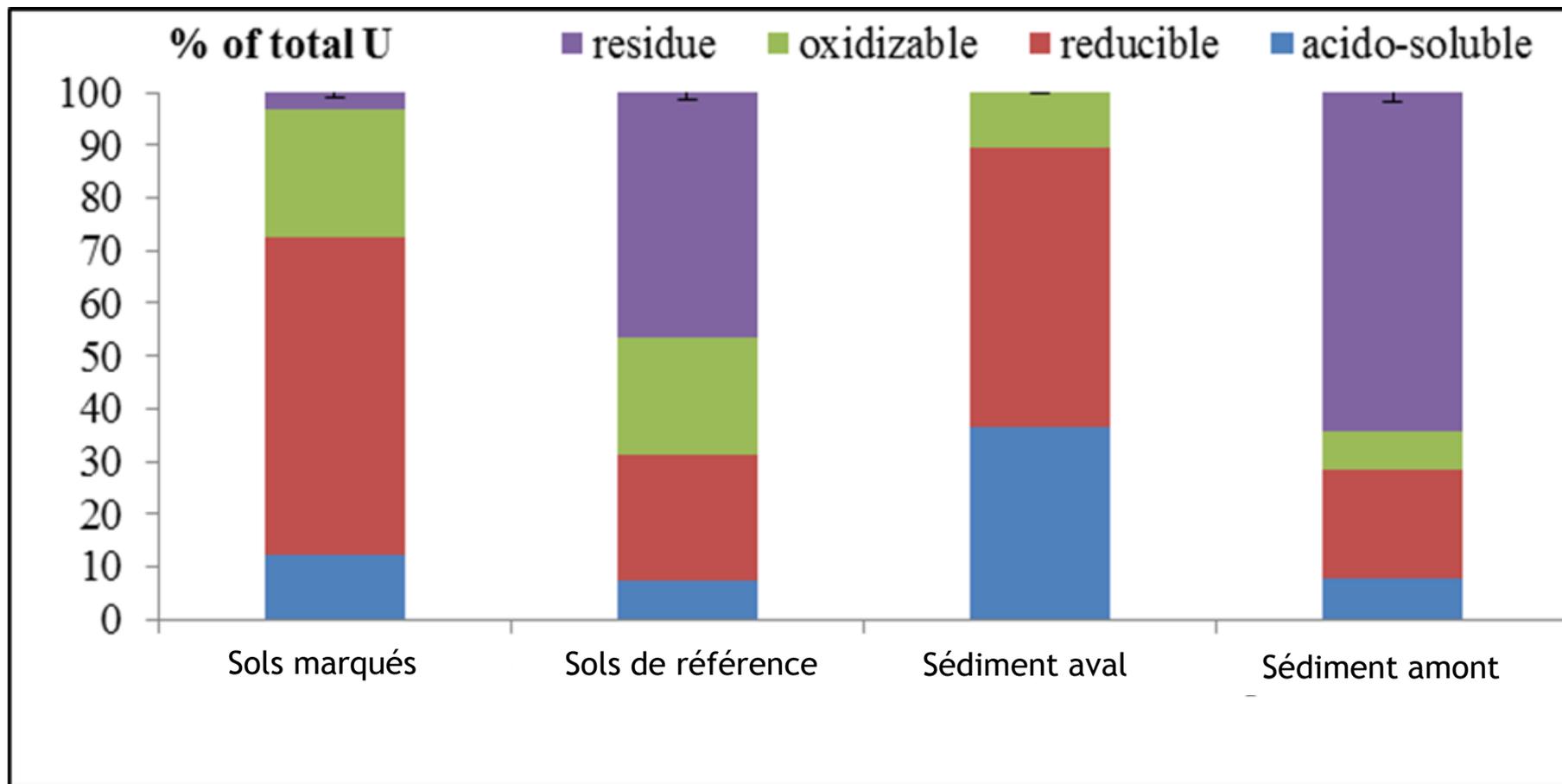
$$\frac{Th-230}{Ra-226} = \frac{Ra-226}{U-238} = 1$$







Rauret *et al.* 1999 : 4 steps : acido-soluble = pH variation, reducible = Eh variation , F3 = organic matter + sulfides (pH, oxidation), F4 = residual (crystal matrix)

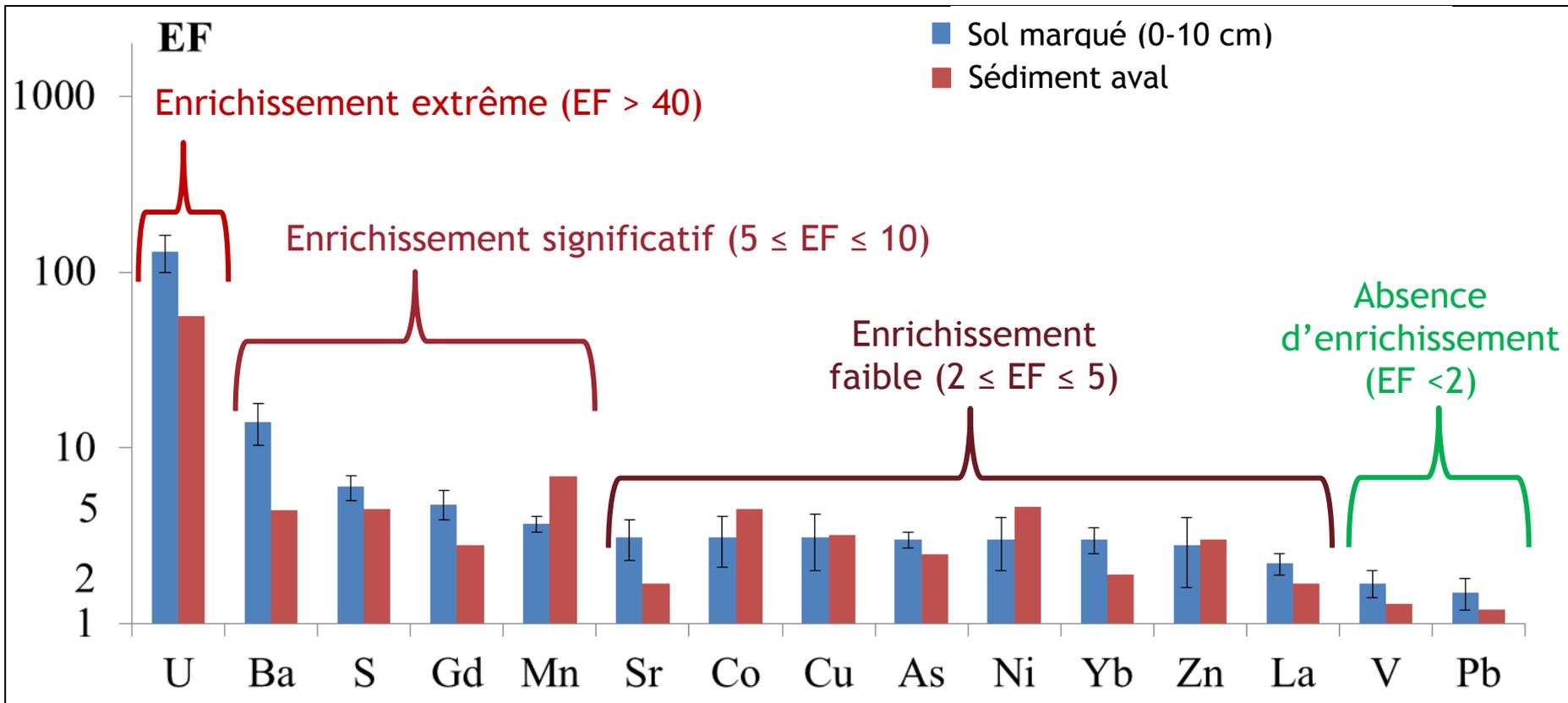


→ Echantillons marqués = **fraction réductible**

→ Echantillons de référence = **fraction résiduelle**

# Partie 2 : Évaluation de l'impact du site minier sur la distribution des éléments traces métalliques (ETM)

*A. Cuvier, L. Pourcelot, A. Probst, J. Prunier, G. Le Roux, 2016 :  
Trace elements and Pb isotopes in soils and sediments impacted by uranium mining,  
Science of The Total Environment, Volumes 566-567, Pages 238-249,*



(Chester and Stoner 1973)

$$EF = \frac{\left[ \frac{\text{Element}}{\text{Reference element}} \right]_{\text{sample}}}{\left[ \frac{\text{Element}}{\text{Reference element}} \right]_{\text{reference material}}}$$

- ➔ Enrichissement important en U et Ba
- ➔ Enrichissement modéré des autres éléments

➔ Matériel de référence : sol de référence (25-35 cm)

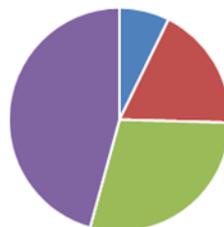
➔ Elément de référence : Ti

**Group A = Cu, Ni**

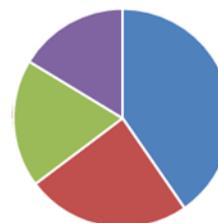
Sol de référence



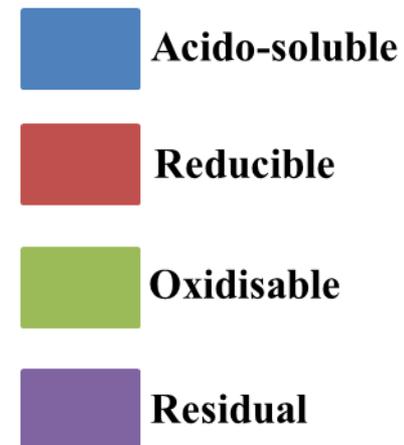
Sol marqué



Sédiment aval



Sédiment amont



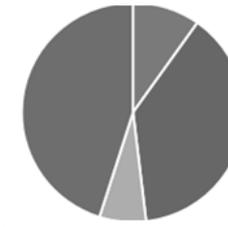
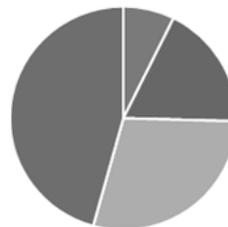
Sol de référence

Sol marqué

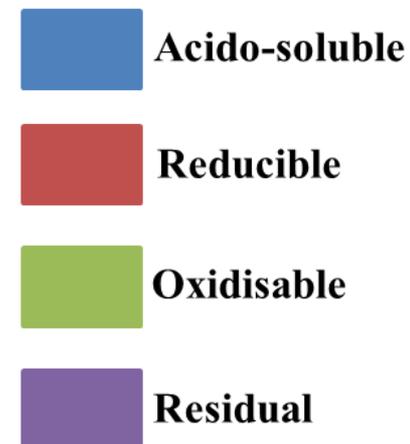
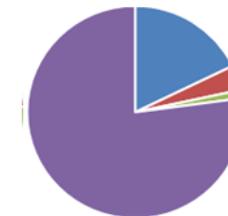
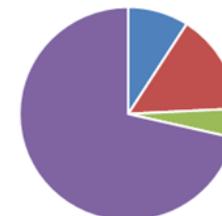
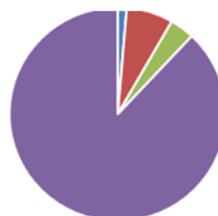
Sédiment aval

Sédiment amont

Group A = Cu, Ni



Group B = As, Ba, V



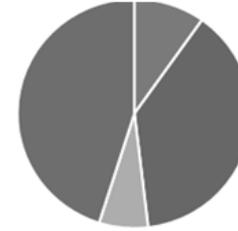
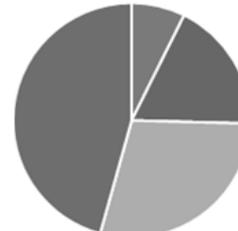
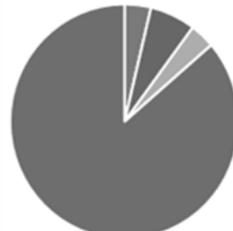
Sol de  
référence

Sol  
marqué

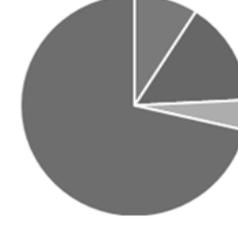
Sédiment  
aval

Sédiment  
amont

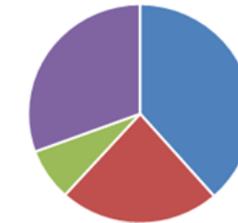
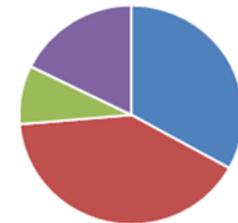
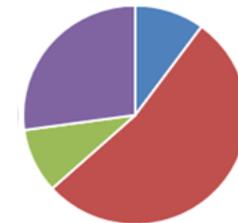
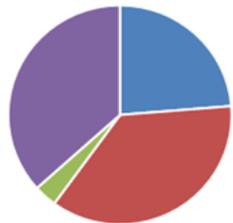
Group A = Cu, Ni



Group B = As, Ba, V



Group C = Mn, Co

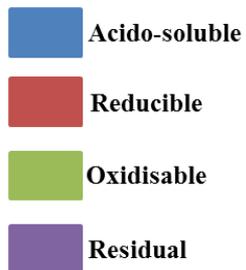


Acido-soluble

Reducible

Oxidisable

Residual



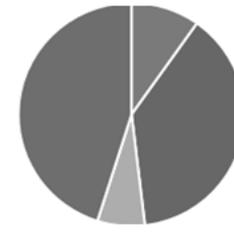
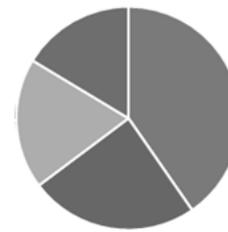
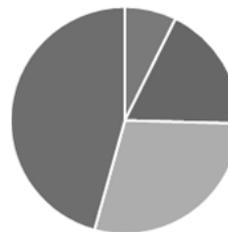
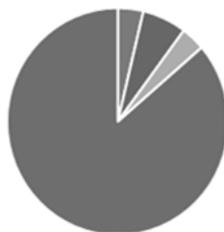
Group A = Cu, Ni

Sol de référence

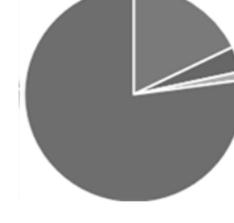
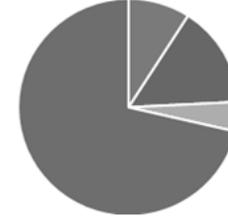
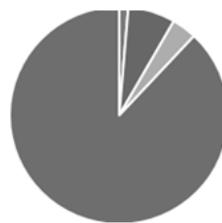
Sol marqué

Sédiment aval

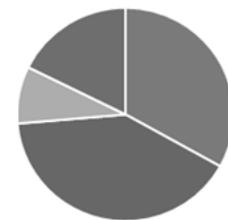
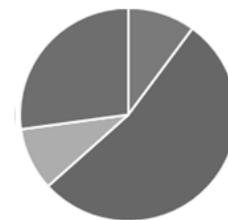
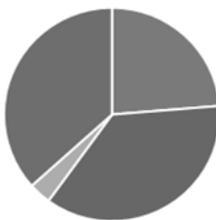
Sédiment amont



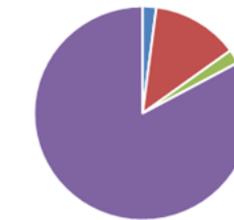
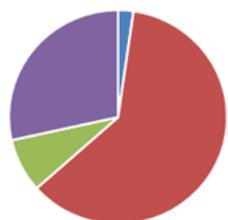
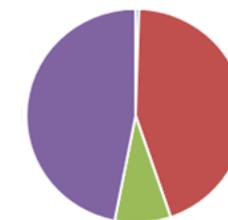
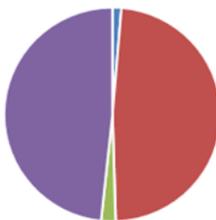
Group B = As, Ba, V

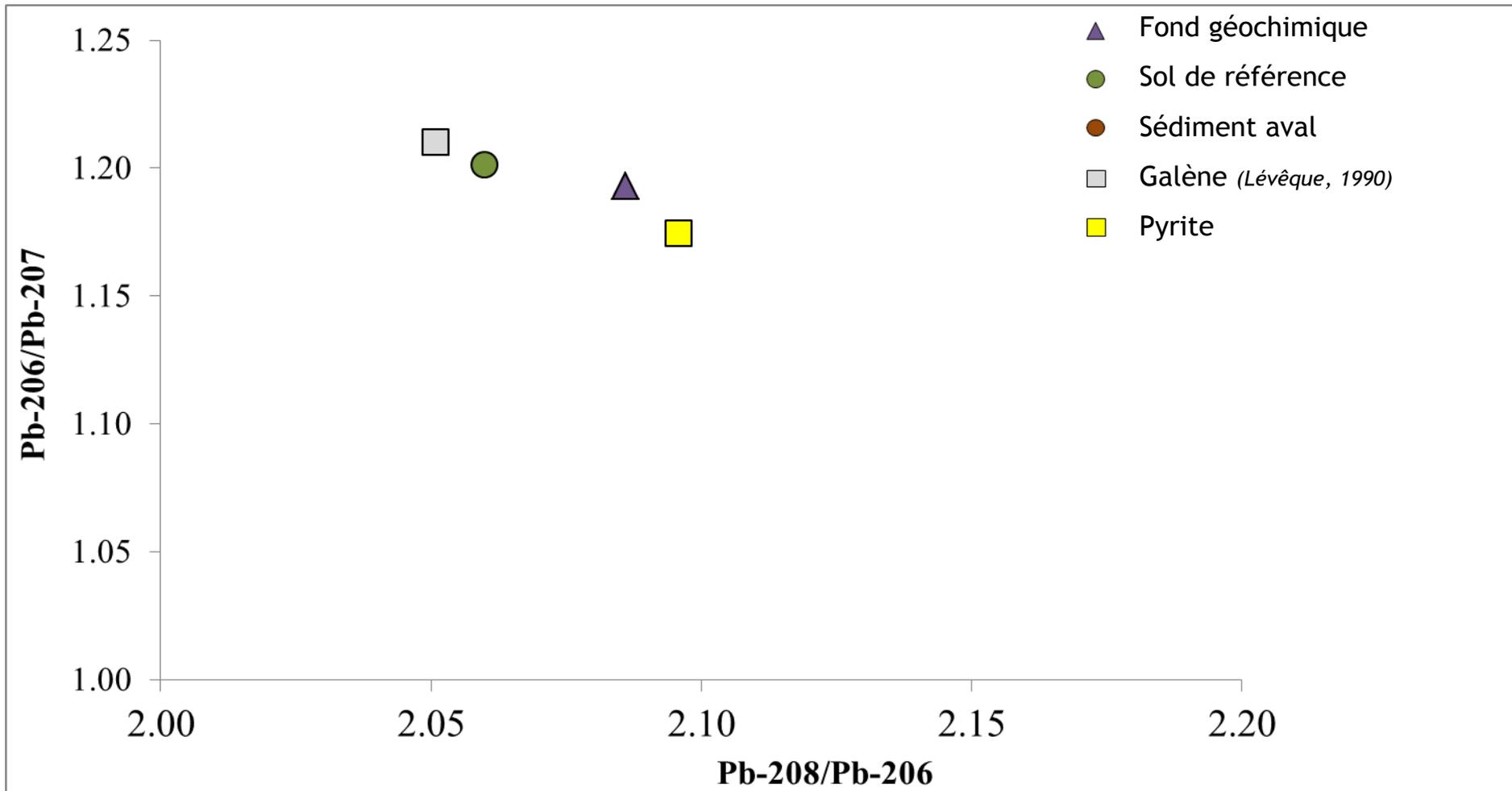


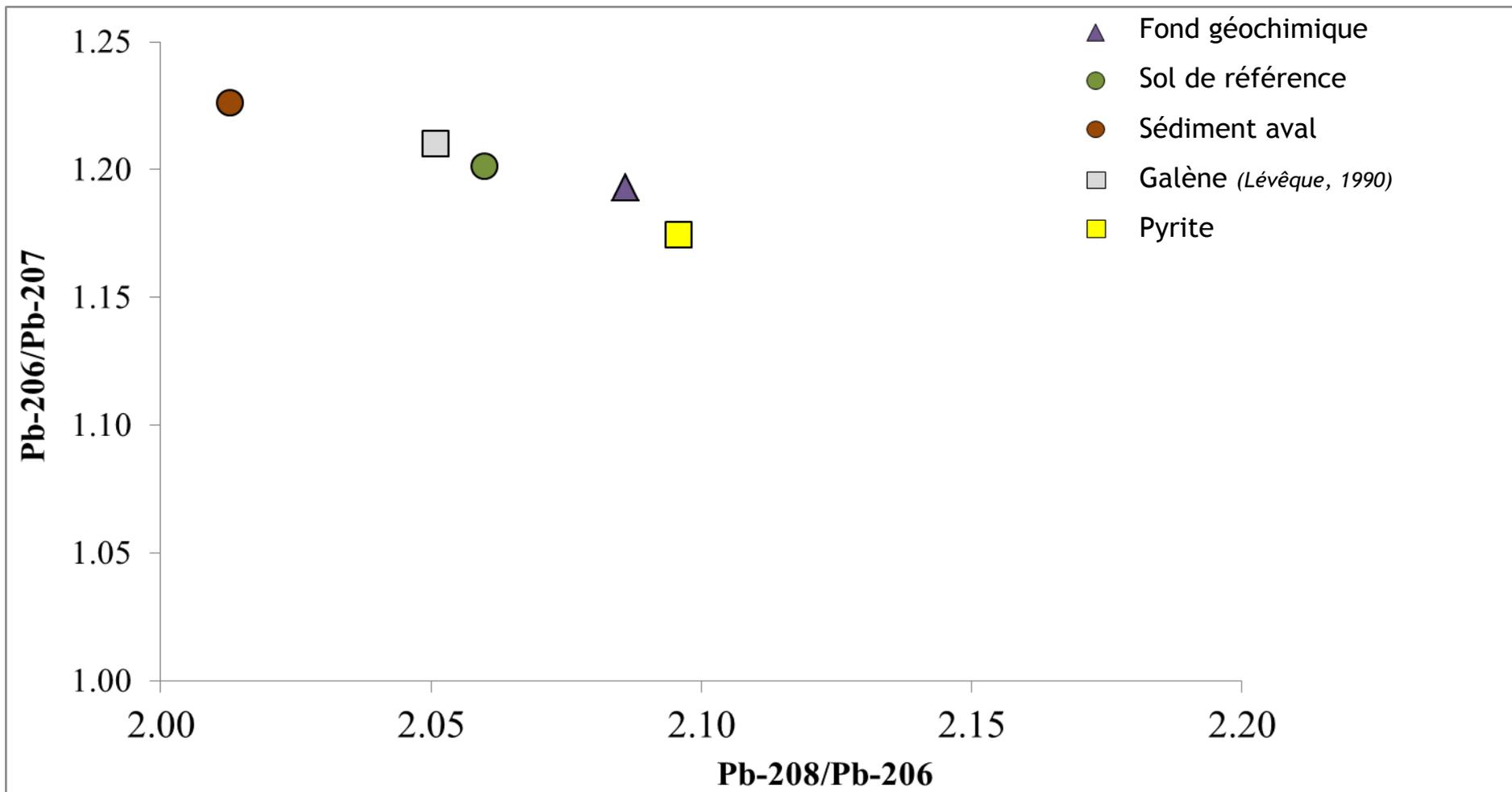
Group C = Mn, Co

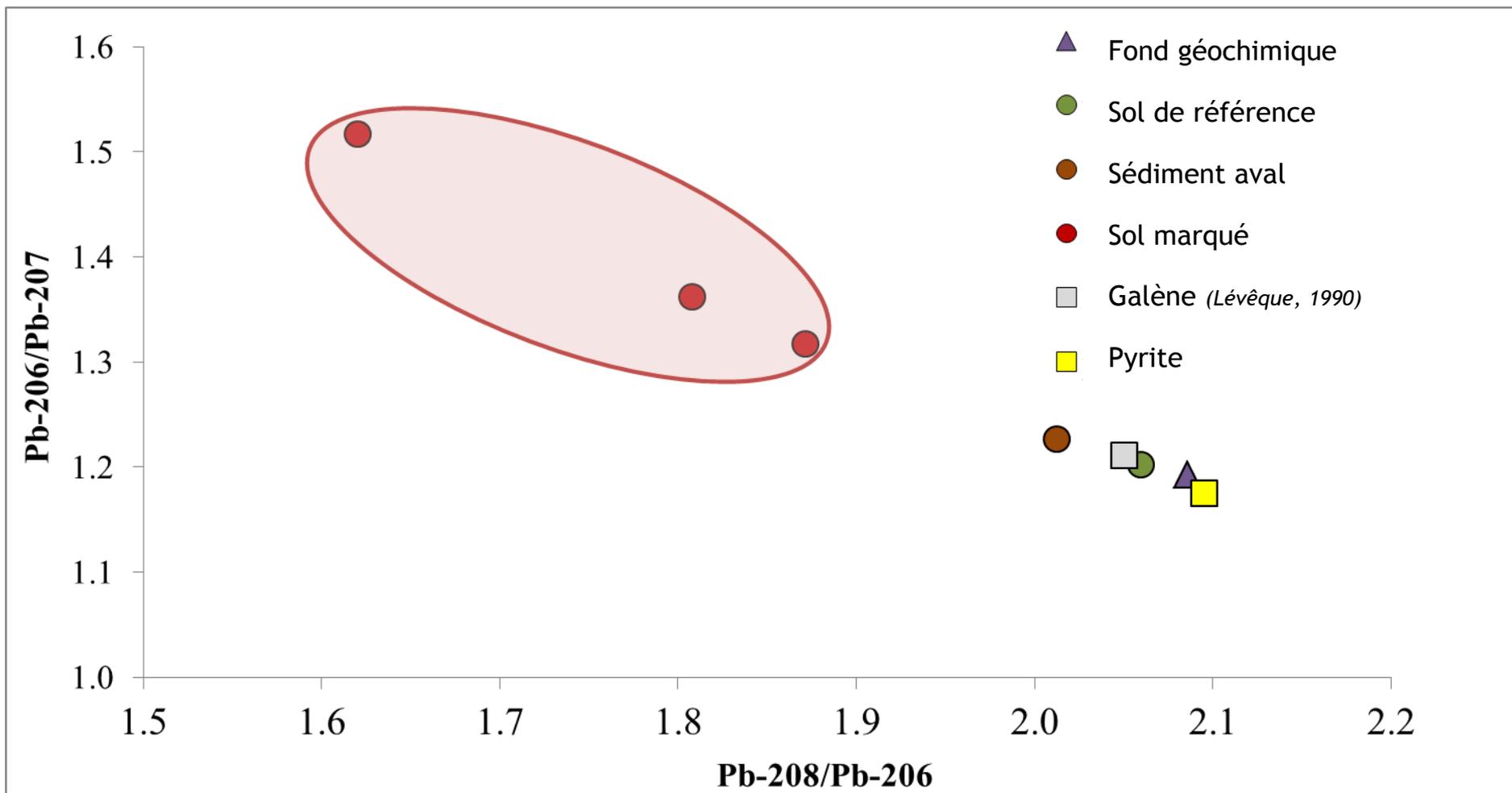


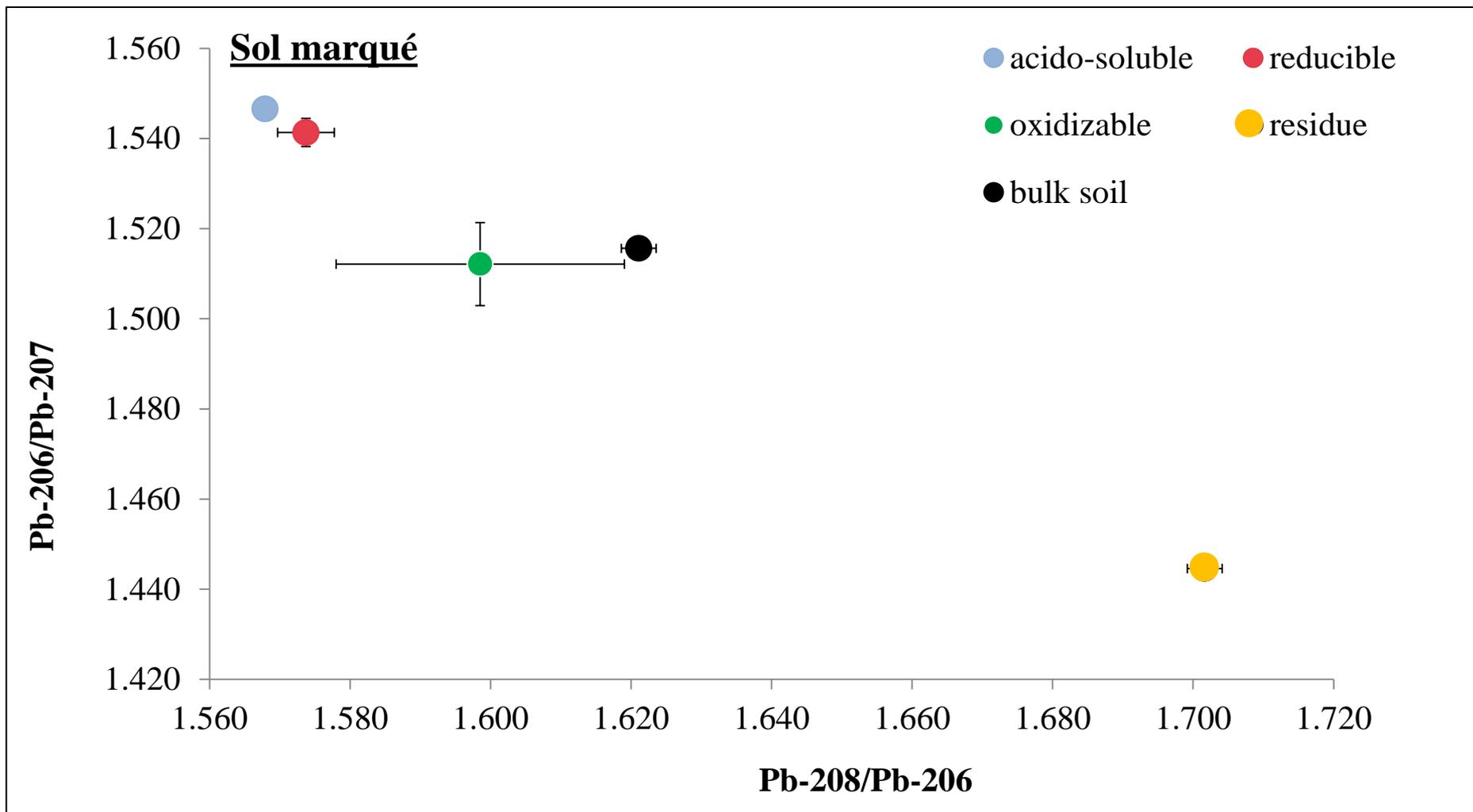
Group D = Pb



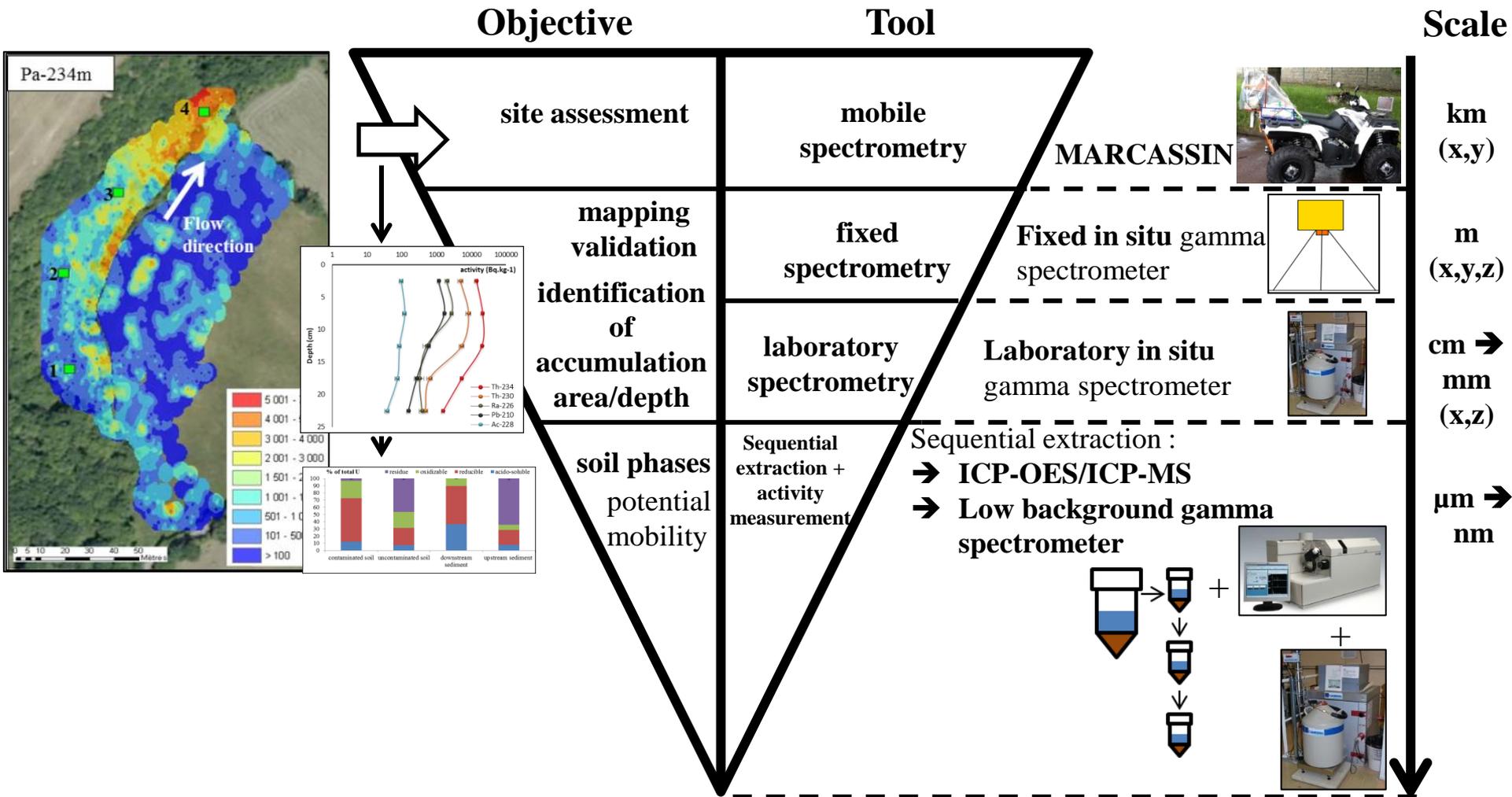






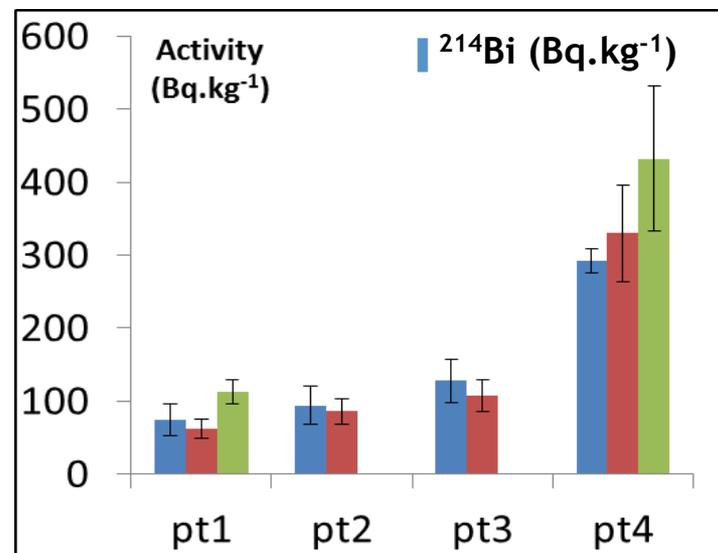
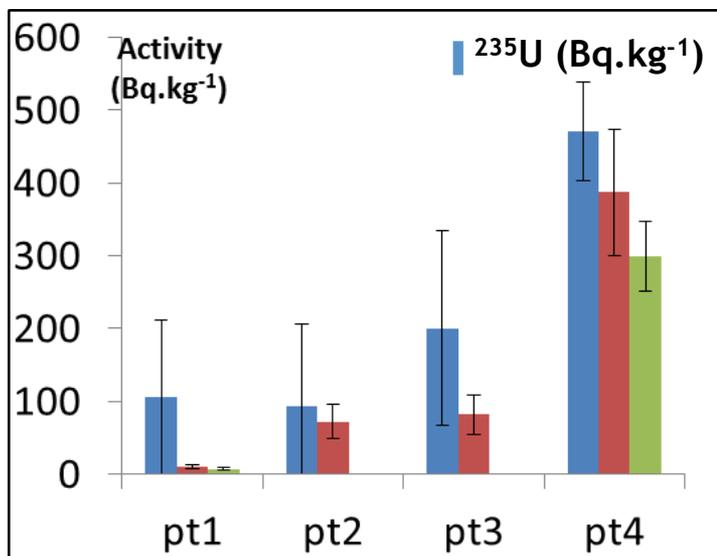


- La zone de stockage naturel des radionucléides identifiée en aval du site constitue un **enregistrement de l'activité minière** :
- Passée → **l'enrichissement en Th-230** est un indicateur des processus opérés sur site (lixiviation en tas)
- Actuelle → le traitement des eaux de verses et souterraines se traduit par un **enrichissement en isotopes de l'uranium et l'accentuation du déséquilibre U/Ra**
- La perturbation de la signature isotopique du plomb souligne un **apport de matériel radiogénique (fraction acido-soluble et réductible)**
- Un faible enrichissement métallique associé à l'activité minière est enregistré (EF < 5) **sauf pour U et Ba mais une augmentation de la mobilité (biodisponibilité) des métaux** est mise en évidence
- **Sols (stockage à long terme) ≠ Sédiments (« instantanés »)**



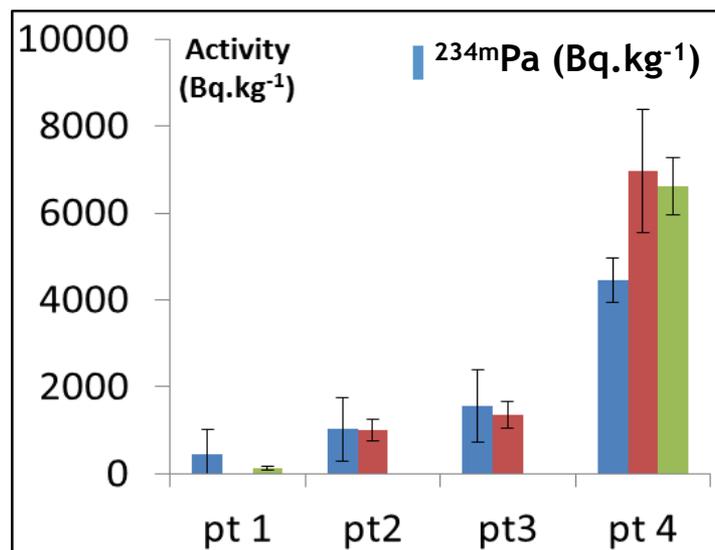
from Cuvier et al. 2015

**MERCI DE VOTRE ATTENTION**



**Variations de l'activité:**

- temps de comptage
- volume de sol
- niveau d'activité
- radionucléide considéré



**Couplage MARCASSIN / spectrométrie gamma in situ immobile:**

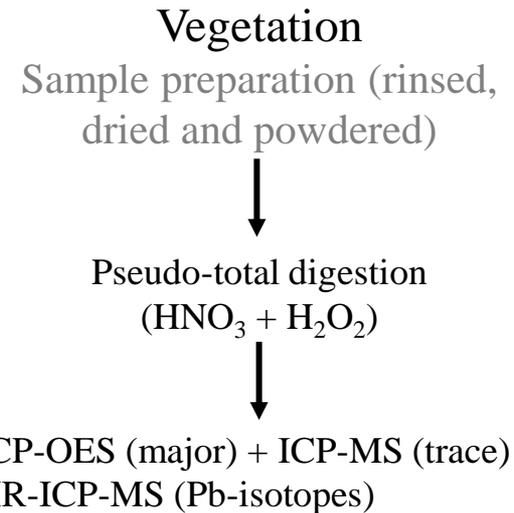
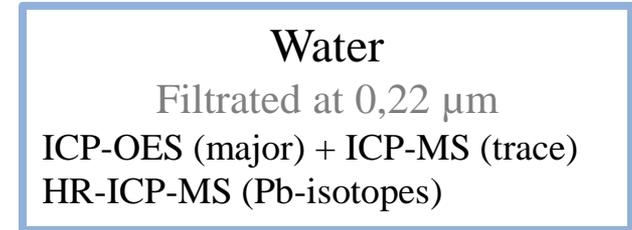
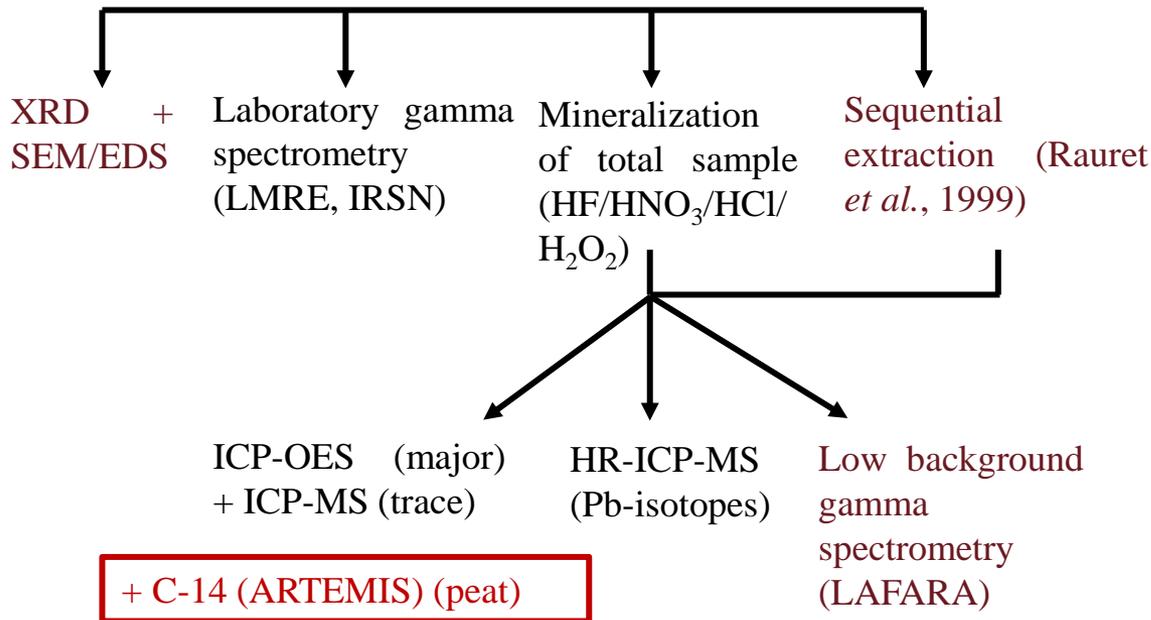
- points chauds
- échantillonnage : activité représentative

## Traitements physico-chimiques



Soil, sediment, peat

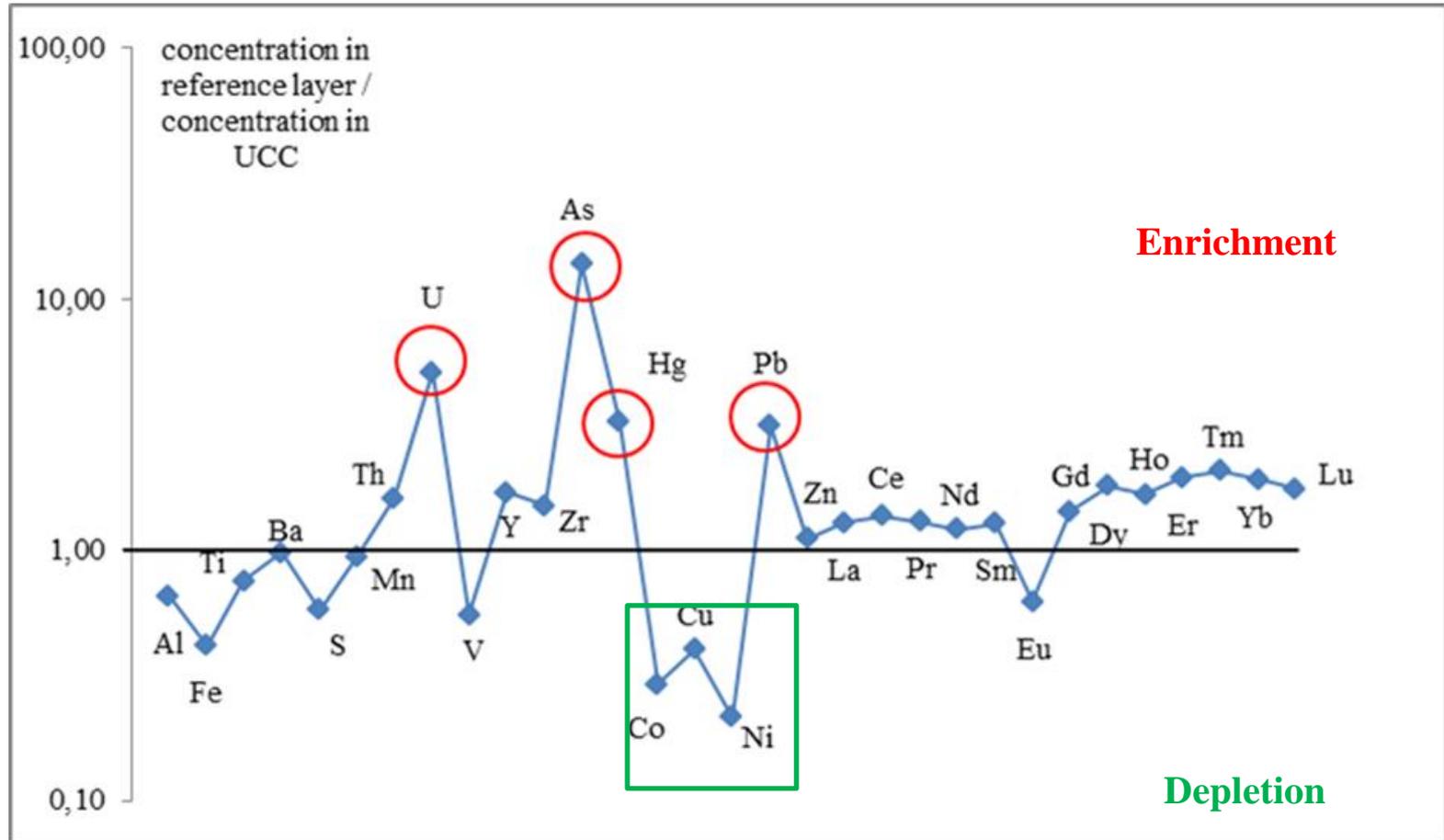
Sample preparation (dried, quartered and sieved < 2 mm)



## Calcul du Facteur d'Enrichissement

- Choix du matériel de référence
- Choix de l'élément de référence

**UCC = Upper Continental Crust**  
(Wedepohl 1995)  
**Reference layer = P3 (25-35 cm)**



## Calcul du Facteur d'Enrichissement

→ Choix du matériel de référence

→ Choix de l'élément de référence

