

ÉCOLE DES MINES DE PARIS

MIG L'Eau après la Mine

Synthèse du projet

Sophian AKKARI, Tom BOEZENNEC, Paul COLOMBEL, Florestan FONTAINE,  
Yiqiong HU, Tasnime OUCHTAR, Guillaume RAMOS, Louison RAPIN, Guillaume ROUY,  
Louis-Justin TALLOT, Gabrielle VERNET, Guillaume VIGNE, Robin WILLOCQUET

encadrés par les enseignants-chercheurs

Irina SIN, Nicolas SEIGNEUR, Sophie GUILLON et Vincent LAGNEAU  
du Centre de Géosciences (Mines ParisTech - PSL)

Novembre - Décembre 2020



## Remerciements

Les élèves remercient sincèrement les différents intervenants :

- Caroline BENESTEAU (Orano Mining)
- Camille CHAUTARD (Orano Mining)
- Michael DESCOSTES (Orano Mining)
- Sophie GERLAND (Orano Mining)
- Nadine HIMEUR (Orano Mining)
- Guillaume KERN (Orano Mining)
- Joachim SCHICK (Orano Mining)
- Emmanuel LEDOUX (Mines ParisTech - PSL)
- Louis RAIMBAULT (Mines ParisTech - PSL, Centre de Géosciences)
- Valentin ROBIN (Université de Limoges, Laboratoire E<sup>2</sup>LIM)
- Jean-Luc VIALLESSECHE (Eaux de Limoges Métropole)
- Pascale BLANCHARD (IRSN)
- Isabelle DUBLINEAU (IRSN)
- Pascale NALON (Mines ParisTech - PSL, bibliothèque de Fontainebleau)
- Anne SCHMID (Mines ParisTech - PSL, bibliothèque de Fontainebleau)
- Roland DESBORDES (CRIIRAD)

ainsi que leurs encadrants pour leur soutien sans faille tout au long de ce MIG :

- Irina SIN (Centre de Géosciences, Mines ParisTech - PSL)
- Nicolas SEIGNEUR (Centre de Géosciences, Mines ParisTech - PSL)
- Sophie GUILLON (Centre de Géosciences, Mines ParisTech - PSL)
- Vincent LAGNEAU (Centre de Géosciences, Mines ParisTech - PSL)



Université  
de Limoges



## Table des matières

<b>I.</b>	<b>Contexte de l'après-mine . . . . .</b>	<b>1</b>
1)	Histoire minière de la France . . . . .	1
2)	Importance et enjeux de l'après-mine . . . . .	2
<b>II.</b>	<b>Problématiques de l'après-mine . . . . .</b>	<b>5</b>
1)	Les différentes pollutions . . . . .	5
2)	La dimension sociétale . . . . .	7
3)	Les différentes normes mises en place . . . . .	8
<b>III.</b>	<b>Solutions pour l'après-mine . . . . .</b>	<b>11</b>
1)	Les différentes méthodes de traitement des eaux . . . . .	11
2)	Les traitements sont-ils toujours nécessaires ? Étude de cas du site de la Ribière . . . . .	16
3)	Atténuation de la teneur en radon gazeux . . . . .	28
	<b>Conclusion . . . . .</b>	<b>32</b>
	<b>Références bibliographiques . . . . .</b>	<b>33</b>
	<b>Annexes . . . . .</b>	<b>37</b>
<b>A</b>	<b>Figures et tableaux utiles . . . . .</b>	<b>37</b>
<b>B</b>	<b>Hydrogéologie : la loi de Darcy . . . . .</b>	<b>47</b>
1)	Loi de Darcy . . . . .	47
2)	Modèles simples pour la compréhension des phénomènes . . . . .	47
<b>C</b>	<b>Radon : détails des raisonnements . . . . .</b>	<b>52</b>
1)	Estimation du facteur d'émanation . . . . .	52
2)	Équilibre séculaire : calculs . . . . .	53
3)	Dose efficace : calculs . . . . .	53
4)	Dose efficace : estimation du facteur $r$ . . . . .	54
5)	Diffusion unidimensionnelle : mise en équation. . . . .	55

6)	Diffusion unidimensionnelle : régime stationnaire . . . . .	55
7)	Diffusion unidimensionnelle : régime transitoire . . . . .	55
8)	Sensibilité du modèle analytique aux différents paramètres . . . . .	56
9)	Détails des modèles HYTEC utilisés . . . . .	57
10)	Relation entre fugacité et activité du radon . . . . .	59
11)	Sensibilité des modèles numériques aux différents paramètres . . . . .	59
12)	Impact d'un terme source dans les stériles . . . . .	61
<b>D</b>	<b>Géochimie . . . . .</b>	<b>62</b>
1)	Choix des minéraux et calcul de concentration . . . . .	62
2)	Résultats de simulation : figures . . . . .	63
<b>E</b>	<b>Comparaison à l'échelle internationale . . . . .</b>	<b>65</b>
<b>F</b>	<b>Scripts HYTEC . . . . .</b>	<b>71</b>
<b>G</b>	<b>Modèle topographique du site . . . . .</b>	<b>84</b>
<b>H</b>	<b>Modélisations de l'atténuation du radon . . . . .</b>	<b>87</b>
<b>I</b>	<b>Résultats des simulations numériques HYTEC . . . . .</b>	<b>97</b>
<b>J</b>	<b>Table des figures . . . . .</b>	<b>103</b>
<b>K</b>	<b>Liste des tableaux . . . . .</b>	<b>106</b>
<b>L</b>	<b>Liste des scripts . . . . .</b>	<b>107</b>

### Résumé

La France possède aujourd'hui de nombreux sites miniers ayant cessé toute activité qui doivent être réhabilités. Cette problématique se nomme l'*après-mine*. L'*après-mine* comprend de nombreux enjeux : sanitaires et environnementaux avec la gestion des déchets et des pollutions, socio-économiques avec notamment le dialogue des différentes parties ou encore politiques avec la construction des normes.

La présente étude s'intéresse à la majorité de ces sujets. Elle a pour but d'identifier les différents acteurs de l'*après-mine* et ses problématiques afin d'y apporter quelques réponses. Elle aborde la question des normes, du respect de l'environnement et des habitants mais aussi des aspects plus techniques comme la gestion de la qualité des eaux.

Nous étudions plus particulièrement le cas des anciennes mines d'uranium, notamment en ce qui concerne le traitement de l'eau et du radon. Une attention spécifique est portée au site de l'ancienne mine d'uranium de La Ribière. Nous proposons ainsi une synthèse des problématiques de l'*après-mine*, en nous attachant particulièrement aux contraintes des différentes normes et aux restrictions imposées par les acteurs sociaux. Nous proposons également une comparaison des différents types de traitements existants et un aperçu de la gestion de l'*après-mine* dans les principaux pays miniers.

Les principaux polluants, comme le radon, l'uranium et le radium, peuvent être traités efficacement dans le but de limiter la pollution environnementale. Un modèle hydrogéochimique établi pour notre étude permet également de conclure sur le cas de La Ribière : l'évolution de la qualité des eaux, telle que prévue par celui-ci, montre qu'un traitement ne semble pas nécessaire pour l'uranium. Toutefois, les imprécisions de notre modèle nous empêchent d'émettre un jugement définitif.

Si l'*après-mine* est aujourd'hui une problématique prise au sérieux par les exploitants, elle reste souvent mal connue des populations. Bien que de nombreuses solutions soient mises en place, il est encore nécessaire d'informer les citoyens et de donner une plus grande importance à l'*après-mine* à l'avenir.

### Abstract

France has now numerous mining sites that have ceased all activities and that need to be rehabilitated. This issue is called post-mine. Post-mine aims at addressing environmental and health-related issues (such as the mine waste management), as well as socio-economical (such as finding consensus with local associations and populations) and political (for instance the definition of standards) issues.

This study addresses most of these questions. Its goal is to identify both the different parties involved in the post-mine process and the associated issues, in order to provide some answers. It also deals with technical aspects such as the treatment of contaminated water from mine waste.

We will focus on former uranium mines, on the water treatments and on the alleviation of radon. Special attention is paid to the site of the former La Ribière uranium mine. We thus propose a synthesis of post-mine issues, with a particular focus on the constraints of the different standards and the restrictions imposed by social actors. We also draw a comparison of the different types of existing treatments and an overview of post-mine management in the major mining countries.

We acknowledge that the major polluting substances (radon, radium, uranium...) can be efficiently treated. hydrogeochemical model established for our study also makes it possible to conclude on the case of La Ribière: the evolution of the water quality, as envisaged by it, shows that a treatment does not seem necessary for uranium. However, the inaccuracies of our model prevents us from making a final judgment.

The post-mine process is a serious issue which is often dealt with by the exploiting firms but quite ignored by the local populations. Although many measures have been enforced, it is still necessary to inform the citizens to bring a wider attention to the post-mine process.

## I. Contexte de l'après-mine

### 1) Histoire minière de la France

La France est un pays avec un passif minier bien présent et ancré dans les esprits. C'est à l'ère industrielle qu'apparaissent les nombreuses mines qui mèneront à divers bassins miniers français. Au début du XX<sup>ème</sup> siècle, on compte environ 800 sites miniers en France. Bien que le charbon ait occupé une place importante, surtout dans le Nord et l'Est de la France, de nombreux métaux ont été exploités en France dont notamment l'uranium [1].

L'uranium est le centre de notre attention. En effet, il est au fondement de l'énergie nucléaire massivement utilisée en France. On trouve naturellement deux isotopes de l'uranium : l'uranium 238 (99,3 %) et l'uranium 235 (0,7 %), utilisé pour les centrales nucléaires car fissible. L'uranium se trouve majoritairement à l'état naturel deux degrés d'oxydation : +IV et +VI. Le premier se trouve surtout sous terre, il est insoluble et est prévalent (l'uraninite ou la coffinite en sont des minerais porteurs). Quant au second, il se trouve principalement en surface et est soluble (un exemple de minerai porteur est l'autunite). On le trouve aussi en quantité moindre en rétention dans des argiles ou des oxydes [2].

En France, la volonté d'exploiter l'uranium date de la fin de la Seconde Guerre mondiale, avec le développement de l'arme nucléaire puis du nucléaire civil. La première mine d'uranium française a ainsi ouvert en 1948. L'épuisement des gisements français et la découverte de gisements bien plus importants à l'étranger, notamment au Niger, entraînent la fermeture des mines françaises entre 1992 et 2001. Au total, il y a près de 230 sites miniers liés à l'uranium en France. Ils produisaient quelques tonnes d'uranium par an, soit environ 76 000 t en un demi-siècle. Ces sites sont essentiellement situés dans le Massif Central mais aussi en Bretagne et en Vendée (voir la carte 30 des sites miniers uranifères français). Le Limousin est à lui seul à l'origine de près de la moitié de la production française [2].

Les mines sont régies par différentes autorités : le code minier, qui pose un cadre juridique, le RGIE (Règlement Général des Industries Extractives) ou encore la police des ICPE (Installation Classée pour la Protection de l'Environnement), créée en 1976. Des polices liées à des domaines transverses (eau, déchets, santé) interviennent elles aussi sur ce sujet, qui pose des risques géotechniques (effondrement, affaissement de galeries) et hydrauliques (pollution de l'eau, inondation...) importants [1][3][4].

Dans le cadre de notre projet, nous nous sommes tout particulièrement intéressés aux mines d'uranium du Limousin et notamment à celles de La Ribière et de Bellezane que nous avons pu visiter virtuellement. Le site de Bellezane (figure 1) comporte deux mines d'uranium à ciel ouvert. Situé en Haute-Vienne, il a été exploité de 1975 à 1992. Cinq pourcents de la production d'uranium française provient de cette mine, qui employait jusqu'à 100 personnes. Ce site, qui fait partie de la concession minière de la Gartempe, est de taille conséquente avec près de 25 kilomètres de galeries souterraines. Il bénéficie de sa propre station de traitement des eaux, d'un débit d'environ 500 000 m<sup>3</sup> par an [5]. Le site de la Ribière (figure 2), étudié plus en détail dans ce rapport, est de plus petite taille avec une teneur plus faible en uranium et un minéral extrait différent (de l'autunite). Bien qu'il soit, comme Bellezane, un site de stockage de résidus uranifères, il ne possède pas de station de traitement des eaux [2].



FIGURE 1 – Site de Bellezane (Orano)



FIGURE 2 – Site de La Ribière (Orano)

À partir des années 1990, les mines d'uranium, devenues non rentables, ferment massivement : la dernière mine d'uranium française ferme en 2001. Pour autant, cette date ne marque pas la fin de l'histoire des mines d'uranium en France. Il s'agit désormais de réaménager les sites de manière durable et d'assurer leur sûreté et sécurité : c'est ce que l'on appelle l'*après-mine*.

## 2) Importance et enjeux de l'après-mine

L'après-mine fait partie intégrante du cycle minier [6]. Aujourd'hui, cette phase clé aux nombreux enjeux est pensée dès les phases d'exploration et de développement du projet (figure 3). Elle dure en général plus d'une dizaine d'années. L'objectif de ce processus est de réduire l'impact du site sur son environnement, en mettant en place un plan de réaménagement en concertation avec les autorités et les habitants. Une fois le plan établi et les différentes procédures achevées, les travaux peuvent commencer pour réinsérer le site dans le paysage. À l'issue du réaménagement, il faut continuer à entretenir les équipements de dépollution et vérifier que les normes sont toujours respectées.



FIGURE 3 – Les différentes phases du réaménagement d'une mine (inspiré d'un graphique d'Orano)

La roche que l'on a excavée pour atteindre le gisement constitue le stérile minier tandis que le produit issu du traitement du minerai (concassage puis procédés d'extraction) est appelé résidu minier. Les résidus peuvent avoir une teneur en uranium résiduelle importante ce qui justifie de prendre des précautions pour son stockage. S'agissant du réaménagement actif, on utilise souvent les stériles miniers pour remblayer et recouvrir les anciennes mines à ciel ouvert. Des stations de traitement des eaux sont souvent implantées pour traiter les eaux d'exhaure, c'est-à-dire les eaux qui

se sont infiltrées dans la mine et qui sont donc potentiellement polluées [7]. La zone peut ensuite être revégétalisée. Toutefois, la plantation d'arbres est à proscrire, étant donné que le développement de leurs racines au sein des résidus pourrait constituer des chemins préférentiels de migration à travers la couverture. Il faut également s'assurer de ne pas forcer la nature, qui doit d'elle-même reprendre ses droits. Cela peut alors durer de 6 mois comme au Gabon, jusqu'à 10 ans comme près de Clisson en France. La stabilité peut être assurée avec des digues, qui retiennent les eaux d'exhaure ou les résidus. Des contrôles des résidus sont effectués régulièrement ainsi que des analyses de concentrations de radionucléides (uranium, radium...) dans l'eau et l'air du site [6].

Les secondes vies des mines peuvent être diverses : certaines sont transformées en parcs photovoltaïques, en zones industrielles ou agricoles, en base nautique ou encore en parc [6]. À Bessines-sur-Gartempe, un musée, Urêka, a été construit pour retracer l'histoire minière uranifère française.

À Bellezane, des résidus ont été coulés avant d'y poser une couverture en stériles et terre, ce qui a permis d'amorcer la revégétalisation du site (figure 4). Pour protéger les fourrés et les mares, un écologue passe annuellement. Un projet de centrale photovoltaïque en partenariat avec Total est en cours et devrait aboutir vers 2023. Le stockage des résidus et sédiments marqués en radioactivité sur le site est géré par Orano [5].



FIGURE 4 – Le site de Bellezane avant et après le réaménagement (Orano)

L'après-mine comprend aussi une dimension sanitaire : les eaux d'exhaure peuvent se déverser dans des lacs ou des nappes utilisés pour le pompage de l'eau potable, comme dans le Limousin où les eaux d'exhaure de l'ancienne mine Henriette se déversent dans l'étang de la Crouzille, utilisé pour fournir Limoges en eau potable. Orano alors doit veiller à ce que l'eau rejetée n'abaisse pas la qualité de l'eau de l'étang. La présence de mines est également source de contraintes pour la régulation de l'eau : la teneur en métaux et en minéraux est modifiée par les eaux d'exhaure ce qui occasionne des frais de surveillance et de traitement supplémentaires. De plus, la disponibilité de l'eau est parfois réduite. Les mines ont également des effets indirects, comme des contraintes de gestion technique et une hausse de la méfiance des populations à l'égard des gestionnaires de l'eau [8].

En raison des différents risques, notamment sanitaires, l'après-mine fait l'objet d'une réglementation, avec différentes polices et des commissions de suivi annuelles qui informent les riverains. L'uranium ajoute une contrainte supplémentaire avec le risque radiologique. L'Institut de Radioprotection pour la Sécurité Nucléaire (IRSN) est un organisme public chargé, avec l'Autorité de Sécurité

Nucléaire, de la radioprotection et de la sûreté nucléaire. À ce titre, il intervient aussi pour l'après mine dans le cas spécifique des mines d'uranium : il réunit des experts scientifiques sur la question, forme des élèves et informe le public via des visites ou conférences. Orano participe également à des congrès, des études locales et des groupes de travail sur le sujet. Ces derniers peuvent réunir des acteurs de domaines très divers : exploitant (Orano), Ministère de la Transition Écologique et Solidaire, experts techniques de l'IRSN, du BRGM (Bureau de Recherches Géologiques et Minières) ou de l'INERIS (Institut national de l'environnement industriel et des risques)<sup>1</sup>, élus locaux, société civile. . . Ils étudient différents scénarios en se basant sur des critères environnementaux, sociétaux et techniques afin de prendre en compte les avis de tous les acteurs.

Des programmes sont aussi mis en place comme le Plan National de Gestion des Matières et Déchets Radioactifs (PNGMDR), issu de la loi, qui fixe des objectifs pour l'après-mine. Reconductible tous les 2 ans ou plus, son rôle est d'éclairer les autorités sur le réaménagement et le traitement, tout en prenant en compte l'évolution des situations et les contraintes de maintenance et de gestion [3].

Pour Orano, les mines représentent actuellement près du tiers des activités en France mais cette activité minière consiste principalement à réaménager les sites. Cela représente donc un enjeu important : 26 personnes se consacrent à temps-plein à l'après-mine à Bessines. Le pôle Recherche et Développement (R&D) de l'exploitant a dans ce cadre un rôle à jouer en essayant d'optimiser les traitements et de minimiser l'impact de l'après-mine sur les écosystèmes. L'enjeu est également économique : l'après-mine représente 6 millions d'euros de dépenses annuelles pour la surveillance et l'entretien auxquelles s'ajoutent 3 à 5 millions d'euros d'investissement dans des projets d'améliorations des installations [6].

Orano investit dans des outils spécifiques à l'après-mine afin de gagner en efficacité. Des Systèmes d'Information Géographiques (SIG) ont notamment été mis en place, comme ArcGIS. Ce logiciel équipe Orano Mining afin de faciliter les tâches des techniciens chargés de la surveillance des sites. CartOmines est un site internet qui permet d'afficher d'anciennes vues minières (galeries, descenderies. . .) pour les comparer aux vues actuelles [9]. Le logiciel Collector permet de modifier des données cartographiques et de visualiser les galeries des mines en trois dimensions ou en coupe. Le logiciel ERICA est utilisé pour évaluer les risques générés par l'uranium. Ces outils permettent de gérer l'après-mine de manière plus efficace et ont donc une grande importance : c'est pourquoi un budget annuel de 100 000 € leur est alloué [10].

Ainsi, l'après-mine répond à de nombreux enjeux : gestion des résidus, des stériles miniers et des eaux d'exhaure, stabilité mécanique du site, impact radiologique. . . Sans oublier la dimension sociale : le projet doit être accepté par les habitants et doit s'inscrire dans un projet de réhabilitation sur le long terme. Enfin, pour l'exploitant, il existe aussi une dimension économique.

---

<sup>1</sup>Le Ministère de la Transition Écologique et Solidaire, le BRGM et l'INERIS ont constitué un groupement d'intérêt public, nommé GEODERIS et chargé de conseiller l'État en matière d'après-mine.

## II. Problématiques de l'après-mine

### 1) Les différentes pollutions

#### a) L'uranium

L'uranium reste toujours présent sous forme de traces dans les mines d'uranium. Les résidus miniers peuvent en contenir en quantité importante et doivent donc être stockés en profondeur. En effet, l'uranium peut se solubiliser dans l'eau et migrer vers les rivières et étangs alentours. Cela peut donc poser un problème pour la santé des riverains. Pourtant, en ce qui concerne cet élément, il y a très peu d'études sur l'impact des mines sur la santé publique. Les études menées ne prennent parfois pas en compte le bruit de fond pour donner leur conclusion et sont donc inutilisables. Le *bruit de fond* correspond à la radioactivité présente naturellement dans les roches et n'est donc pas imputable aux activités minières. Elle varie selon les contextes géologiques. En France, afin d'étudier l'impact de l'uranium sur la santé humaine, l'IRSN se base sur des études sur l'influence d'un fort dosage d'uranium sur la santé des rats et a mis en évidence un effet délétère sur certains organes comme le cerveau.

Par ailleurs, des études sur les anciens mineurs ont mis en évidence que les cas de cancer du poumon étaient plus élevés de 127 % par rapport à la moyenne française.

#### b) Le radon, un polluant gazeux issu des résidus de traitement

##### Formation, émanation du radon et équilibre séculaire

Les résidus de traitement, dont on a extrait l'uranium, contiennent encore des traces d'uranium et de radium, qui se situe dans la chaîne de désintégration radioactive de l'uranium (figure 31). Au sein d'un grain de résidu, les atomes de radium ( $^{226}\text{Ra}$ ), dont la demi-vie est de 1 602 années, se désintègrent en atomes de radon ( $^{222}\text{Rn}$ ) en libérant une particule alpha. Alors que la radioactivité alpha de l'uranium ou du radium, libérée en profondeur, ne pose pas de risque radiologique direct, le radon naît à l'état gazeux et peut donc migrer vers la surface. Il est donc impératif de savoir quelle proportion de radon est transportée vers la surface afin d'évaluer les risques et de prendre les mesures de sûreté nécessaires.

Le radium se désintègre au sein des résidus de traitement, qui sont sous forme de grains. Les atomes de radon peuvent *émaner*, c'est-à-dire atteindre les pores entre les grain. Néanmoins, tous les atomes de radon n'y parviennent pas. En effet, la distance  $R_s$  que les atomes peuvent parcourir est de l'ordre de 30 nm dans un minéral de densité commune. Cette distance est de 50  $\mu\text{m}$  dans l'air et de 50 nm dans l'eau. L'étape d'émanation est caractérisée par le facteur d'émanation, que l'on explique plus en détail en annexe C 1).

Au sein des résidus, le radon se désintègre également, avec une demi-vie de 3,8 jours. Au bout d'un certain temps, autant de radon est créé que désintégré. La concentration de radon dans les résidus est donc stable : c'est l'équilibre séculaire. On peut alors déterminer l'activité volumique du radon dans les résidus à l'équilibre en annexe C 2).

## Transport du radon vers la surface

Plusieurs processus peuvent expliquer le transport du radon vers la surface [11] : sa diffusion et son advection. Le moteur de la diffusion du radon dans les pores est son gradient de concentration, dans la mesure où le radon est transporté vers les zones où sa concentration est plus faible. Par ailleurs, le radon étant un gaz inerte, dense et très dilué, son transport est surtout lié au mouvement de son environnement, c'est-à-dire des autres gaz ou de l'eau infiltrée dans le sous-sol. Le gradient de température est le moteur de la convection de ces fluides, mais c'est surtout le gradient de pression – le moteur de l'advection – qui induit une vitesse de Darcy<sup>2</sup> et qui engendre le transport du radon.

## Impact radiologique : calcul de dose efficace

Le radon gazeux, à l'air libre, est susceptible d'être inspiré par des êtres humains. Sa désintégration de type alpha pose alors un risque radiologique important. Son impact a donc été quantifié par plusieurs agences de radioprotection et des normes ont été imposées. Il y a tout d'abord une norme sur la dose efficace de radioactivité absorbée. En France, la dose efficace moyenne liée au radon est de 1,43 mSv/an (figure 36) [12]. Cette exposition est en partie d'origine naturelle, puisque le radon est un élément naturellement présent dans les sols, notamment dans les zones granitiques. En revanche, l'exposition au radon peut également être d'origine anthropique, ce qui justifie l'introduction d'une norme [13]. La valeur limite d'exposition du public ou des travailleurs non exposés au radon est de 1 mSv et de 20 mSv pour les travailleurs majeurs exposés (figure 37).

Depuis le 1<sup>er</sup> juillet 2018, le niveau de référence de l'activité volumique du radon dans l'air est fixé à 300 Bq/m<sup>3</sup> en moyenne annuelle [14] dans les bâtiments habités, publics ou accueillant des travailleurs. L'annexe C 3) donne le détail du calcul de la dose efficace en mSv à partir de la valeur de l'activité volumique du radon.

À la surface de la zone d'enfouissement des résidus de la Ribière, la valeur déterminée analytiquement de l'activité volumique est de  $a = 180 \text{ Bq/m}^3$  (voir calcul en annexe C 3). Pour une ventilation naturelle  $F = 0,4$  et 46 semaines de travail à 35h au dessus des résidus, la dose efficace absorbée par un travailleur est de 0,90 mSv. Cette valeur respecte les normes établies par le code du travail ainsi que la dose limite pour les civils.

## Enjeux sanitaires

Les principales études sanitaires sur ce gaz ont été menées dans les années 1920. D'après elles, une exposition chronique au radium par ingestion peut causer non seulement des anémies mais aussi des cancers et une détérioration des tissus du squelette.

Plus récemment, l'IRSN a mené une étude sur le lien entre l'augmentation du taux de décès par cancer du poumon et la présence de radon dans les maisons [15]. Bien que proches des limites de significativité statistique, les résultats suggéraient une augmentation faible du risque de cancer du poumon associée à l'exposition au radon domestique.

<sup>2</sup>Pour davantage de détails sur la loi de Darcy, se référer à l'annexe B.

### c) Autres polluants

Alors que l'on a tendance à se focaliser sur l'uranium et le radium dans l'étude des anciennes mines d'uranium, d'autres métaux toxiques peuvent être présents. Ainsi, le fer par exemple peut être trouvé à des concentrations assez élevées, liées à la présence d'oxydes de fer dans le milieu. L'inhalation de concentrations excessives d'oxyde augmente le risque de développement de cancer du poumon, particulièrement pour les ouvriers exposés. Le plomb nuit également au système sanguin, au système nerveux, et au système rénal.

L'aluminium a quant à lui un impact sur le système osseux et sur le système nerveux. Cependant, d'après Santé Publique France, la détermination de l'impact sur la santé de l'exposition humaine à l'aluminium reste encore extrêmement difficile et source de nombreuses controverses. Une étude a été menée par l'Agence Française de Sécurité Sanitaire et a mis en évidence que l'aluminium pouvait avoir un impact négatif sur l'environnement et les hommes mais sans pouvoir définir précisément les impacts.

La gestion de ces pollutions est donc un enjeu important lors du réaménagement d'une mine. Les acteurs publics sont chargés de veiller à ce que l'exploitant étudie toutes ces pollutions et les traite.

## 2) La dimension sociétale

### a) La prise en charge des tensions entre riverains et entreprises

De nos jours, certaines tensions sont encore parfois présentes entre Orano et les riverains. Certains d'entre eux souhaitent en effet davantage d'informations à propos des anciennes mines et de l'enfouissement des déchets radioactifs. Les organisations locales, comme l'association Source et Rivière du Limousin, se tournent alors vers des organisations à but non lucratif pour disposer d'un regard critique sur la gestion des sites. L'une de ces organisations est la CRIIRAD (Commission de Recherche et d'Information Indépendantes sur la Radioactivité). Cette association, créée en 1986, agit pour un accès plus direct à l'information sur la radioactivité à l'aide d'un laboratoire de recherche indépendant. Dans les années 1990, elle décide de se tourner vers la surveillance des anciens sites miniers à la demande d'acteurs locaux qui doutent des informations transmises par la Cogema (Compagnie générale des matières nucléaires, devenue Areva NC en 2006 puis Orano Cycle en 2018). Le but de la CRIIRAD est de faire des constats sur les sites en prélevant des échantillons, et de former des citoyens à continuer cette surveillance [16] [17].

Le dialogue entre les différentes parties concernées, comme les entreprises en charge du réaménagement, des CSS (Comité de Suivi des Sites) ou d'autres acteurs comme l'IRSN permet aux mines d dépasser ICPE (Installation Classée pour la Protection de l'Environnement) et l'exploitant se voit alors obligé d'apporter des mesures complémentaires au site.

Pour poursuivre la surveillance des sites sur des périodes de temps plus longues, un Collectif Mines d'Uranium (CMU) a été mis en place. Le CMU contrôle la gestion des anciens sites miniers et la critique quand il estime qu'un ancien site représente un danger pour l'environnement ou pour les riverains [18].

## b) Gestion des risques par un acteur extérieur : le rôle de l'IRSN

Compétent sur les risques liés à la radioactivité, l'Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire (IRSN), créé en 2001, fonctionne sous la tutelle conjointe des ministères de la Défense, de l'Environnement, de la Recherche de la Santé. Il s'agit de l'expert français en matière de recherche et d'expertise sur les risques nucléaires et radiologiques. L'IRSN s'intéresse à l'impact radiologique sur la santé et sur l'environnement et intervient dans la gestion de la sûreté et de la sécurité nucléaire. Lors de la prise en charge d'un projet comportant un risque radiologique, l'IRSN, les concepteurs ou constructeurs, les autorités publiques et les parties prenantes sont en interaction mutuelle. L'IRSN s'occupe entre autres du réaménagement des anciennes mines d'uranium en France. Pour ce faire, l'institut doit tout d'abord connaître l'impact radiologique de l'ancienne mine sur l'environnement et sur les populations. Le modèle ERICA (méthode d'évaluation du risque environnemental associé aux rejets de substances radioactives) est utilisé pour déterminer le risque environnemental en effectuant des mesures dosimétriques sur le terrain. L'objectif est d'évaluer les risques pesant sur les écosystèmes aquatiques [3].

L'institut mène des expertises afin d'évaluer des points techniques particuliers, concernant notamment l'impact radiologique de certains sites. Lorsqu'elles sont réalisées à la demande des préfets, les interventions de l'IRSN prennent en général la forme de tierces expertises, portant sur les documents techniques produits par Orano au sujet des travaux menés par l'entreprise sur les sites ou au sujet de l'impact environnemental de ceux-ci.

Pour les sites miniers, l'enjeu est le long terme : les termes sources peuvent rester actifs pendant des dizaines ou des centaines d'années (voire plus). Les réglementations qui s'appliquent sur ces sites sont le code de la santé publique, pour la protection du public contre les rayonnements ionisants autour des anciens sites miniers d'uranium ; le code minier, pour la partie exploitation, surveillance et réaménagement ; et le code de l'environnement, pour le stockage des résidus. L'objectif pour les entreprises est de faire en sorte que les eaux rejetées dans l'environnement soient conformes aux limites fixées par arrêté préfectoral. Il est basé sur les limites fixées par le RGIE (Règlement Général des Industries Extractives) [3].

## 3) Les différentes normes mises en place

### a) Acteurs de la législation

De nombreux acteurs interviennent dans la mise en place d'une législation régissant la qualité des eaux. Tout d'abord, c'est l'Union Européenne qui établit des directives. Puis, en France, le Ministère de l'environnement contrôle le Comité National de l'Eau, qui évalue la qualité et le prix de l'eau, et l'Office National de l'Eau et des Milieux Aquatiques qui contrôle les usages des milieux aquatiques. Il existe aussi des institutions régionales telle que la direction régionale de l'environnement, de l'aménagement et du logement. À l'échelle locale, les collectivités territoriales sont compétentes pour les travaux de Gestion des Milieux Aquatiques et de Prévention des Inondations. Enfin, les acteurs économiques et les diverses associations de protection de l'environnement entrent en jeu : les industriels et les agriculteurs sont responsables de leurs installations de dépollution et de prélèvement [19].

## b) Cas de l'eau rejetée dans l'environnement

Lorsqu'il n'est pas nécessaire que l'eau soit potable, la DCE (Directive-Cadre sur l'Eau) est la directive européenne qui fait loi. Adoptée en 2000 pour préserver la ressource en eau, elle indique des valeurs seuils pour protéger la vie humaine mais aussi l'environnement. Les NQE (Normes de Qualité de l'Eau) sont définies dans la DCE au niveau européen pour les substances polluantes prioritaires. La NQE est la plus faible des PNEC ("Predicted No Effect Concentration") : concentration en dessous de laquelle aucun effet inacceptable n'est observé. Ces NQE n'étant définies que pour les polluants considérés comme prioritaires, des VGE (Valeur Guide Environnementale) ont été établies : elles sont calculées comme les NQE mais n'ont pas de valeur réglementaire (donc ne sont pas obligatoirement respectées).

Pour définir ces normes, il faut notamment prendre en compte le fond géochimique. Ce dernier correspond à la composition chimique du sol et du sous-sol. On distingue généralement le fond géochimique naturel, qui est le fruit de l'évolution de la roche-mère et d'apports naturels, et le fond d'origine anthropique, qui résulte des activités humaines. Le fond géochimique naturel est parfois confondu avec le bruit de fond, mais ce dernier comprend également des apports anthropiques diffus.

Pour quantifier la quantité de polluants dans le milieu, les différents acteurs ont besoin de connaître le fond géochimique du milieu afin de savoir s'ils dépassent sa valeur pour les polluants lors du rejet des eaux dans l'environnement. Or, ce bruit de fond est difficile à quantifier car il dépend du milieu. De plus, au sein d'un même site, sa valeur peut varier d'un point à un autre. Les acteurs rencontrent alors des difficultés à quantifier la quantité de polluants qu'ils rejettent dans l'environnement et peuvent parfois dépasser les valeurs seuils en prenant en compte une valeur de bruit de fond géochimique plus importante. De plus, la proportion naturelle en certains éléments est parfois supérieure à celle fixée par la législation. C'est en France le cas du baryum, du fluor ou encore du nickel, illustrant la difficulté à établir des normes qui puissent être respectées partout.

## c) Cas de l'eau potable

Lorsque l'eau est destinée à la consommation humaine, les critères de potabilité sont établis sur base des recommandations en vigueur de l'Organisation Mondiale de la Santé (OMS) et sur des données scientifiques établissant des doses maximales admissibles (DMA). Ces DMA définissent la quantité maximale d'une substance qu'une personne peut absorber tous apports confondus sans danger chaque jour, sa vie durant. Ces doses sont calculées pour des personnes fragiles (bébés, femmes enceintes, individus immunodéprimés).

Ces critères sont basés sur les principaux indicateurs de la qualité de l'eau. Ils indiquent les germes pathogènes, virus et bactéries, micro-organismes parasites ainsi que les autres polluants chimiques à éliminer, et de même quels sels minéraux et quels oligo-éléments sont à conserver (comme le calcium, le magnésium, le chlore ou le fer). Afin de fixer une réglementation adaptée, une différence fondamentale est établie entre références de qualité et normes de qualité : les normes de qualité, impératives, concernent les substances pouvant avoir une répercussion sur la santé tandis que les références de qualité (couleur, odeur) sont des indicateurs reflétant le bon fonctionnement des installations de production d'eau potable. La qualité de l'eau potable est décrite en particulier par la Directive européenne 98/83 du 3 novembre 1998 et par le décret 2001-1220 qui fixe les limites et références de qualité pour l'eau potable. Plus spécifiquement, en France, le code de santé publique (CSP) régit le socle de la réglementation en matière de qualité, de production et de distribution de

l'eau et transpose les directives européennes [20].

#### d) Comparaison des normes avec d'autres pays

En Australie, les *Environmental Requirements* (ER) pour la mine d'uranium de Ranger, établis en 1999, fixent les normes de protection environnementale auxquelles l'entreprise responsable d'un site minier doit se soumettre [21]. L'entreprise doit pour cela suivre le principe BPT (*Best Practicable Technology*), en implémentant la technologie disponible ayant le plus de retombées positives sur l'environnement. L'Australie a donc mis en place un mode de gestion ALARA (*As Low As Reasonably Achievable*) pour le contrôle et la réhabilitation de ses mines d'uranium. Les mesures correctives doivent être prises en accord avec le ministère de l'environnement, mais ce sont les compagnies minières qui ont la responsabilité de réaliser la réhabilitation et de payer les coûts associés jusqu'à ce que les autorités estiment que le site a été réhabilité à un niveau satisfaisant.

En Allemagne, le *Strahlenschutzgesetz*, établi en 2017 et implémentant une directive européenne, fournit le cadre juridique de la protection face aux effets néfastes des radiations et établit les bases légales de radioprotection [22]. Cette loi met en place des valeurs limites précises de concentration, d'activité et de dose effective annuelles pour différentes espèces radioactives et différents publics. Par exemple, la limite générale de la dose efficace annuelle pour le public est de 1 mSv, c'est-à-dire la même qu'en France, et la concentration d'activité de l'uranium ne doit pas dépasser 10 kBq/kg. La réhabilitation des mines d'uranium allemandes est principalement gérée par la société Wismut, détenue et financée par l'État allemand. Elle est chargée du démantèlement des mines, du réaménagement des sites et de la surveillance des installations et des émanations. Cependant, il n'existe pas de loi spécifique à la gestion des mines d'uranium après la fin de leurs activités, ni de législation globale sur les méthodes à appliquer. Le gouvernement allemand préfère appliquer des méthodes propres à chaque site afin d'apporter des réponses adaptées.

Aux États-Unis, en 1950, le *US Public Health Service* a réalisé une étude sur les mineurs d'uranium, conduisant à la première publication en 1962 d'une corrélation statistique entre le cancer et l'extraction d'uranium. Le gouvernement fédéral a finalement réglementé la quantité standard de radon dans les mines en 1969 fixant le niveau à 0,3 WL. L'USAEC (*United States Atomic Energy Commission*) formule des recommandations concernant la caractérisation du niveau de base de la qualité des eaux souterraines avant le début des opérations minières, la surveillance pour détecter l'évolution de lixiviat pendant l'exploitation minière et la surveillance à long terme pour déterminer à quel moment la qualité des eaux souterraines se stabilise après la fermeture des opérations minières. L'objectif de qualité physico-chimique à atteindre dépend de la réglementation locale, généralement de concentration aussi proche que possible du niveau de base. Cependant, une étude publiée par l'*U.S. Geological Survey* en 2009 a révélé que « À ce jour, aucune opération après ISR (in-situ recovery) aux États-Unis n'a réussi à restaurer l'eau dans l'aquifère au niveau de base ».

Le Canada est un des plus importants producteurs d'uranium. C'est un État fédéral et la responsabilité de la réglementation de traitement et la réhabilitation est partagée entre les gouvernements provinciaux et le gouvernement fédéral. L'AECB (*Atomic Energy Control Board*), un organisme gouvernemental indépendant, est responsable des affaires liées à l'énergie nucléaire et aux matières radioactives. Bien que le Canada réglemente les mines d'uranium, les provinces sont les principaux propriétaires fonciers. Ainsi, les mines d'uranium fermées reviendront finalement aux provinces ou redeviendront des terres de la Couronne. Les agences environnementales provinciales sont les principaux régulateurs de la qualité de l'eau de tous les sites miniers. Des normes spécifiques sont

développées pour chaque site mais un certain nombre de critères communs sont néanmoins applicables à tous. Par exemple, une valeur limite de 1 mSv par an pour l'équivalent de dose efficace moyen est à respecter sur une période de 50 ans après la fermeture des sites d'uranium, ainsi que les autres exigences légales sur la sécurité nucléaire et la protection radiologique mises en place par l'AECB. Si l'entreprise qui exploitait la mine, ou son successeur, existe toujours, elle doit s'occuper des déchets sur ses sites. Sinon, le site est sous responsabilité des gouvernements provincial et fédéral. La plupart des sites présentent un risque très faible en raison des faibles teneurs de minerai, de leurs emplacements éloignés des populations et du fait que les polluants se sont dissipés au cours des dernières décennies. En raison des moyens financiers importants que cela nécessiterait, de nombreux sites ne font pas l'objet de traitements.

### III. Solutions pour l'après-mine

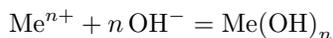
#### 1) Les différentes méthodes de traitement des eaux

##### a) Fonctionnement et coûts

###### Traitement par précipitations

Le procédé de traitement des eaux le plus répandu en France est le traitement actif par précipitation et coagulation-floculation-décantation (figure 7). Il équipe onze des quinze stations de traitement des eaux de sortie de mine d'uranium françaises.

Lors de la précipitation, les métaux dissous dans l'eau, généralement du fer, de l'aluminium, de l'uranium ou du radium, sont transformés en précipités insolubles par l'ajout de réactifs, souvent de la chaux ou de la soude, selon la réaction suivante :



L'ajout de sulfate d'alumine permet la formation d'hydroxyde d'aluminium sur lequel les éléments sont susceptibles d'être fixés par sorption. De même, l'utilisation de chlorure de baryum permet de piéger du radium par la création d'un co-précipité baryum-radium. Ces réactions s'accompagnent d'une augmentation du pH. Le pH favorisant la précipitation étant différent selon les substances à éliminer, le pH doit être ajusté à une valeur optimale dépendant des éléments présents dans l'eau, par exemple par l'ajout de soude ou de chaux. La coagulation-floculation consiste en l'agrégation des précipités non décantables en flocs décantables. Les réactifs couramment utilisés à cette fin sont la chaux ou les polymères organiques à longue chaîne carbonée. Les phases eau et flocs sont alors séparées par une décantation. Elle peut se faire par passage des effluents dans plusieurs bassins successifs (figure 7) ou par passage à travers un lit de boue. Les eaux à la surface des décanteurs sont évacuées et les boues créées chargées en polluants sont récupérées au fond des cuves pour être déshydratées puis traitées [23].

Ce procédé est largement répandu pour le traitement industriel d'eaux riches en métaux. Il nécessite de nombreuses installations pour contenir les matières (cuves de préparation ou de stockage des réactifs nécessaires aux différentes étapes, cuves de précipitation, coagulation, décantation), pour traiter les déchets formés (filiale de traitement des boues) et contrôler les caractéristiques des eaux

en réaction comme en sortie (mesure de la stoechiométrie, du pH...). La maintenance nécessaire à un tel traitement se divise entre le nettoyage préventif des cuves et l'étalonnage des sondes. En prenant également en compte la consommation énergétique du site et le prix des réactifs, le prix de traitement d'un mètre cube d'effluent par précipitation-coagulation-floculation varie entre 0,20 € et 0,50 € en fonction des réactifs utilisés [24].



FIGURE 5 – Une résine échangeuse d'ions (Orano)



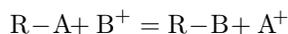
FIGURE 6 – Les colonnes de résines échangeuses d'ions de l'usine de traitement de Lodève dans l'Hérault (Orano)



FIGURE 7 – Bassin de décantation (Orano)

### Traitement par résines échangeuses d'ions

Les résines échangeuses d'ions (figure 5) sont des macromolécules granulaires insolubles, possédant une grande surface réactive et donc une grande capacité de sorption. Elles possèdent des radicaux capables de permuter avec certains ions d'une solution de manière réversible. Lors du traitement, la résine se trouve dans un réservoir cylindrique fermé sous pression relié à un filtre et alimenté par un dispositif collecteur du liquide à traiter. Cet ensemble est appelé colonne (figure 6). Le processus de traitement consiste à remplacer les ions centraux de complexes polluants par un autre type d'ion qui rendra le nouveau complexe inerte. Il existe deux types de résines échangeuses d'ions : les résines cationiques qui remplacent les cations des complexes de la solution (comme l'uranium  $U^{4+}$ ) par des cations inoffensifs présents sur ces radicaux et les résines anioniques qui permutent des anions de la même manière. L'échange se fait selon l'équation suivante, de manière réversible sans altération ni solubilisation :



où R est le radical de la résine, A l'ion de la résine fixé sur ce radical et B l'ion à éliminer.

Le traitement se décompose en plusieurs étapes. Si l'espèce polluante n'est pas sous forme ionique ou si l'eau contient trop de précipités, une élution est nécessaire. L'eau à traiter est ensuite envoyée grâce à une pompe dans le réservoir jusqu'à saturation de la résine. Ce réservoir est ensuite remplacé et transporté jusqu'au lieu de régénération de la résine, où est opéré le procédé inverse du traitement. L'injection d'une solution régénérante permet de remplacer les ions polluants (comme les ions uranium) par de nouveaux ions inertes. Les résines sont ensuite rincées à faible puis fort débit afin d'éliminer les traces de la solution régénérante. Elles peuvent ensuite être réutilisées pour le processus de traitement de l'eau.

Les réservoirs contenant les résines peuvent être disposés en série, pour augmenter l'efficacité du traitement de l'eau, ou bien en parallèle pour augmenter le débit d'eau traité. Lorsque les colonnes sont en série, le remplacement se fait de manière cyclique : la deuxième colonne prend la place de

la première qui est envoyée au site de régénération tandis que la troisième colonne prend la place de la deuxième et ainsi de suite. Une seule nouvelle colonne est ajoutée à la fin de la série [24].

Lors de la régénération des résines, il est possible de traiter la solution régénérante qui ressort du réservoir pour récupérer la substance polluante, soit pour une mise en déchet soit pour réutilisation. Ce processus est notamment très utilisé lors du traitement des eaux pour les mines d'uranium : l'uranium récupéré peut alors être revalorisé. Ce type de traitement s'applique principalement à l'uranium dans le cadre des mines et il permet également de traiter des eaux contenant des métaux solubles, des sulfates, des nitrates, des cyanures, des halogénures, etc. Le procédé est plus rarement utilisé pour les polluants organiques. La majorité des coûts du traitement par résines échangeuses d'ions correspond à l'élution, aux coûts humains, matériels et de transport de la matière polluante. Un demi équivalent temps plein est nécessaire pour surveiller les différents paramètres de suivi (débits d'eau, concentrations et paramètre de fonctionnements comme la consommation électrique...), pour remplacer les colonnes et nettoyer les filtres.

Dans le cas d'une mine d'uranium, la régénération des résines saturées permet de récupérer et revendre l'uranium à un prix avoisinant 80 €/kg. Le coût du matériel dépend directement du nombre de colonnes nécessaires et donc du débit d'eau à traiter : une colonne coûte 10 500 €. Le coût du transport correspond notamment aux déplacements des résines vers les lieux de régénération et dépend donc de l'éloignement entre le site de traitement de l'eau et le site de régénération des résines. L'ensemble des coûts de traitement varie alors entre 0,10 et 0,50 €/m<sup>3</sup> [24].

### Traitement par zones humides

L'utilisation d'une zone humide (*wetland* en anglais) est un moyen de traitement passif des effluents miniers : elle ne nécessite aucun apport d'énergie. Le procédé est encore à l'étude et son emploi est très marginal en France : une seule ancienne mine d'uranium en est équipée, on peut en voir une photo à la figure 32. Un *wetland* est une étendue d'eau artificielle reproduisant les conditions d'une tourbière et dans laquelle transitent des effluents miniers. L'abaissement des concentrations en contaminants dans l'eau repose sur trois procédés conjoints. D'une part, des bactéries sulfato-réductrices sont nourries par la matière organique présente dans la tourbe et permettent le maintien du caractère réducteur du milieu. Dans ces conditions, l'uranium tend à précipiter en uraninite insoluble. D'autre part, uranium et radium peuvent être sorbés sur la matière organique ou sur les fractions argileuses présentes dans la tourbe. Enfin, dans le cas d'eaux riches en fer, la présence d'une couche d'eau à la surface de la tourbière favorise la précipitation d'oxy-hydroxydes de fer capables de fixer uranium et radium.

Les coûts d'entretien d'une tourbière sont négligeables. Les seuls coûts significatifs lors de son fonctionnement sont ceux des analyses des eaux en sortie de la zone humide [24].

### Absence de traitement : prélèvements et analyses

Il est assez fréquent qu'aucun traitement ne soit nécessaire sur un site minier. Le coût n'est cependant pas nul : il faut continuer les prélèvements et analyses pour vérifier en permanence que l'eau n'a effectivement pas à être traitée et pouvoir maintenir une capacité de reprise rapide du traitement si un phénomène imprévu présente des dangers (apparition d'un nouveau rejet, effet saisonnier, variation d'un terme source suite à une variation géochimique...). Il est donc préférable de laisser les infrastructures en place après l'interruption d'un traitement, et de les entretenir ré-

gulièrement pour pouvoir recommencer le traitement si nécessaire. Les prélèvements devant être réalisés au moins une fois par semaine, les prélèvements et analyses réalisés dans l'ensemble de la filière après-mine représentent un coût annuel de 700 000 à 800 000 € [24].

### Stratégies d'autres pays miniers

Les méthodes d'exploitation des mines varient selon les pays. Par exemple, la technique de lixiviation in-situ (ISR) est utilisée dans 90 % des mines d'uranium américaines. Les techniques de traitement des eaux sont alors aussi différentes de celles employées en France. Aux Etats-Unis, les techniques d'osmose inverse (*reverse osmosis*) et de balayage souterrain (*groundwater sweep*) sont les plus utilisées. L'Allemagne utilise principalement, comme la France, les traitements par précipitation et par résines échangeuses d'ions [25][26] (voir annexe E).

## b) Comparaison et faisabilité des méthodes de traitement

### Investissement et mise en place

Les coûts détaillés à la partie précédente représentent principalement les OPEX (dépenses d'exploitation). Les CAPEX (dépenses d'investissement) représentent une dépense conséquente supplémentaire qui doit être considérée pour le choix d'un traitement. Ils prennent en compte les dépenses liées aux infrastructures et à l'achat du matériel pérenne non remplacé pendant l'exploitation. Ce coût est équivalent pour les traitements par précipitation et par zone humide, mais il est 4 à 5 fois plus important pour le traitement par résines échangeuses d'ions.

Il faut également prendre en compte la durée de vie du matériel pour comparer les coûts. Par exemple, si la construction d'un *wetland* demande un faible investissement, les travaux se réduisant souvent à quelques opérations de terrassement, la tourbe nécessaire à son fonctionnement semble devenir inefficace au bout de quelques années. Or l'approvisionnement en tourbe a un impact économique et environnemental important. En effet, l'exploitation industrielle de la tourbe française étant strictement réglementée, il peut être nécessaire de l'importer, souvent des pays baltes. L'impact environnemental des infrastructures est aussi à prendre en compte. Par exemple, alors que le traitement par précipitation nécessite la construction de nombreux bassins spacieux qui peuvent empiéter sur l'environnement, le *wetland* s'insère dans le paysage, accueillant la végétation et permettant le développement d'une faune spécifique.

### Exploitation et maintenance

Les méthodes de traitement présentent chacune des avantages et inconvénients relatifs à leur exploitation. Leurs caractéristiques techniques ne leur permettent pas de prendre en charge les mêmes débits d'effluents. Le traitement par précipitation et coagulation-floculation-décantation est le plus productif, avec environ 200 m<sup>3</sup> traités par heure, mais aussi le plus flexible, avec une bonne capacité d'adaptation aux variations saisonnières du volume d'effluent entrant. Le traitement par résines échangeuses d'ions permet le traitement d'environ 100 m<sup>3</sup> d'effluent par heure et présente une bonne adaptabilité au débit grâce à la possibilité de placer les bouteilles en série ou en parallèle. Au contraire, le *wetland* ne traite que de très faibles débits, de l'ordre du mètre cube par heure.

Le traitement par résines échangeuses d'ions est le traitement le plus efficace pour abattre la concentration en uranium de l'eau avec un rendement pouvant atteindre 95 % ou même 98 % lorsque les colonnes sont disposées en série. Tout comme le procédé de précipitation, qui permet d'atteindre dans de bonnes conditions des rendements de 90 %, il est en mesure d'éliminer une large gamme de polluants grâce au recours à différentes résines. L'efficacité de ces deux traitements est en outre sensible aux caractéristiques chimiques de l'effluent, telles que son pH ou la présence de certains éléments. Pour le traitement par résines, la présence de précipités peut très fortement nuire au traitement. Un prétraitement, l'élution, est alors nécessaire et représente la majorité des coûts du traitement par résines. Le *wetland* est de nouveau la solution la moins efficace, l'abattage des concentrations en uranium et radium étant de l'ordre de 50 à 70 %.

Le traitement par résines met en jeu des réactions rapides qui permettent, sous réserve de bonnes conditions chimiques, un traitement rapide des eaux. À l'inverse, le traitement par précipitation repose sur une longue phase de décantation pouvant durer plusieurs jours. Les deux solutions de traitement actif présentent également des coûts importants en maintenance (transport des résines, manutention des colonnes, nettoyage préventif des cuves) et en réactifs tandis que l'utilisation du *wetland* ne requiert pas la présence permanente d'un opérateur. Les seuls coûts associés à son fonctionnement sont les coûts des analyses de l'eau en sortie. Néanmoins, la durée d'efficacité du *wetland* semble courte : des données relevées en 2020 au bassin pilote de la mine d'Henriette ouvert en 2014 montrent que l'abattage des concentrations en uranium est moins important après cinq ans d'activité, passant d'environ 70 % à environ 50 %.

TABLE 1 – Coût d'exploitation des différents traitements [7]

Type de traitement	Coût d'exploitation en €/m <sup>3</sup>	Investissement en €
Précipitations	0,20 à 0,50	500 000 à 1 million
Résines échangeuses d'ions	0,10 à 0,50 (avec revente du polluant)	5 millions
Zones humides	Négligeable	nc

En termes de coûts, les traitements par zones humides et par précipitation sont plus avantageux que celui par résine car l'investissement et l'élution sont très coûteux, même en prenant en compte les éventuelles ventes après régénération de la résine.

### Gestion des déchets

Les traitements produisent des déchets sous différentes formes qu'il est nécessaire de stocker ou d'évacuer en respectant les normes. Le traitement par zone humide engendre des tourbes saturées au bout de quelques années. La question de la gestion de cette matière organique chargée est encore à l'étude. En outre, l'utilisation d'un *wetland* peut entraîner le relargage des métaux fixés dans l'environnement avoisinant. De même, le traitement par précipitation donne naissance à d'importants volumes de boues qui impliquent de nouveaux coûts de traitement ou de déshydratation. Il peut également augmenter les concentrations en sulfate dans l'eau.

Au contraire, le traitement par résines échangeuses d'ions est très bien perçu par les associations car il permet de retirer définitivement un certain type de polluant du site minier. C'est notamment le cas pour les mines d'uranium : les associations qui se focalisent souvent sur les dangers liés à

l'uranium sont satisfaites par l'exportation de ce dernier vers d'autres lieux où il va être traité puis revendu lors de la régénération des résines. Cependant ce type de traitement provoque la création de nouveaux déchets, à l'extérieur du site minier, lorsque le polluant ne peut pas être réutilisé après avoir été récupéré lors de la régénération des résines. Le problème est donc dans ce cas le même que la gestion des déchets liés aux traitements par zones humides et précipitations.

Le traitement de l'eau par résine échangeuse d'ion est alors plus avantageux que les autres principalement dans le cas où le polluant peut être récupéré après régénération de la résine : le coût est diminué grâce à la revente et le processus ne produit presque pas de déchets.

## 2) Les traitements sont-ils toujours nécessaires ?

### Étude de cas du site de la Ribière

#### a) Présentation du site de La Ribière

L'analyse du devenir des eaux après l'exploitation des mines d'uranium a été poursuivie par l'étude détaillée d'un cas réel. Le site minier de la Ribière a été sélectionné.

Situé sur la commune de Domeyrot dans la Creuse, ce site a été exploité de 1959 à 1984 par la compagnie TCMF (Total Compagnie Minière France). Il s'agit d'une mine à ciel ouvert (MCO) dans laquelle il n'y a pas eu de travaux miniers souterrains. 142,9 tonnes d'uranium y ont été extraites sur l'ensemble de la durée d'exploitation. Pour cela, il a fallu extraire 628 kt de minerais sur une superficie de près de 17 000 m<sup>2</sup>. Il s'agissait d'un minerai à faible teneur en uranium, avec une concentration de l'ordre de 350 ppm. Les opérations d'extraction du minerai brut ont occasionné la production d'un important volume de résidus et de stériles miniers. Les résidus, utilisés en grande partie pour remblayer l'ancienne mine, ont été traités de manière statique, par lixiviation *in situ* entre 1982 et 1985. Le site est entré en phase de réaménagement en 1991. Il a été recouvert avec une couche de stériles et de terre épaisse de 4 mètres puis partiellement végétalisé. Le site constitue aujourd'hui un bassin versant d'altitude maximale 405 mètres et longé par le ruisseau Le Verraux sur sa partie inférieure, à une altitude de 348 mètres.

Désormais géré par Orano Mining, le site de la Ribière est équipé d'appareils de mesure et de surveillance, notamment pour ce qui est de l'eau qui traverse le site. Ainsi, 4 points de prélèvements en surface sont répartis sur les 14 hectares pour la surveillance environnementale, notamment en ce qui concerne la biodiversité du site, tandis que 9 piézomètres permettent d'avoir une vision détaillée du profil géologique et hydrologique de la zone.

Selon les mesures effectuées par Orano Mining [27], le site respecte les normes environnementales en vigueur en termes de qualité des eaux à l'exutoire (le ruisseau du Verraux). La concentration en uranium mesurée est de  $7,6 \cdot 10^{-6}$  mol/L et la dose mesurée est de 1,37 Bq/L pour le <sup>226</sup>Ra. En effet, les normes applicables sont de 1,7 Bq/L pour le radium, par exemple.

Nous nous proposons donc de mettre en œuvre une approche de modélisation de transport réactif qui consiste à réaliser deux modèles du site, hydrologique et géochimique, qui seront couplés afin de confirmer ces mesures et d'obtenir une prévision à long terme de l'évolution de la qualité des eaux et du respect des normes.

## b) Modèle géochimique et 1D

### Modélisation

Dans le cadre de l'étude de cas du site de La Ribière, nous avons réalisé un modèle géochimique des résidus afin de comprendre la réactivité des résidus au sein de leur stockage et de représenter l'évolution du système. Une attention particulière a été portée aux mécanismes contrôlant la mobilité de l'uranium. Autant que possible, ces modèles ont été construits en accord avec les analyses minéralogiques des résidus et avec les analyses des prélèvements d'eaux en différents points du site de stockage et en aval de ce dernier (puits piézométriques [28]). La modélisation géochimique est réalisée à l'aide du logiciel HYTEC, développé depuis 1993 au sein du consortium *Pôle Géochimie Transport* fondé autour du Centre de Géosciences de Mines ParisTech - PSL. Il se base sur le logiciel CHESS [29] pour le calcul des équilibres chimiques.

Le modèle géochimique représente les deux faciès de résidus dans le site de stockage de la Ribière : faciès sable et faciès boue. Nous nous sommes servis des mesures de concentration en oxydes effectuées pour les deux faciès qui visaient à reconnaître les minéraux présents (figures 7 et 8). Nous avons sélectionné les oxydes principaux et nous en avons déduit les minéraux qui pouvaient les contenir. Nous avons ainsi construit un modèle à neuf minéraux représentatifs de chaque faciès (tableau 12). La concentration de chaque minéral a ensuite été calculée, en kilogramme par litre d'eau, à l'aide des concentrations en oxydes (description du calcul en annexe D).

Sur la base de cet assemblage minéral, nous avons écrit un script HYTEC pour calculer l'équilibre initial des deux faciès de résidus. Nous avons comparé les valeurs de pH, de concentration aqueuse en  $\text{UO}_2^{2+}$  et en  $\text{SO}_4^{2-}$  avec les mesures du piézomètre 3 (tableau 2). Notre modèle représentant les ordres de grandeur mesuré, nous avons gardé cette géochimie pour la suite de l'étude.

Notons que nous avons choisi de ne pas prendre en compte le radium, la co-précipitation avec la barytine  $\text{RaSO}_4$  essentielle pour représenter l'évolution du radium n'ayant pas pu être intégrée dans ce modèle.

TABLE 2 – Comparaison des valeurs simulées et mesurées

	pH	$\text{UO}_2^{2+}$	$\text{SO}_4^{2-}$
Simulé sable	4,4	1,03 $\mu\text{mol/L}$	$5,1 \cdot 10^{-2}$ mol/L
Simulé boue	5,7	2,6 $\mu\text{mol/L}$	$1,19 \cdot 10^{-2}$ mol/L
Mesuré	5,1	3,6 $\mu\text{mol/L}$	$1,77 \cdot 10^{-2}$ mol/L

Pour étudier la mobilité de l'uranium, nous avons utilisé notre modèle géochimique pour créer une colonne 1D de 200 m : 30 mètres de résidus (faciès sableux) suivi de 170 mètres de granite, la figure 8 représente cette colonne. Nous avons ensuite représenté l'écoulement en imposant un flux d'eau partant de la gauche (amont, résidu) pour s'écouler vers la droite (aval) (script en annexe F). Les paramètres physiques correspondent à ceux du site de La Ribière. Pour la vitesse de l'écoulement, nous avons utilisé la hauteur de charge, la porosité et la perméabilité des différents faciès traversés. Pour obtenir un modèle le plus réaliste possible, nous avons choisi d'équilibrer l'eau injectée dans les résidus avec le granite. Enfin, nous avons réalisé différentes simulations sur 100 ans pour étudier la mobilité de l'uranium et les facteurs l'influençant.

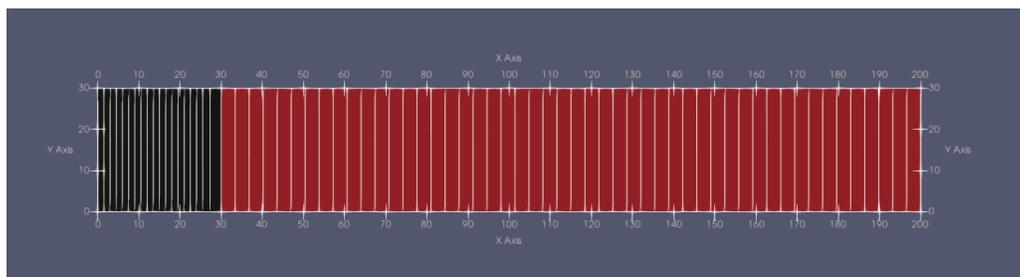
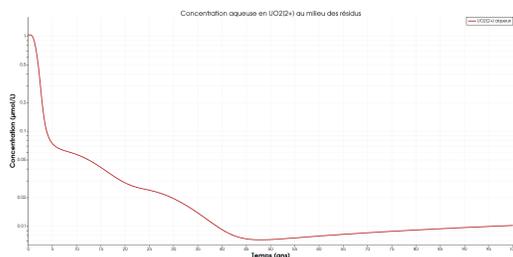
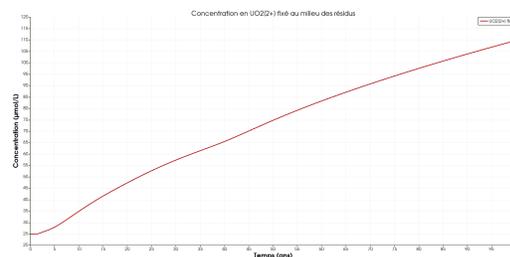


FIGURE 8 – Modélisation 1D des blocs de résidus (en noir) et de granite (en rouge)

### Étude du faciès sable

La première simulation réalisée vise à étudier la mobilité de l'uranium dans les conditions du site. Le pH de l'eau injectée est fixé à 6,1, pH mesuré au niveau du piézomètre 2, juste avant la zone de résidus. Dans un premier temps, nous avons regardé l'effet de l'interaction entre l'eau et les résidus, et en particulier sur l'autunite, de formule  $\text{Ca}(\text{UO}_2)_2(\text{PO}_4)_2 \cdot 3 \text{H}_2\text{O}$ .

On peut alors remarquer que la quantité d'autunite est dissoute au cours du temps (figure 51). Le premier phénomène en jeu ici est la dissolution de l'autunite. Un équilibre chimique va s'établir entre l'eau et les résidus : la concentration aqueuse en  $\text{UO}_2^{2+}$  de l'eau injectée est nulle, l'autunite se dissout pour que le système reste à l'équilibre. On note cependant que la concentration d' $\text{UO}_2^{2+}$  dans la phase aqueuse au niveau des résidus chute assez rapidement.

FIGURE 9 – Concentration aqueuse en  $\text{UO}_2^{2+}$  au milieu des résidusFIGURE 10 – Concentration en  $\text{UO}_2^{2+}$  fixé au milieu des résidus

La concentration à l'équilibre initiale est environ  $1 \mu\text{mol/L}$ , puis en seulement 5 ans, elle est divisée par 10, pour finalement atteindre moins de  $10^{-2} \mu\text{mol/L}$ . L'uranium obtenu par la dissolution de l'autunite ne reste pas en solution. Un second mécanisme est en jeu, l'uranium est fixé sur la montmorillonite et la ferrihydrite grâce au mécanisme de sorption.

La sorption est un phénomène d'échange cationique sur des sites libres en surface de minéraux, notamment sur les argiles. Son efficacité dépend donc de la surface spécifique des minéraux impliqués dans la sorption (typiquement  $600 \text{ m}^2/\text{g}$  pour les argiles) et de la capacité de fixation, qui est de l'ordre de  $1 \mu\text{mol}/\text{m}^2$  (soit  $6 \cdot 10^{-4} \text{ mol}/\text{g}$  pour les argiles). Cependant,  $\text{UO}_2^{2+}$  n'est pas le seul cation présent en solution pouvant être échangé. Les cations  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{H}^+$  et  $\text{Mg}^{2+}$  peuvent également se fixer sur la montmorillonite. Néanmoins, pour le pH étudié, seul  $\text{Ca}^{2+}$  se fixe au cours du temps. Les trois autres ont plutôt tendance à être libérés, ils n'empêchent donc pas la sorption de l'uranium.

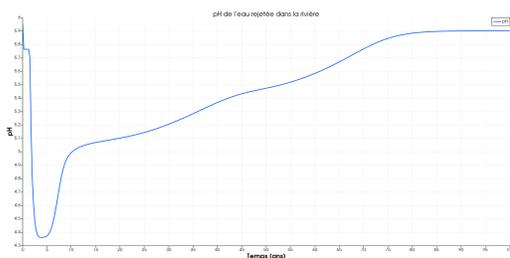


FIGURE 11 – pH de l'eau rejetée dans la rivière

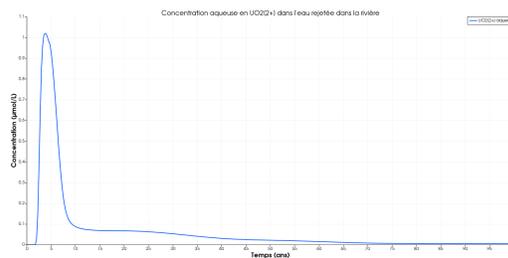


FIGURE 12 – Concentration aqueuse en  $\text{UO}_2^{2+}$  dans l'eau rejetée dans la rivière

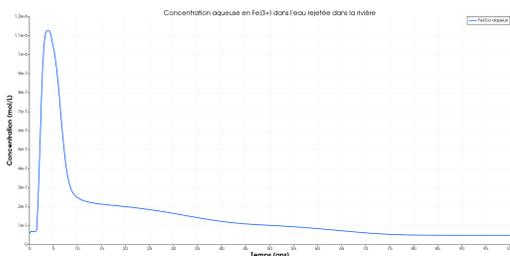


FIGURE 13 – Concentration aqueuse en  $\text{Fe}^{3+}$  dans l'eau rejetée dans la rivière

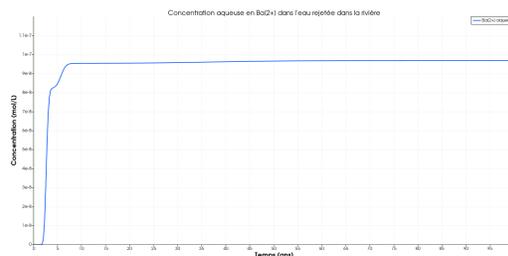


FIGURE 14 – Concentration aqueuse en  $\text{Ba}^{2+}$  dans l'eau rejetée dans la rivière

Dans un deuxième temps, nous avons regardé les caractéristiques physico-chimiques de l'eau rejetée dans la rivière : le pH, la concentration aqueuse en  $\text{UO}_2^{2+}$ , en  $\text{Fe}^{3+}$  et en  $\text{Ba}^{2+}$ .

On remarque alors pour l'uranium un pic à  $1 \mu\text{mol/L}$  - correspondant au déplacement des ions en solution à l'équilibre initial - puis un établissement de la concentration inférieur à  $0,1 \mu\text{mol/L}$ . Toutefois, la concentration augmente doucement à partir de 80 ans. En effet, les sites de sorption disponibles sont de moins en moins nombreux pour l'uranium et donc les ions uranyles sont de moins en moins fixés dans les résidus. Mais le phénomène reste faible. La concentration en baryum est négligeable et celle en fer ne dépasse pas les  $70 \mu\text{g/L}$ . La norme de potabilité pour le fer est fixée à  $0,2 \text{ mg/L}$ , il n'y aurait donc à priori aucun problème pour le fer tant que les conditions ne sont pas trop acides et n'entraînent pas la dissolution de la ferrihydrite.

### Influence du pH sur la mobilité de l'uranium

Pour étudier l'influence du pH sur la mobilité de l'uranium, nous avons choisi de changer le pH de l'eau injectée en entrée du modèle. Nous avons fait les simulations pour deux autres pH d'entrée : 4 et 8. Les résultats pour les trois pH sont superposés sur les mêmes courbes.

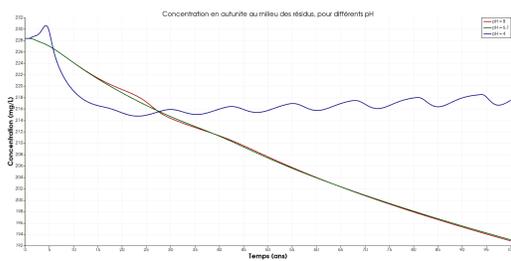


FIGURE 15 – Concentration en autunite au milieu des résidus, pour différents pH

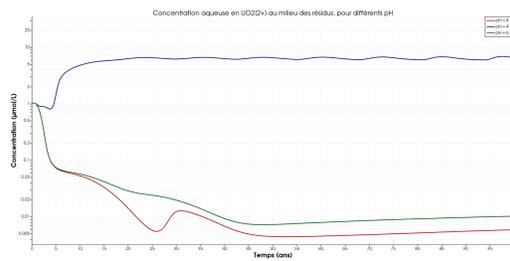


FIGURE 16 – Concentration aqueuse en  $UO_2^{2+}$  au milieu des résidus, pour différents pH

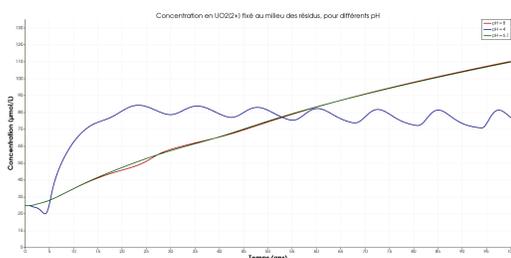


FIGURE 17 – Concentration en  $UO_2^{2+}$  fixé au milieu des résidus, pour différents pH

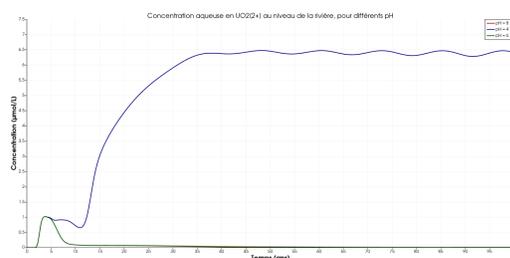


FIGURE 18 – Concentration aqueuse en  $UO_2^{2+}$  au niveau de la rivière, pour différents pH

Lorsque que le pH devient acide, la concentration aqueuse en  $UO_2^{2+}$  au niveau des résidus augmente et la concentration d'ions fixés diminue par rapport aux pH neutre et basique. La dissolution de l'autunite est moins régulière : elle se fait alors par paliers, en commençant par le premier endroit en contact avec le pH acide. Il y a donc plus d'ion  $UO_2^{2+}$  en solution et ils sont beaucoup moins fixés. On peut donc voir qu'une concentration bien plus importante atteint la rivière (presque 100 fois plus que pour un pH neutre ou basique). De plus, d'autre polluant comme le fer et le baryum sont également plus présents (figures 52 et 53).

Pour comprendre pourquoi l'uranium était moins fixé, nous avons étudié les concentrations des autres cations fixés sur la montmorillonite (figures 54, 55 et 56).

Hormis le calcium, les autres cations sont davantage fixés avec un pH bas. Un pH plus élevé n'a au contraire pas de grande influence. Les sites de fixation sont en fait préférentiellement utilisés par les cations  $Mg^{2+}$  et  $K^+$ , empêchant alors l'uranium de se fixer. Ainsi, le pH influence fortement la mobilité de l'uranium. Un pH plus élevé (basique) ne change presque rien à la sorption de l'uranium et donc à la concentration aqueuse en  $UO_2^{2+}$  dans l'eau rejetée dans la rivière par rapport au pH initial de 6,1. Cependant, lorsque le pH devient acide, les cations d'uranium sont beaucoup moins fixés car remplacés par du magnésium et du potassium, voire même par des ions  $H^+$ . La concentration en  $UO_2^{2+}$  est ainsi beaucoup plus élevée en sortie du modèle. Le contrôle du pH en amont des résidus est donc primordial pour le site.

### Étude d'une possibilité de sorption sur des hydroxydes d'aluminium précipités

À l'aide du modèle, nous avons simulé un traitement de l'eau par sorption sur des hydroxyde

d'aluminium. Nous avons donc injecté des ions  $\text{Al}^{3+}$  en solution en entrée du modèle. Cependant, la précipitation de  $\text{Al}(\text{OH})_3$  consomme des ions  $\text{OH}^-$  et diminue donc le pH. Il se situe alors autour de 4,5. On observe donc une augmentation de la concentration en ions  $\text{UO}_2^{2+}$  dans la solution. Par ailleurs, l'hydroxyde d'aluminium ne précipite qu'à l'entrée du modèle (dans les deux premières mailles).

En sortie du modèle, on obtient une forte concentration en aluminium dans l'eau (324 mg/L contre 200 µg/L pour la norme) et en uranium. Nous avons donc ajouté des hydroxydes d'aluminium en aval des résidus pour simuler une résine échangeuse d'ions et ajouter de la sorption. Nous regardons alors les caractéristiques physico-chimiques de l'eau en sortie du modèle, comparées avec celles que nous avons sans  $\text{Al}(\text{OH})_3$  en aval des résidus.

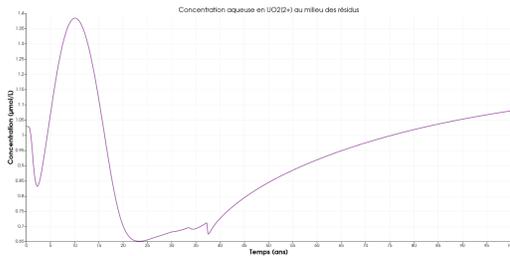


FIGURE 19 – Concentration aqueuse en  $\text{UO}_2^{2+}$  au milieu des résidus

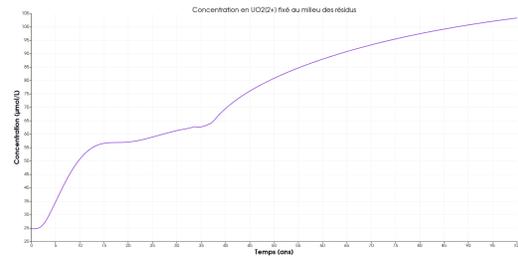


FIGURE 20 – Concentration en  $\text{UO}_2^{2+}$  fixé au milieu des résidus

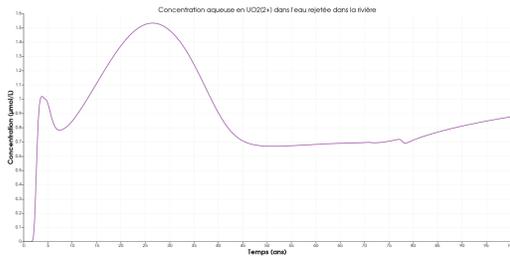


FIGURE 21 – Concentration aqueuse en  $\text{UO}_2^{2+}$  dans l'eau rejetée dans la rivière

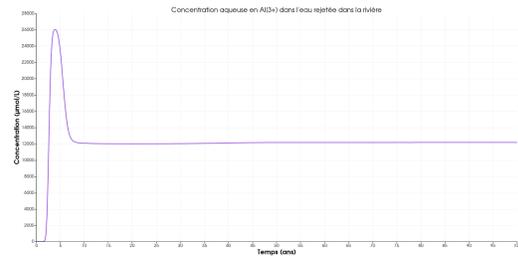


FIGURE 22 – Concentration aqueuse en  $\text{Al}^{3+}$  dans l'eau rejetée dans la rivière

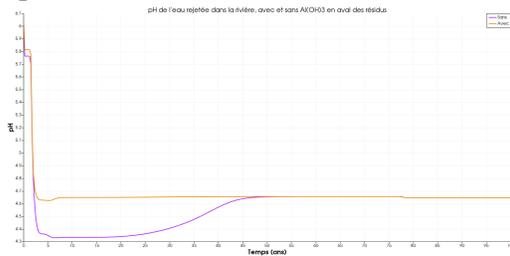


FIGURE 23 – pH de l'eau rejetée dans la rivière, avec et sans  $\text{Al}(\text{OH})_3$  en aval des résidus

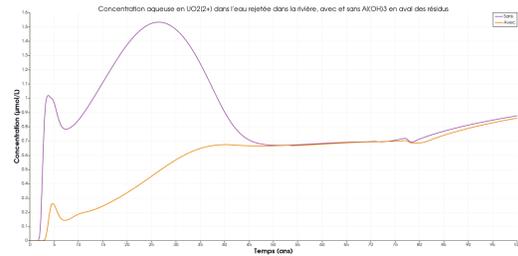


FIGURE 24 – Concentration aqueuse en  $\text{UO}_2^{2+}$  dans l'eau rejetée dans la rivière, avec et sans  $\text{Al}(\text{OH})_3$  en aval des résidus

On obtient effectivement moins d'uranium en solution pendant les 50 premières années, mais ensuite, la concentration se stabilise à 0,7 µmol/L pendant 30 ans puis augmente. La sorption est alors de moins en moins efficace. On remarque de plus que le pH reste acide, ce qui explique des

concentrations en  $\text{UO}_2^{2+}$  élevées. Pour l'aluminium, on reste bien au-delà des normes en vigueur (figure 57). Finalement, un traitement par sorption sur les hydroxydes d'aluminium semble efficace, mais pas sur le long terme. Pour envisager un tel traitement, il faut être capable de renouveler les hydroxydes d'aluminium tous les 30 ans, ou bien injecter des ions  $\text{Al}^{3+}$  dans l'eau dans une station de traitement, puis réguler le pH (le pH n'est alors pas assez acide pour empêcher  $\text{UO}_2^{2+}$  de se fixer sur la montmorillonite). Il faut cependant faire attention aux autres polluants, notamment à l'aluminium, dont la quantité en solution est non négligeable en sortie de traitement.

### c) Modèle hydrogéologique 2D

#### Modélisation

La construction du modèle de transport réactif du site de la Ribière nécessite de réaliser un modèle hydrogéologique représentatif afin de pouvoir analyser et prévoir à long terme l'écoulement des eaux qui traversent le site. Comme pour la colonne (section b)), l'eau provient des précipitations atmosphériques et s'écoule entre la zone de stockage et le ruisseau du Verraux en contrebas. L'objectif de ce modèle plus précis est de représenter l'infiltration et le déplacement de l'eau au sein du stockage de résidus et du massif granitique encaissant. Les chroniques de précipitations et le profil piézométrique permettent de contraindre les vitesses sur une coupe transversale, ainsi que le débit d'exhaure au niveau du ruisseau.

Nous avons pour cela utilisé un rapport hydrogéologique du site, daté d'avril 2010 [28], ainsi qu'une étude complémentaire de 2011 [30]. Nous nous sommes basés sur les relevés des 9 piézomètres du site et des 8 forages et avons décidé de faire une modélisation sur la coupe, représentée en figure 25. Cette coupe a été choisie car elle couvre la topographie du site (de 395 m à 348 m d'altitude), la zone de résidus et la rivière. De plus, cet axe dispose de cinq piézomètres et est à proximité de 5 forages, ce qui permet de reconstituer le système hydrogéologique du site.

Les relevés des carottés réalisés pendant la construction des piézomètres ainsi que les forages permettent de définir plusieurs zones (figures 34 et 35). À la surface se trouve une zone composée d'une arène granitique et de stériles miniers sur une épaisseur moyenne de 4 mètres. Elle est composée de deux faciès, un faciès sableux et un faciès boueux. La zone contenant les résidus miniers se situe quelques mètres en dessous. Elle est longue d'environ 70 mètres et épaisse d'une dizaine de mètres. Cette zone est entourée de granite fracturé (en jaune sur la figure 35). En dessous de cette dernière se trouve une zone de granite sain. Les résidus de traitement apparaissent donc comme localisés et situés proches d'une zone de granite fracturé.

Les relevés piézométriques permettent également de définir le profil de charge : le piézomètre PZ2 indique une profondeur d'eau à environ 24 mètres et le piézomètre PZ9 à 1 mètre, ce qui correspond au ruisseau du Verraux.

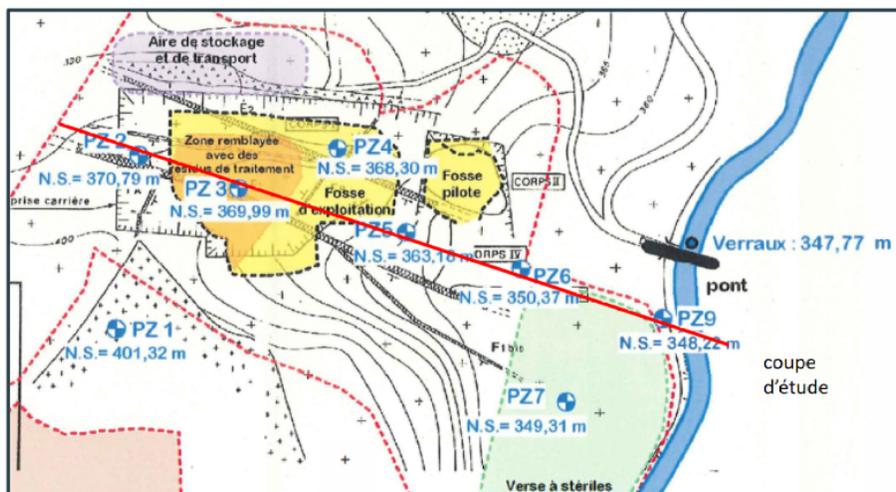


FIGURE 25 – Coupe du site de la Ribière

Les précipitations effectives correspondent à la quantité d'eau due aux précipitations rentrant dans le système (après avoir notamment pris en compte l'évapotranspiration) : ce sont donc les conditions imposées au modèle dans la couche supérieure. Celle-ci sert d'interface au système et permet à l'eau en surface de pénétrer dans les autres zones, ce qui génère un flux vertical qui va notamment influencer la mobilité des éléments chimiques dans la zone de résidus. La prise en compte des variations saisonnières permet de représenter les évolutions importantes de ce flux. C'est pourquoi nous nous sommes intéressés aux données météorologiques. Elles montrent des précipitations effectives très variables : les mois de novembre, décembre, janvier et mars correspondent à de fortes précipitations, alors qu'elles sont presque nulles le reste de l'année [6].

La modélisation du site est réalisée à l'aide du logiciel HYTEC qui comporte un module de calcul hydrodynamique nommé R2D2. Nous utilisons également le code géochimique CHESS intégré dans HYTEC [31] afin d'obtenir un modèle complet de transport réactif.

Le modèle géographique du site (script G) est réalisé à l'aide du logiciel libre GMSH [32], qui permet d'obtenir un meilleur maillage adapté à la complexité du système. Le choix du maillage n'est en effet pas anodin puisqu'il sert de support à la simulation. Il doit donc être adapté aux phénomènes physiques modélisés. Par exemple, pour la couche de surface dont l'épaisseur est estimée à 4 mètres, il est nécessaire que les mailles fassent moins de 4 mètres. De plus, il s'agit d'un milieu très perméable, ce qui va engendrer des vitesses de transport importantes. Nous ajustons donc les paramètres de maillage afin de discrétiser plus finement cette zone. Inversement, la zone de granite sain forme un socle presque imperméable, limitant la mobilité des éléments et les flux hydrologiques à l'intérieur de celle-ci. C'est pourquoi un maillage plus épais peut être choisi. Enfin, pour la zone de résidus de traitement qui contient les espèces étudiées, il faut être très précis et choisir des mailles fines pour pouvoir bien rendre compte des deux faciès.

### Sensibilité et calibrage du modèle

Le travail de modélisation a montré l'importance de la perméabilité et de la porosité des différentes zones, puisque de faibles variations induisent des comportements différents à long terme.

Il est donc nécessaire d'avoir des valeurs les plus précises possibles et les plus représentatives du site. En effet, une forte modification de la perméabilité entre deux zones, ou des discontinuités de perméabilité, peuvent engendrer des comportements non représentatifs, comme une remontée du traceur dans les résidus en surface. Il est également important de noter l'impact de l'anisotropie ou de l'isotropie de ces paramètres de transport. En effet, s'il est possible de modéliser la perméabilité du granite sain comme isotrope, il n'en va pas de même pour la couche en surface. Une perméabilité verticale plus élevée qu'une perméabilité horizontale signifierait que l'eau s'infiltrant dans le sol serait plus à même de s'enfoncer dans les roches, et donc dans les couches granitiques en profondeur, que de se déplacer vers la rivière en contrebas. Inversement, puisque les résidus miniers sont sous forme de boue et de sable, il faut avoir une perméabilité isotrope dans ces zones. Ceci est résumé dans le tableau suivant par deux valeurs, la première étant une perméabilité horizontale, la seconde une perméabilité verticale.

TABLE 3 – Porosité et perméabilité dans les différentes zones modélisées

Zones	Faciès sable	Faciès boueux	Couche de surface	Granite sain	Granite fracturé
Porosité	0.2	0.2	0.1	0.03	0.05
Perméabilité (m/s)	5e-5, 5e-5	1e-5, 5e-5	1.9e-6, 1e-4	1e-9, 1e-9	5e-7, 5e-6

Nous avons étudié l'impact des paramètres de transport sur le champ de vitesse. Les figures 59 et 60 (en annexe page 97) montrent l'évolution du champ de vitesse et d'un traceur non réactif associé à l'eau de précipitation au sein du stockage de résidus et dans la zone de granite fracturé. À 40 et 140 mètres, l'infiltration est plus élevée que partout ailleurs : ceci est dû à une discontinuité forte de perméabilité verticale, puisque la zone de surface a une perméabilité presque dix fois plus faible que la zone de résidus selon cet axe. Nous remarquons également sur cette simulation l'influence des saisons, avec un champ de vitesse parfois orienté vers la rivière (moment où les précipitations sont faibles) et parfois orienté verticalement (moment de fortes précipitations où l'infiltration prédomine). Une fois le régime permanent établi, nous observons à environ 10 mètres du sol, un champ de vitesse toujours orienté vers la rivière : ceci correspond au déplacement de l'eau dans la couche de granite fracturé, puisque le granite sain est presque imperméable.

La détermination du temps de résidence de l'eau dans le système, c'est-à-dire le temps qu'il faut pour que l'eau passe des résidus à la rivière, peut se faire de différentes façons. En supposant le milieu composé de deux zones, une zone de résidus et une de granite fracturé, et en faisant l'approximation d'une vitesse de Darcy uniforme, on obtient un premier calcul d'ordre de grandeur : cette approche donne un temps de résidence d'environ 15 ans. La solution analytique [33] donne également le même ordre de grandeur, avec un temps de résidence entre 20 et 22 ans de l'eau dans le système hétérogène. Enfin, le modèle montre l'évolution du traceur associé aux résidus dans le milieu hétérogène avec les contraintes hydrogéologiques du site : nous obtenons ici un temps de résidence de 25 ans confirmant également un calibrage satisfaisant du modèle (figure 26).

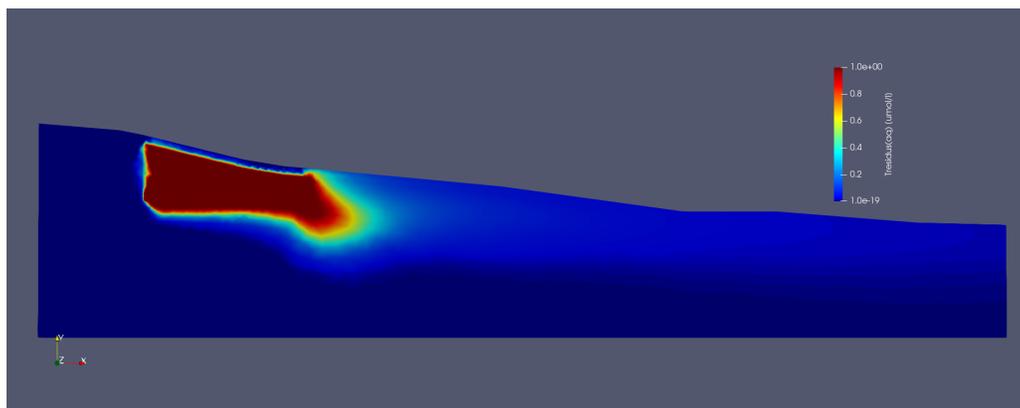


FIGURE 26 – Évolution du traceur associé à la zone de résidus après 25 ans de simulation

Ces résultats sont à nuancer puisqu'à ce stade aucun modèle chimique n'a été intégré. De plus, certaines données non renseignées permettraient d'aller plus loin. Il serait ainsi possible de mieux renseigner la géométrie de la fosse à résidus : nous l'avons modélisée par un trapèze, mais il est très probable que les bords de la fosse soient constitués de gradins afin d'assurer la stabilité des parois. La prise en compte de la géométrie de ces gradins permettrait une modélisation plus précise du volume des résidus et donc du terme source des contaminants.

La distribution des résidus est également mal connue. Il y a une alternance entre les deux faciès (sable et boue), mais la proportion réelle de chacun n'est pas renseignée. Or, ces deux zones ont des comportements hydrogéologiques très différents, ayant leurs propres porosités et perméabilités. De plus, un unique piézomètre est présent dans cette zone, ce qui induit des incertitudes : on ne dispose en effet que des données en un point pour une zone de 80 m de long et d'environ 20 m de profondeur. Des données complémentaires sur la mise en stockage de résidus seraient utiles pour mieux modéliser le système.

Le granite fracturé, encaissant les résidus, n'est pas non plus très bien connu. Des analyses seraient nécessaires pour déterminer ses caractéristiques hydrodynamiques afin de les comparer avec celles du granite sain. Le fait que la zone soit fracturée peut en effet modifier drastiquement le comportement hydrogéologique, puisqu'il s'agit de la zone la plus en contact avec les résidus miniers.

### Modèle de transport réactif complet

Une fois le modèle hydrogéologique et le modèle chimique établis, nous les avons couplés pour prendre en compte la dynamique des flux hydrologiques et les interactions chimiques entre la solution et les minéraux. Ceci introduit de nouvelles sensibilités, puisque la variation de la vitesse de l'écoulement au sein des différentes zones aura un impact sur le transport des éléments en solution et sur les équilibres chimiques. Le modèle est donc très sensible à la fois aux propriétés hydrodynamiques et aux paramètres des réactions chimiques clés du système : dissolution de l'autunite, sorption, acidification du milieu...

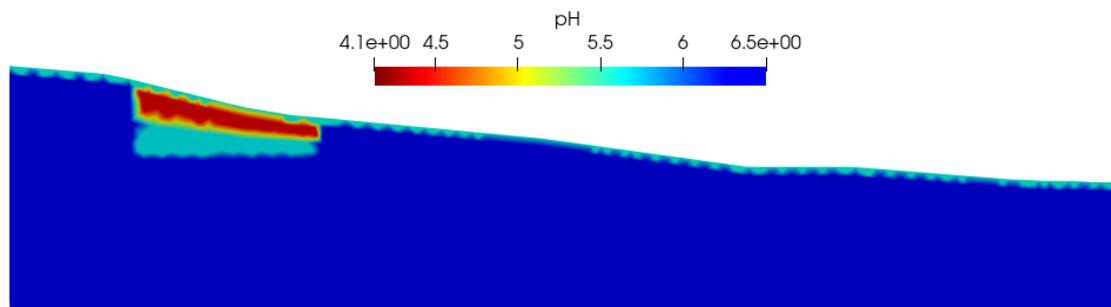
Rappelons que le modèle est peu contraint et que la marge d'incertitude reste forte. Des relevés et analyses chimiques plus complets (analyse minéralogique et composition des solutions dans les piézomètres le long de la coupe en particulier) seront nécessaires pour mieux ajuster le modèle et

renforcer ses capacités de prédiction. Des premières conclusions peuvent néanmoins être apportées.

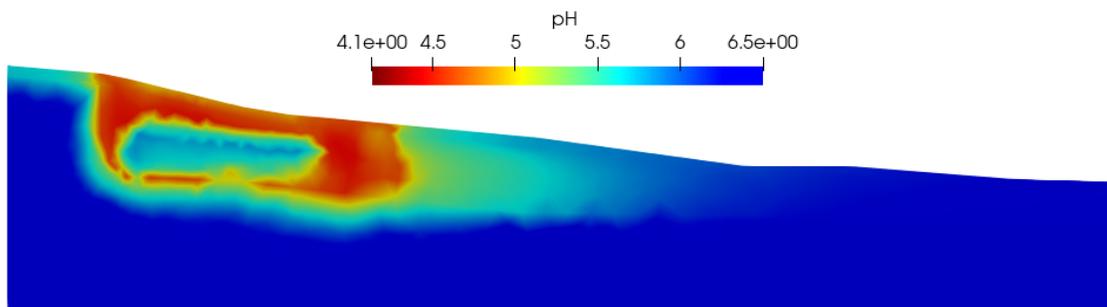
#### d) Conclusion pour le site

Le modèle réalisé nous a permis de comprendre comment l'uranium pouvait migrer au sein du site de la Ribière et ce qui contrôle sa mobilité. L'acidité est initialement imposée par les résidus (figure 27a) et légèrement par l'eau de pluie. L'acidité de l'eau en entrée du système est un facteur déterminant pour la fixation de l'uranium contrôlant les mécanismes de rétention par sorption. En effet, si pour un pH supérieur à 6, l'uranium est efficacement sorbé, pour un pH de 4 les sites de sorption auront une affinité plus forte pour le potassium et le magnésium qui se fixeront préféralement à l'uranium. On obtient alors de l'uranium mobile, ce qui peut induire des concentrations élevées en aval du système. De même, les paramètres de transport (porosité, perméabilité et facteurs d'anisotropie) vont contraindre des zones dans lesquelles l'écoulement est plus ou moins favorisé, ce qui va directement impacter la mobilité des éléments mis en solution, leur distribution et la vitesse des réactions chimiques.

Avec les hypothèses prises dans ce travail de modélisation, nous observons un déplacement notable du panache acide depuis la zone de stockage de résidus vers l'aval du système avec une perturbation d'un ordre de pH au bout de 25 ans à 220 mètres, soit à environ 100 mètres des résidus (figure 27b).



(a) pH des différentes zones au début de la simulation



(b) pH des différentes zones après 25 ans

FIGURE 27 – Évolution du pH au cours de la simulation

Pour l'uranium en revanche, le contrôle de la solubilité par les mécanismes d'échanges d'ions semble être suffisamment efficace pour limiter sa propagation en aval. À 25 ans, aucune augmentation de concentration en uranium n'est prédite aux alentours immédiats du stockage de résidus (figures 28 et 29). Des modélisations plus longues seraient nécessaires pour estimer le temps à partir duquel les sites de sorption seront saturés et perdront leur capacité à fixer l'uranium. La progression d'un front de concentration d'uranium sera toutefois limitée si, comme dans le modèle, la zone d'écoulement (sol et granite fracturé) contient également des minéraux argileux avec une capacité d'échange cationique<sup>3</sup>.

Puisque l'acidité de l'eau joue un rôle si important pour ce site, il serait intéressant de suivre l'évolution à long terme du pH de l'eau issue des précipitations lors de son infiltration dans les résidus : en effet, c'est le contact avec ceux-ci qui va déplacer les équilibres et peut faire évoluer sa teneur en acide. Il faudrait aussi contrôler la teneur en aluminium, puisqu'il peut y avoir précipitation de  $\text{Al}(\text{H})_3$  ce qui ferait baisser le pH. Il ne semble pas pour l'instant y avoir de problème de pollution au fer.

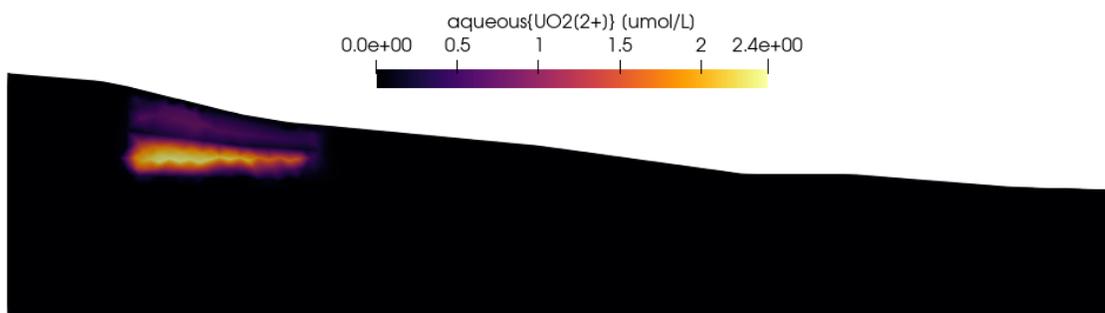


FIGURE 28 – Concentration en  $\text{UO}_2^{2+}$  aqueux après 25 ans

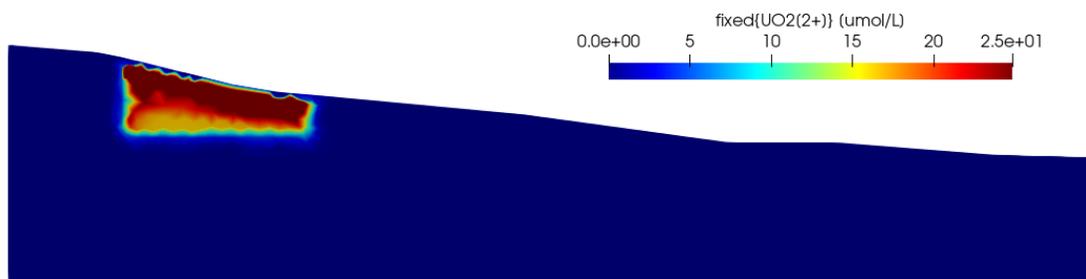


FIGURE 29 – Concentration en  $\text{UO}_2^{2+}$  fixé après 25 ans

Le modèle construit admet toutefois de nombreux axes d'amélioration. Par exemple, nous avons modélisé 9 minéraux pour les résidus. On peut se demander si la composition minérale est bien représentative de la zone de résidus. En particulier, le faciès sable présente peut-être un pH trop

<sup>3</sup>Voir l'annexe I pour plus de détails sur des résultats du modèle.

faible. Des études de sensibilité sur cet assemblage minéral pourraient être réalisées pour mieux qualifier la robustesse des prédictions. En effet, l'ajout d'un seul minéral en plus peut grandement modifier les équilibres et les résultats. Ces études peuvent également porter sur d'autres paramètres du modèle, tels que les surfaces réactives pour la sorption et la dissolution. De plus, le granite a été modélisé comme un granite « classique » : il serait important de l'étudier plus en détail, ainsi que le granite fracturé, afin d'identifier quelles sont les particularités pour la Ribière.

Le modèle d'écoulement doit lui aussi être vérifié avec une meilleure caractérisation des propriétés hydrodynamiques. Les écoulements dans la zone de granite fracturé sont soumis à des hypothèses d'anisotropie forte qui doivent être vérifiées sur le terrain. Cet aspect est particulièrement sensible car il contraint très fortement les résultats de migration des éléments en aval.

### 3) Atténuation de la teneur en radon gazeux

Le radon, dont la production est réalisée en grande partie dans les résidus de traitement, peut migrer jusqu'à la surface. Selon les caractéristiques du milieu et la profondeur des résidus, la concentration en radon à la surface est plus ou moins atténuée. Nous nous sommes inspirés du carottage réalisé dans les résidus de la Ribière (figure 38) pour construire nos modèles analytique et numérique. Dans la suite, nous utilisons un modèle analytique unidimensionnel pour obtenir l'ordre de grandeur de l'épaisseur de stériles nécessaires à l'atténuation et des simulations numériques pour déterminer l'impact de phénomènes plus complexes.

#### a) Épaisseur minimale de stériles nécessaire

##### Longueur caractéristique de diffusion

La mise en équation en annexe C 5) met en évidence une longueur caractéristique qui dépend du coefficient de diffusion  $D$ , de la porosité  $\omega$  et la saturation en gaz  $S_g$ . Notons que l'on travaille dans la zone non-saturée en eau, au-dessus du niveau piézométrique, où la saturation en gaz n'est en réalité pas uniforme. Ce modèle donne toutefois de bonnes estimations des ordres de grandeur en question. La figure suivante donne des valeurs de longueur caractéristique dans différents milieux : air sec, stériles de porosité et d'humidité moyenne, et eau.

TABLE 4 – Longueurs caractéristiques de diffusion dans l'air, les stériles et l'eau

Milieu	Air	Stériles miniers	Eau
$D (m^2s^{-1})$	$1.10^{-5} - 1.10^{-4}$	$6.10^{-6} - 1.10^{-5}$	$1.10^{-9}$
$L (m)$	2,2 – 6,9	0,5 – 0,65	0,022

Notons tout d'abord qu'une couche de protection est nécessaire : l'air ne suffit pas à atténuer le radon. On peut donc envisager d'enterrer les résidus sous une couche de stériles, ce qui leur donne une utilité et un emplacement de stockage. C'est le choix fait pour le site de la Ribière. Par ailleurs, l'annexe C 8) détaille l'influence des paramètres sur la longueur caractéristique de diffusion. On trouve, dans un cas moyen, une longueur caractéristique variant entre 0,29 m et 0,78 m, mais elle

peut atteindre jusqu'à 2 m dans les pires cas. Il est donc très important d'évaluer les paramètres de porosité et de diffusion des stériles utilisés. On remarque aussi qu'une couche d'eau peut permettre d'atténuer le radon autant qu'une couche de stérile, mais sur une épaisseur de couche 20 à 30 fois plus courte.

### Épaisseur de stériles nécessaire à l'atténuation

Dans un bâtiment habité, le niveau de référence d'activité volumique est de  $a_n = 300 \text{ Bq/m}^3$ . Imaginons que l'on souhaite respecter cette valeur à la surface de l'endroit où sont enfouis les résidus. Comme l'activité volumique du radon est de  $a_0 = 9,1 \text{ M Bq/m}^3$  au niveau des résidus, le rapport d'atténuation minimum requis est alors égal à  $r_{min} = \frac{a_0}{a_n} = 3,03 \cdot 10^4$ . L'épaisseur de couche de stériles  $h$  minimale nécessaire pour respecter ce facteur d'atténuation est donnée analytiquement par la relation  $h_{min} = \ln(r_{min}) L = 10,3 L$  (annexe C 6). Ainsi, pour atténuer le radon et respecter le niveau de référence, il est nécessaire d'ajouter une couche de protection environ dix fois plus grande que la longueur caractéristique de diffusion  $L$ . Sur le site de la Ribière, on estime sa valeur à 0,60 m. La couche de stériles de 6,5 m semble donc suffisante.

## b) Introduction des modèles numériques

Nous utilisons le code de calcul HYTEC introduit plus haut dans sa dimension transport. Deux types de modèles unidimensionnels sont utilisés par la suite pour obtenir les résultats : on modélise une colonne de stériles et/ou de résidus pour étudier comment le radon est produit et transporté vers la surface. La différence entre les deux types de modèles est la façon de modéliser le terme source de radon<sup>4</sup>. Le premier type de modèle, le plus simple et le plus utilisé par la suite, ne comprend que des stériles dans la colonne. En effet, pour modéliser les résidus sources de radon, nous utilisons une condition limite : une fugacité constante en radon à la limite entre stériles et résidus. Le deuxième type de modèle modélise les stériles et les résidus. La production du radon est intégrée dans la roche elle-même : le gaz émane là où il y a du radium. Ce deuxième modèle n'est utilisé que dans la modélisation numérique de l'impact d'un terme source.

## c) Impact des précipitations

Nous avons pu voir que les précipitations ont un rôle majeur dans le transport de l'uranium dans le sous-sol. Cette partie évalue leur impact sur la diffusion du radon gazeux vers la surface.

### Modification de la longueur caractéristique

Le modèle analytique permet d'estimer à quel point la longueur caractéristique est impactée par un changement de saturation en gaz. En effet, plus il y a d'eau dans les pores, plus la saturation en gaz est faible. Pour un coefficient de diffusion moyen  $D = 1,0 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ , une porosité moyenne  $\omega = 0,30$  et des coefficients de Millington-Quirk égaux à 2, le tableau suivant donne les longueurs

<sup>4</sup>Il s'agit là d'une présentation sommaire de ces modèles. Pour des détails techniques sur leur implémentation dans le code HYTEC, se reporter aux annexes C 9). Pour des exemples de scripts HYTEC utilisés se reporter à l'annexe H. L'annexe C 11) étudie la sensibilité du modèle numérique aux différents paramètres et ne met pas en évidence une grande variabilité de l'allure de la courbe de diffusion autour des paramètres moyens choisis.

caractéristiques et les épaisseurs de stériles nécessaires pour respecter le niveau de référence de  $300 \text{ Bq/m}^3$ , en fonction de la saturation en gaz  $S_g$ .

TABLE 5 – Valeurs de  $L$  et  $h$  en fonction de la saturation en gaz

Saturation en eau	$S_g = 0,05$ (Saturée)	$S_g = 0,3$ (Moyenne)	$S_g = 0,6$ (Sèche)
$L$ (m)	0,27	0,65	0,93
$h$ Minimale (m)	2,8	6,76	9,55

Lorsque la roche est saturée, la diffusion est moindre. Au contraire, une période sèche favorise la diffusion. Avec une épaisseur de stériles d'environ 6,5 m, le site de la Ribière peut être exposé à des activités de radon cinq à dix fois plus élevées en été quand il pleut moins souvent.

### Résultats du modèle numérique

Le modèle numérique permet d'observer le régime transitoire alors que le sol est soumis aux précipitations, puis d'obtenir des courbes et des valeurs précises sur les activités résultantes à la surface. Nous utilisons ici le modèle numérique « Radon type 1 : modèle vertical avec précipitations » (code en annexe H) avec des précipitations moyennes de 200 mm/an et une simulation d'une durée d'un an.

La figure 39 donne la fugacité du radon en fonction de la cote (où l'origine est au niveau des résidus) en échelle logarithmique. On voit que la concentration en radon est divisée par un facteur 10 lorsque le sol est saturé en eau, ce qui correspond à l'ordre de grandeur donné par le modèle analytique. On en déduit que les précipitations sont propices à l'atténuation du radon gazeux. On notera que l'augmentation de pression due à l'eau déplace l'équilibre de Henry entre le radon gazeux et le radon aqueux, dont la concentration augmente dans la zone humide. Ce radon dissout pose un risque radiologique moindre puisqu'il ne peut plus atteindre les poumons d'un individu.

### d) Impact d'un terme source au sein des stériles

Sur la plupart des anciens sites miniers, les résidus de traitement sont recouverts de stériles miniers. Ces derniers ont des activités plus faibles en uranium et en radium, et donc produisent moins de radon. Néanmoins, il est important de quantifier l'impact d'une source de radon au sein des stériles pour s'assurer que la décision de les utiliser pour recouvrir les résidus est sans danger [34].

### Résultats du modèle analytique

Nous établissons en annexe C 12) l'expression d'un coefficient  $R$  qui évalue l'impact de ce phénomène. En choisissant des paramètres moyens pour les deux zones de résidus et de stériles, nous pouvons comparer les activités volumiques du radon à la surface ( $L = 0,6 \text{ m}$ ,  $h = 6,5 \text{ m}$ ). Sans terme source, elle est d'environ  $180 \text{ Bq/m}^3$ . Pour une activité des stériles égale à 1 % de celle des

résidus, l'activité volumique du radon à la surface est multipliée par deux ( $373 \text{ Bq/m}^3$ ); et pour un rapport 10 %, elle est multipliée par un facteur 10 ( $2,1 \cdot 10^3 \text{ Bq/m}^3$ )

Cette étude analytique permet donc de penser que les stériles doivent également être surveillés en terme de teneur en radium, car ils peuvent être responsables d'une partie significative du flux de radon vers la surface. De fait, si l'épaisseur de la couche de stériles est suffisamment grande, le flux de radon mesuré à la surface ne provient que des stériles.

### Résultats du modèle numérique

Le modèle numérique utilisé ici est du deuxième type : modélisation de l'émanation du radon dans toute la colonne sans condition aux limites. Dans le cas de ce modèle, nous sommes limités par la précision des calculs internes de HYTEC : nous ne pouvons pas travailler avec les fugacités en radon réellement présentes sur le site de la Ribière. Nous allons donc nous intéresser à des fugacités relatives par rapport à une fugacité de référence  $f_0$ . On s'intéresse à une couche de stériles de 6 m d'épaisseur et une couche de résidus de 4 m d'épaisseur. Les résultats de trois simulations, avec des activités de radium dans les stériles représentant respectivement 0 %, 1 % et 10 % de l'activité des résidus, sont donnés par la figure 40.

Nous constatons que l'impact d'un terme source au sein des stériles impacte de manière significative la fugacité en sortie de notre zone tampon : si l'activité du radium représente 1 % de l'activité du radium des résidus, la fugacité en radon au niveau de la surface est multipliée par un facteur 1,21 par rapport au cas où cette activité est nulle. Pour une différence de 10 %, ce facteur est de 1,75. La différence significative entre les facteurs multiplicateurs obtenus par les modèles numérique et analytique est due au fait que la saturation en eau est considérée comme constante dans le modèle analytique, alors que l'on travaille en zone non saturée avec un gradient de saturation. Malgré les différences, la conclusion reste la même : il apparaît qu'une activité, même faible, des stériles (des activités de l'ordre de 10 % de celles des résidus sont courantes [34]) peut avoir un effet significatif dans les émissions de radon en surface. Ainsi, il faut surveiller l'activité des stériles eux-mêmes, car il est probable que le radon mesuré à la surface soit en grande partie originaire de la couche protectrice.

## Conclusion

L'après-mine répond à des besoins variés qui vont de la gestion des matériaux extraits du sol et de la surveillance des risques sanitaires à la reconversion écologique et économique du site. Effacer le passé minier d'un site est très difficile, d'autant plus que, souvent, les acteurs opèrent sur des sites dont les caractéristiques pré-exploitation sont inconnues : à quel point faut-il réduire les taux d'uranium ? En effet, les sols en contiennent naturellement, et c'est justement parce qu'il était présent en quantité que l'exploitation a été mise en place. La question du fond géochimique est donc primordiale dans le secteur de l'après-mine. Nous nous sommes attelés à modéliser différents lieux du site de la Ribière afin de comprendre et évaluer les choix d'Orano.

Notre étude de MIG nous a donc permis de tirer des conclusions sur la gestion du site. En matière de géochimie, nous avons utilisé une modélisation de transport réactif sur le logiciel HYTEC pour tester l'influence de différents paramètres sur les concentrations en éléments tels que l'uranium. C'est une approche importante pour pouvoir anticiper les potentielles évolutions des résidus et stériles miniers et évaluer l'impact environnemental. Notre modèle, assez simple mais se basant sur des données géologiques du site, nous a permis ainsi de constater le rôle majeur du pH sur la mobilité de l'uranium, notamment au niveau de la sorption de celui-ci parfois remplacé par d'autres cations. HYTEC nous a aussi permis de modéliser le site de La Ribière en 2D et d'analyser les effets de divers paramètres sur le transport et les concentrations en uranium et autres métaux. Les simulations sur des grandes échelles de temps ont montré que le transport des éléments issus des résidus était assez limité, et ont donc confirmé le choix de ne pas avoir de station de traitement de l'eau sur le site de la Ribière. Quant au risque radon, nous avons évalué que l'épaisseur de stériles était suffisamment grande pour respecter les valeurs de références dans des conditions habituelles. Un pic de concentration de radon dans l'air peut tout de même être atteint si le sol est très sec en été. Notre étude nous a également démontré que le calcul des flux de radon devaient non seulement utiliser les teneurs en radium dans les résidus enfouis, mais également inclure les teneurs en radium dans la couche protectrice de stériles. En effet, le radon finalement émis dans l'air peut provenir en grande majorité des stériles.

Sur les points non techniques, nous avons pu observer que les solutions de l'après-mine dépendent de chaque site. Il ne s'agit pas seulement d'un compromis entre les enjeux techniques et économiques, l'aspect social pouvant orienter les décisions. De plus, la gestion des sites dépend fortement des pays qui ont tous des histoires et des contextes miniers différents. De nombreux acteurs interviennent dans l'après-mine et doivent collaborer. L'entreprise Orano, chargée de la gestion technique du site, doit atteindre les objectifs des PNGMDR successifs sous l'égide de l'ASN et respecter les normes établies par l'IRSN. L'accord de tous les acteurs sur les normes n'est pas évident à trouver puisque leurs intérêts sont tous différents : sécurité humaine, protection environnementale, gestion des matériaux, rentabilité économique ou revalorisation du paysage. Par ailleurs, fixer une norme n'est pas chose aisée : elle se base parfois sur des critères peu exhaustifs et plus ou moins arbitraires, car il est nécessaire de réaliser de nombreuses études poussées et diverses pour évaluer les impacts réels des différents polluants. C'est pour cela que l'IRSN développe une méthode multi-critères pour l'établissement des futures normes.

Ainsi, cette étude nous a fait comprendre l'ampleur du travail nécessaire pour gérer un ancien site minier. Même si le traitement de l'eau n'est pas toujours automatique, il est primordial de connaître avec précision les caractéristiques géologiques du terrain avant de prendre des décisions et de surveiller rigoureusement le site pour répondre aux attentes des différents acteurs de l'après-mine.

## Références bibliographiques

- [1] Emmanuel LEDOUX. *Notions d'hydrogéologie appliquées à la mine*. École des Mines de Paris, nov. 2020.
- [2] Michael DESCOSTES et Camille CHAUTARD. *Introduction générale aux problématiques de l'Après-Mine*. École des Mines de Paris, nov. 2020.
- [3] Isabelle DUBLINEAU et Pascale BLANCHART. *Gestion des stations de traitement des eaux*. École des Mines de Paris, nov. 2020.
- [4] Louis RAIMBAULT. *Mine ? Une introduction*. École des Mines de Paris, nov. 2020.
- [5] Caroline BENESTEAU. *Site de Bellezane : Présentation du site minier et de son réaménagement*. École des Mines de Paris, nov. 2020.
- [6] Nadine HIMEUR et Guillaume KERN. *Après-Mine : La gestion des anciens sites miniers*. École des Mines de Paris, nov. 2020.
- [7] Joachim SCHICK. *Les procédés de traitement des eaux utilisés sur les sites miniers uranifères français*. École des Mines de Paris, nov. 2020.
- [8] Jean-Luc VIALLESÈCHE. *Station d'eau potable de Limoges Métropole*. École des Mines de Paris, nov. 2020.
- [9] *CartOmines*. URL : <https://oranomining-amf.maps.arcgis.com/apps/Cascade/index.html?appid=7e7ffaf5a709467d8748ad145099b488>.
- [10] Sophie GERLAND. *Outils digitaux ORANO*. École des Mines de Paris, nov. 2020.
- [11] INERIS IRSN. *Le radon, synthèse des connaissances et résultats des premières investigations en environnement minier*. URL : [https://www.irsn.fr/FR/expertise/rapports\\_expertise/surveillance-environnement/Pages/radon-synthese-connaissances-investigations-environnement-minier.aspx#.X8AUhGhKhPY](https://www.irsn.fr/FR/expertise/rapports_expertise/surveillance-environnement/Pages/radon-synthese-connaissances-investigations-environnement-minier.aspx#.X8AUhGhKhPY).
- [12] IRSN. *Quelle est la dose annuelle moyenne de radioactivité reçue en France ?* URL : [https://www.irsn.fr/FR/connaissances/faq/Pages/Quelle\\_est\\_la\\_dose\\_annuelle\\_moyenne\\_de\\_radioactivite\\_recue\\_en\\_France.aspx](https://www.irsn.fr/FR/connaissances/faq/Pages/Quelle_est_la_dose_annuelle_moyenne_de_radioactivite_recue_en_France.aspx).
- [13] INRS. *Rayonnements ionisants : réglementation et démarche de prévention*. URL : <https://www.inrs.fr/risques/rayonnements-ionisants/reglementation.html>.
- [14] AUTORITÉ DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE. *La réglementation du radon*. URL : <https://www.asn.fr/Informer/Dossiers-pedagogiques/Le-radon/La-reglementation>.
- [15] S DARBY et al. "Radon in homes and risk of lung cancer : collaborative analysis of individual data from 13 European case-control studies". en. In : *BMJ* 330.7485 (jan. 2005), p. 223. ISSN : 0959-8138, 1468-5833. DOI : 10.1136/bmj.38308.477650.63. URL : <https://www.bmj.com/lookup/doi/10.1136/bmj.38308.477650.63> (visité le 17/12/2020).
- [16] INSTITUT NATIONAL DE L'AUDIOVISUEL. *Dossier : la mémoire est au fond de la mine*. URL : <http://www.ina.fr/video/LM00001313536> (visité le 04/12/2020).
- [17] Bruno CHAREYRON. "L'impact radiologique de 50 années d'extraction de l'uranium en France Exiger de COGEMA-AREVA un réaménagement satisfaisant des sites". In : (2005). URL : [http://www.criirad.org/actualites/uraniumfrance/Synthese\\_PDF/francais.pdf](http://www.criirad.org/actualites/uraniumfrance/Synthese_PDF/francais.pdf).
- [18] *Un collectif est créé pour suivre les mines d'uranium*. URL : <https://reporterre.net/Un-collectif-est-cree-pour-suivre> (visité le 04/12/2020).

- [19] *Quels sont les acteurs de l'eau en France ?* URL : <https://www.cieau.com/le-metier-de-leau/quels-sont-les-acteurs-de-leau-en-france/> (visité le 04/12/2020).
- [20] *Quelles normes de qualité pour l'eau potable ?* URL : <https://www.cieau.com/leau-et-votre-sante/qualite-de-leau/quelles-normes-de-qualite-pour-leau-potable/> (visité le 04/12/2020).
- [21] *Department of agriculture, water and the environment.* en. URL : <http://www.environment.gov.au/> (visité le 01/12/2020).
- [22] *Nuclear safety | Joint information portal for the federal government and the Länder.* en. URL : <https://www.nuklearesicherheit.de/en/> (visité le 01/12/2020).
- [23] S. COLOMBANO et al. *Quelles techniques pour quels traitements ? Analyse coûts-bénéfices.* Rapp. tech. Rapport final BRGM-RP-58609-FR. BRGM, 2010. URL : <https://infoterre.brgm.fr/rapports/RP-58609-FR.pdf>.
- [24] Joachim SCHICK. *Informations sur les coûts des traitements.* École des Mines de Paris, nov. 2020.
- [25] *Wismut gmbh.* en. URL : <https://www.wismut.de/www/webroot/en/> (visité le 01/12/2020).
- [26] *Decommissioning projects - germany.* en. URL : <http://wise-uranium.org/udde.html> (visité le 01/12/2020).
- [27] Camille CHAUTARD et Michael DESCOSTES. *Evaluation de la distribution de l'U et du 226Ra au sein des résidus de l'ancienne mine de La Ribière (France).* Nov. 2020.
- [28] SOCIÉTÉ AREVA NC. *Etude hydrogéologique du site de l'ancienne mine d'uranium de La Ribière, 23140 Domeyrot.* Rapp. tech. 2010-050. 85 pages. Avr. 2010.
- [29] Vincent LAGNEAU et al. *PGT III : distribution hytec-4.0.2.* Rapp. tech. 24 pages. Août 2011. URL : <https://hal-mines-paristech.archives-ouvertes.fr/hal-00614306>.
- [30] SOCIÉTÉ AREVA NC. *Etude hydrogéologique complémentaire du site de l'ancienne mine d'uranium de La Ribière, 23140 Domeyrot.* Rapp. tech. 2011-259. 165 pages. Juil. 2011.
- [31] Jan van der LEE et al. "Module-oriented modeling of reactive transport with HYTEC". en. In : *Computers & Geosciences* 29.3 (avr. 2003), p. 265-275. ISSN : 00983004. DOI : 10.1016/S0098-3004(03)00004-9. URL : <https://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S0098300403000049> (visité le 17/12/2020).
- [32] Christophe GEUZAINÉ et Jean-François REMACLE. *GMSH : a three-dimensional finite element mesh generator.* Déc. 2020. URL : <https://gmsh.info/>.
- [33] R.L. RUNKEL. "Solution of the advection-dispersion equation : Continuous load of finite duration". In : *Journal of Environmental Engineering* 122.9 (1996), p. 830832. DOI : 10.1061/(ASCE)0733-9372(1996)122:9(830). URL : <http://pubs.er.usgs.gov/publication/70018698> (visité le 22/12/2020).
- [34] Cécile FERRY et al. "Evaluation of the effect of a cover layer on radon exhalation from uranium mill tailings : transient radon flux analysis". en. In : *Journal of Environmental Radioactivity* 63.1 (jan. 2002), p. 49-64. ISSN : 0265931X. DOI : 10.1016/S0265-931X(02)00015-2. URL : <https://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S0265931X02000152> (visité le 04/12/2020).
- [35] J. NOS et al. *Caractérisation et réactivité des résidus de traitement issus de l'exploitation des minerais d'uranium en France (Lavaugrasse, Bellezane, Ribière, Cellier).* Rapp. tech. 2014, p. 244.

- [36] Robert L FLEISCHER. “Theory of alpha recoil effects on radon release and isotopic disequilibrium”. en. In : *Geochimica et Cosmochimica Acta* 47.4 (avr. 1983), p. 779-784. ISSN : 0016-7037. DOI : 10.1016/0016-7037(83)90111-4. URL : <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0016703783901114> (visité le 04/12/2020).
- [37] Cecile FERRY. “La migration du radon 222 dans un sol. Application aux stockages de résidus issus du traitement des minerais d’Uranium”. Thèse de doct. Université Paris XI d’Orsay, 2000. URL : [https://www.irsn.fr/FR/Larecherche/Formation\\_recherche/Theses/Theses-soutenues/DEI/Documents/2000-These-FERRY.pdf](https://www.irsn.fr/FR/Larecherche/Formation_recherche/Theses/Theses-soutenues/DEI/Documents/2000-These-FERRY.pdf).
- [38] Eric BLANCHARDON. *Evaluation de la dose radon*. 2019. URL : [http://www.inrs.fr/dms/inrs/PDF/Actes-et-comptes-rendus/Radon/Evaluation\\_\\_radon\\_EBlanchardon/Evaluation\\_\\_radon\\_EBlanchardon.pdf](http://www.inrs.fr/dms/inrs/PDF/Actes-et-comptes-rendus/Radon/Evaluation__radon_EBlanchardon/Evaluation__radon_EBlanchardon.pdf).
- [39] *Directive 2013/59/Euratom - protection against ionising radiation - Safety and health at work - EU-OSHA*. en. URL : <https://osha.europa.eu/en/legislation/directives/directive-2013-59-euratom-protection-against-ionising-radiation> (visité le 01/12/2020).

## Annexes

<b>A</b>	<b>Figures et tableaux utiles . . . . .</b>	<b>37</b>
<b>B</b>	<b>Hydrogéologie : la loi de Darcy . . . . .</b>	<b>47</b>
<b>C</b>	<b>Radon : détails des raisonnements . . . . .</b>	<b>52</b>
<b>D</b>	<b>Géochimie . . . . .</b>	<b>62</b>
<b>E</b>	<b>Comparaison à l'échelle internationale . . . . .</b>	<b>65</b>
<b>F</b>	<b>Scripts HYTEC . . . . .</b>	<b>71</b>
<b>G</b>	<b>Modèle topographique du site . . . . .</b>	<b>84</b>
<b>H</b>	<b>Modélisations de l'atténuation du radon . . . . .</b>	<b>87</b>
<b>I</b>	<b>Résultats des simulations numériques HYTEC . . . . .</b>	<b>97</b>
<b>J</b>	<b>Table des figures . . . . .</b>	<b>103</b>
<b>K</b>	<b>Liste des tableaux . . . . .</b>	<b>106</b>
<b>L</b>	<b>Liste des scripts . . . . .</b>	<b>107</b>

## Annexe A - Figures et tableaux utiles

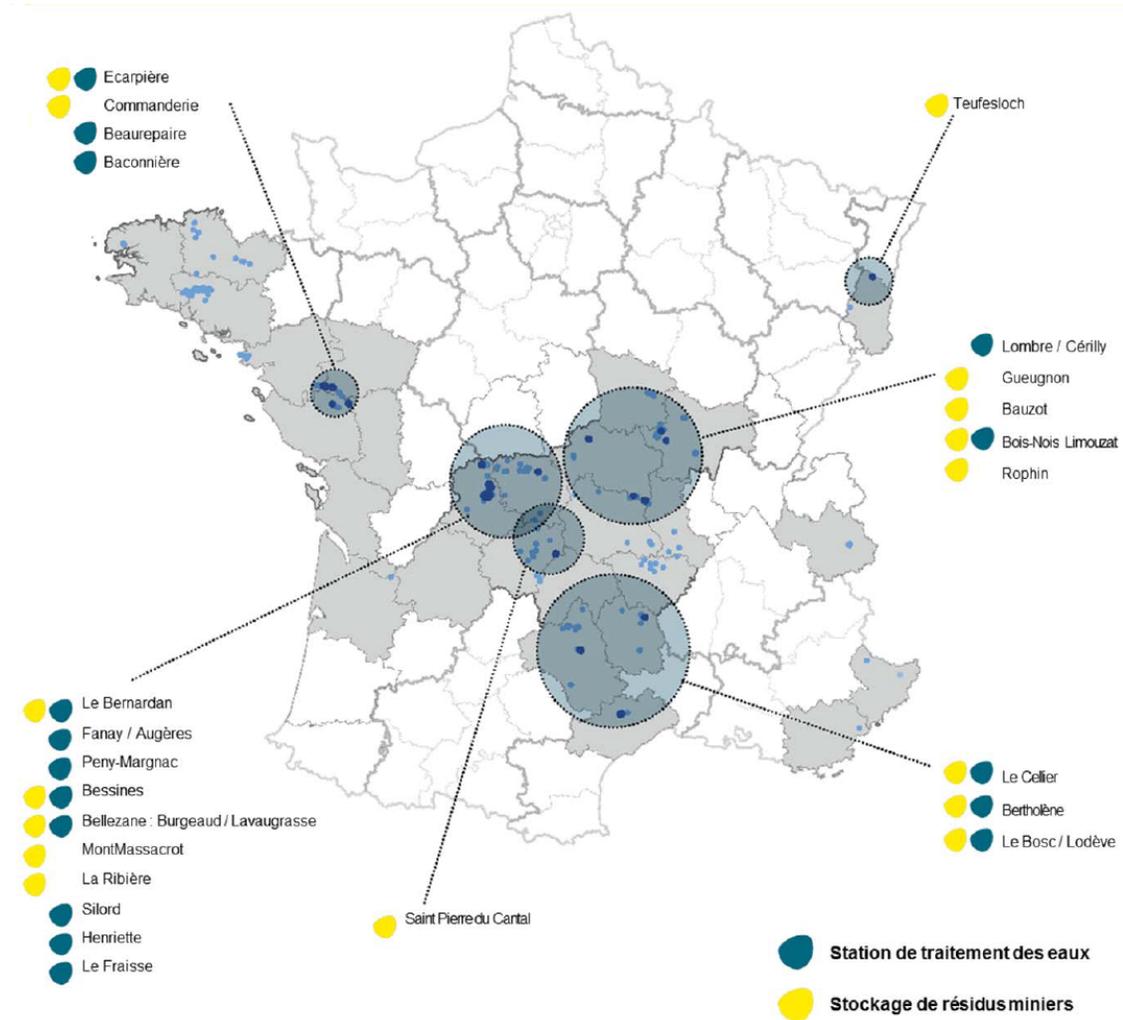


FIGURE 30 – Carte des sites miniers uranifères en France (Orano)





FIGURE 32 – Une tourbière pour le traitement passif des eaux (Orano)

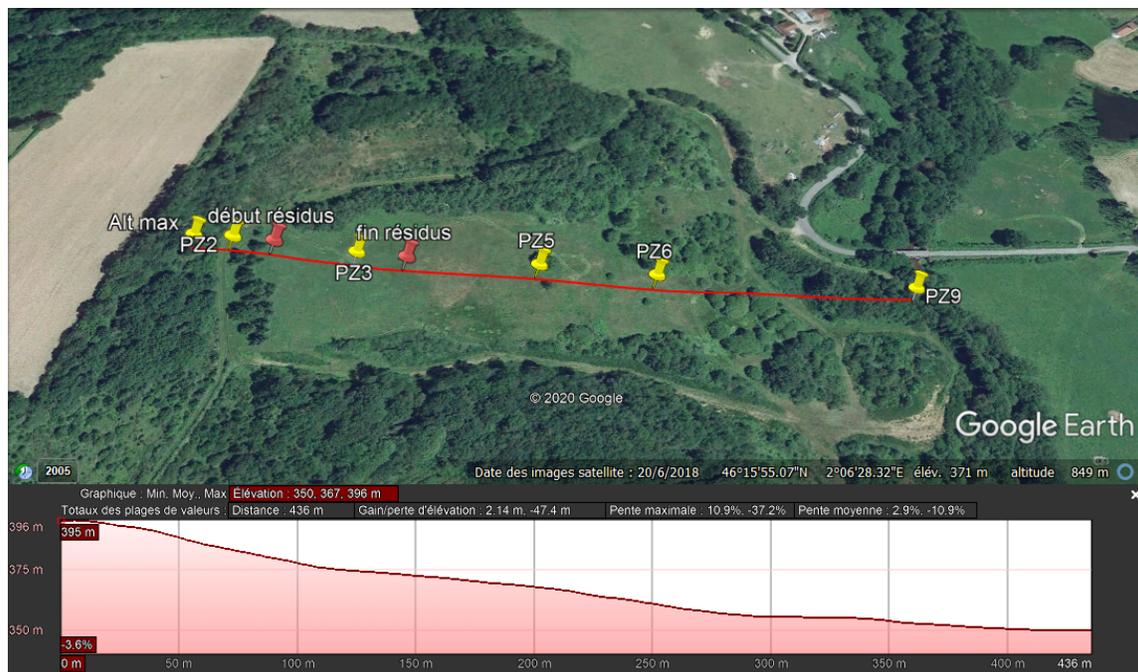


FIGURE 33 – Profil topographique du site de La Ribière

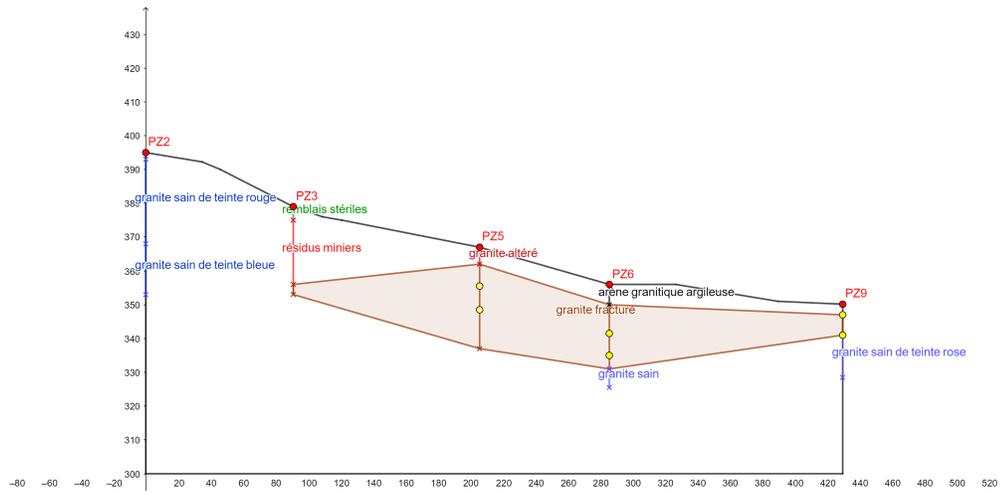


FIGURE 34 – Modélisation des différentes zones pour le site de la Ribière

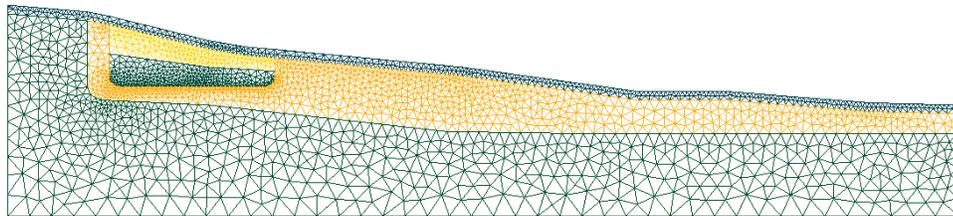


FIGURE 35 – Maillage de la zone obtenu grâce à GMSH

TABLE 6 – Données des précipitations effectives sur le site utilisées pour le modèle hydrogéochimique

Mois	Jan.	Fév.	Mars	Avril	Main	Juin	Juil.	Août	Sept.	Oct.	Nov.	Déc.	Total
Précipitations (mm)	50,7	23,1	24,7	94,7	65,8	76,1	83,5	46,1	31,6	23,1	102,8	93,1	715,3
Évapotranspiration (mm)	2,6	8,0	23,7	51,2	93,4	107,0	125,0	120,3	76,6	46,8	29,9	8,9	693,4
Précipitations effectives (mm)	48,1	15,1	1	43,5	0	0	0	0	0	0	12,9	84,2	204,8

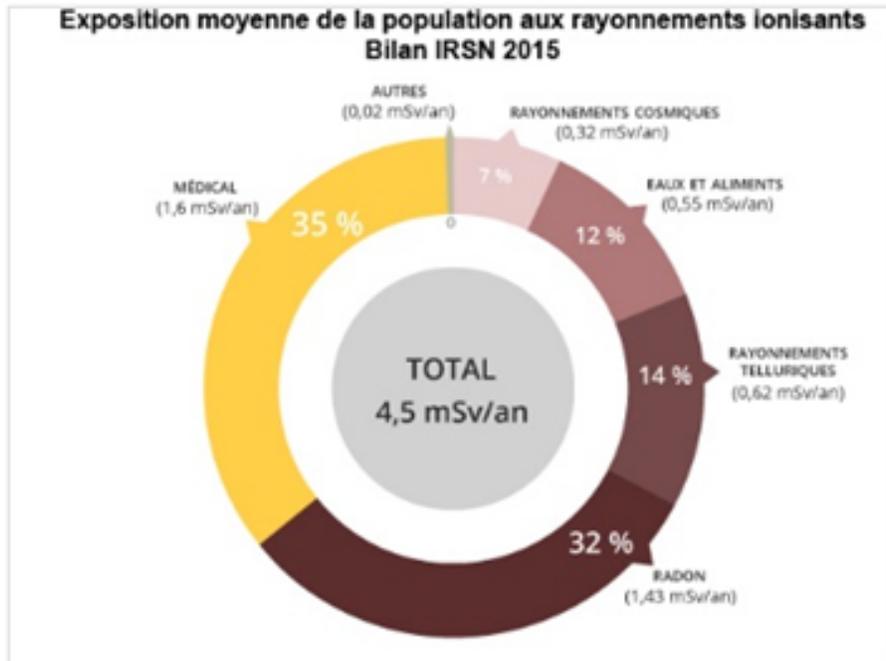


FIGURE 36 – Exposition moyenne de la population aux rayonnements ionisants (IRSN)



FIGURE 37 – Comparaison des normes radiologiques sur le radon (IRSN)

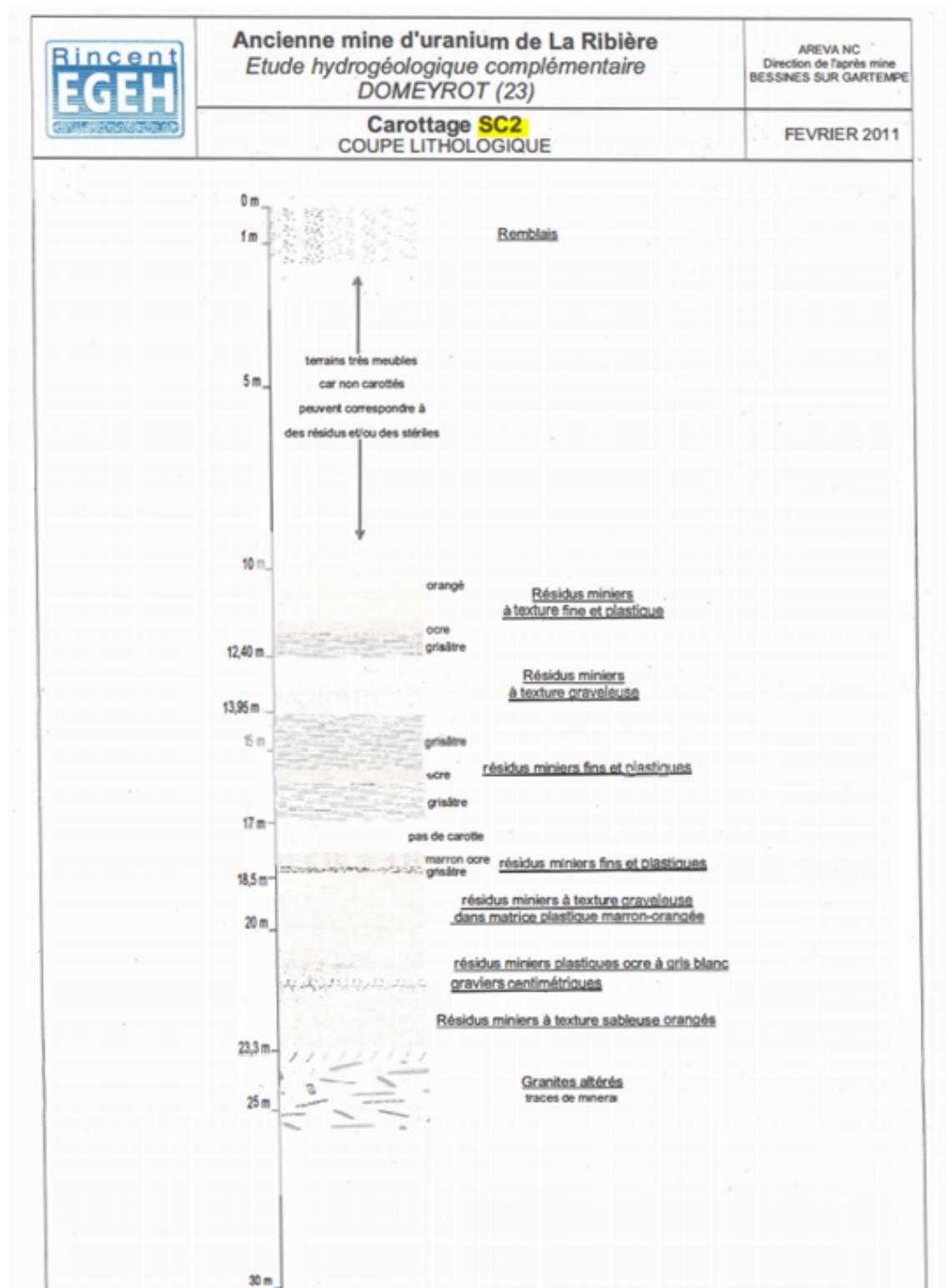


FIGURE 38 – Carottage dans les résidus du site de la Ribière

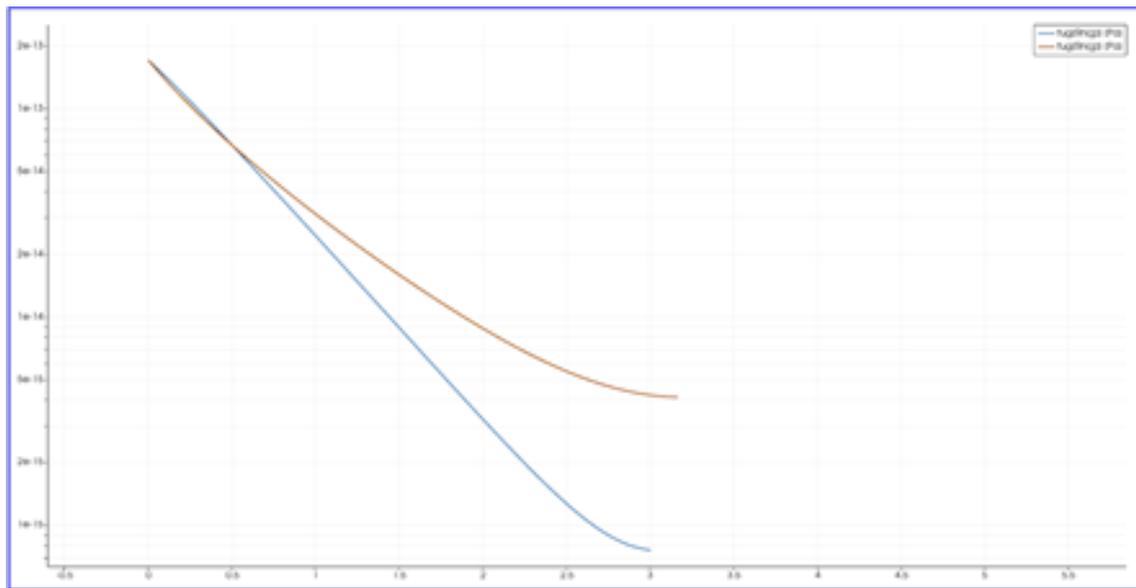


FIGURE 39 – Fugacité du radon avec ou sans précipitations (bleu : pluie)

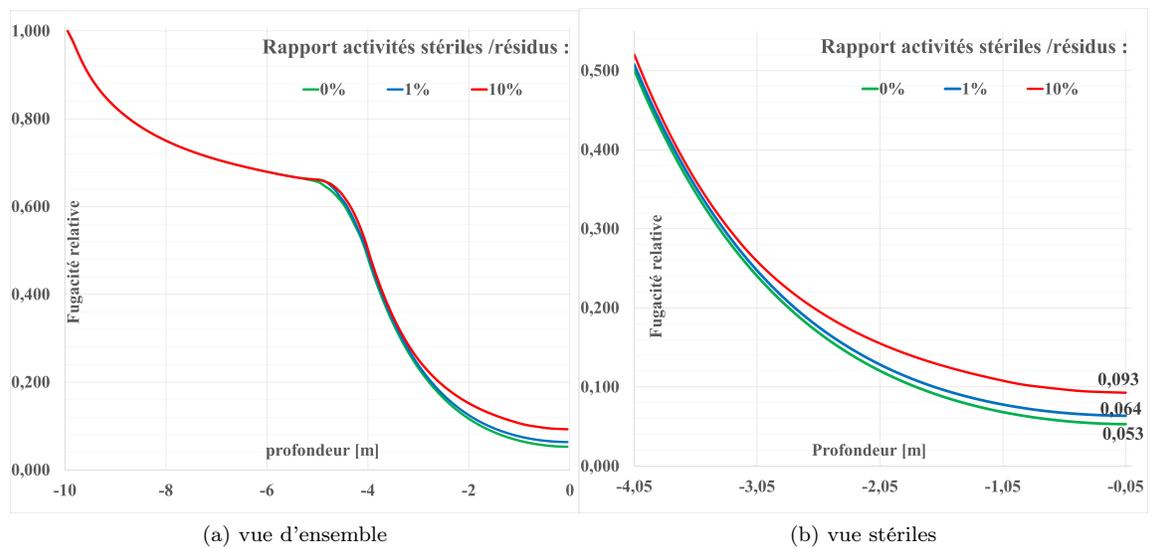


FIGURE 40 – Modèle numérique : impact d'un terme source

TABLE 7 – Teneurs élémentaires moyenne, minimale et maximale mesurées dans les échantillons du site de La Ribière [35]

Corg et PF désignent respectivement la teneur C organique et la perte au feu. Les éléments traces (Ba, Sr, U) sont exprimés en ppm. Le  $^{226}\text{Ra}$  est quant à lui exprimé en Bq/g.

	RIB - Sableux			RIB – Gypseux		
	$C_{\text{mov}}$	$C_{\text{min}}$	$C_{\text{max}}$	$C_{\text{mov}}$	$C_{\text{min}}$	$C_{\text{max}}$
Majeurs (%)						
<b>SiO<sub>2</sub></b>	71±6	63,7	79,0	8±9	1,77	26,9
<b>Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub></b>	14±2	10,8	16,3	7±4	3,03	14,2
<b>K<sub>2</sub>O</b>	4,4±0,9	3,36	5,78	0,6±0,7	0,08	2,20
<b>CaO</b>	1±1	0,22	3,20	22±7	10,6	28,5
<b>Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub></b>	2,0±0,7	1,14	3,16	6±2	2,56	8,17
<b>Na<sub>2</sub>O</b>	2,2±0,8	1,08	3,27	0,3±0,3	0,06	0,98
<b>S total</b>	0,3±0,6	0,01	1,46	9±2	6,27	11,21
<b>MgO</b>	0,5±0,1	0,30	0,68	1,6±0,9	0,22	2,52
<b>P<sub>2</sub>O<sub>5</sub></b>	0,2±0,1	0,07	0,40	0,9±0,4	0,31	1,39
<b>TiO<sub>2</sub></b>	0,30±0,06	0,23	0,40	0,1±0,1	0,04	0,44
<b>MnO</b>	0,04±0,04	0,01	0,11	0,2±0,1	0,01	0,32
<b>CO<sub>2</sub> total</b>	0,2±0,1	0,06	0,39	2±1	0,22	3,52
<b>C<sub>org</sub></b>	0,04±0,03	0,02	0,08	0,03±0,01	0,01	0,04
<b>PF</b>	4±3	2,28	8,57	35±6	27,8	43,5
Traces (ppm ou Bq/g)						
<b>Ba</b>	400±157	259	664	34±36	9	112
<b>Sr</b>	109±27	71	146	99±30	61	154
<b>U</b>	112±63	42	192	65±50	8	171
<b><sup>226</sup>Ra</b>	4±3	1,08	7,77	2±1	0,51	4,47

TABLE 8 – Minéraux identifiés au MEB et au DRX pour différents sites miniers, dont La Ribière (RIB) [35]

		LVG		BZN		RIB		CEL	
		MEB	DRX	MEB	DRX	MEB	DRX	MEB	DRX
Silicates	Quartz	X	X	X	X	X	X	X	X
	Orthose/Microcline	X	X	X	X	X		X	X
	Albite	X	X	X	X	X		X	X
	Plagioclases			X		X			
	Zéolite (de type Si-Al-K-Na-Ca)						X		
Phyllosilicates	Illite	X		X		X			
	Kaolinite	X	X	X	X				
	Smectite	X	X	X	X			X	X
	Chlorite		X	X	X	X		X	X
	Muscovite	X	X	X	X		X	X	X
	Biotite	X		X		X		X	
Sulfures	Pyrite (FeS <sub>2</sub> )	X		X				X	
	Arsénopyrite (FeAsS <sub>2</sub> )			X				X	
	Sphalérite (ZnS)			X				X	
	Sulfure de Cu			X					
	Galène (PbS)			X				X	
Sulfates	Gypse (CaSO <sub>4</sub> )	X	X	X	X	X	X	X	X
	Barytine (BaSO <sub>4</sub> )	X		X		X		X	
	Etringite (sulfate de Ca -Al hydraté)						X		
Autres	Calcite	X					X	X	X
	Chaux	X		X					
	Arséniat d'aluminium					X		X	
Phosphates	Monazite (Terres Rares)	X		X		X		X	
	Apatite (CaPO <sub>4</sub> )	X		X		X		X	
	Xénotime (YPO <sub>4</sub> )	X						X	
	Phosphates de Ce					X			
	Phosphates d'Al	X		X					
Oxydes	Oxyde de Fer	X		X		X		X	
	Oxyde de Titane			X		X		X	
	Oxyde d'Etain (SnO <sub>2</sub> )							X	
	Oxyde de Ba & Mn							X	
	Oxyde de Tungstène							X	
	Oxyde Fe/Sb					X			
	Oxyde de Terres Rares	X							
	Oxyde de Cu/Zn/Ni			X					
	Brucite (Mg(OH) <sub>2</sub> )						X		
Zircon	X		X		X		X		
Composés d'Uranium	Phosphates d'U	X		X		X		X	
	Coffinite (silicate d'U)			X				X	
	Oxyde d'U	X		X				X	
	Carbonate d'U			X					

Hérité

Néoformé

Hérité et néoformé

Indéterminé

Ajouté

## Annexe B - Hydrogéologie : la loi de Darcy

### 1) Loi de Darcy

Les roches sont poreuses : elles peuvent stocker de l'eau. On appelle porosité le rapport  $p = \frac{V_{\text{libre}}}{V_{\text{tot}}}$ , où  $V_{\text{tot}}$  représentant le volume total de l'échantillon dont on veut mesurer la porosité, et  $V_{\text{libre}}$  le volume qui y est laissé inoccupé. Ce rapport traduit la capacité de stockage d'une roche et peut atteindre jusqu'à 60 % pour les argiles, ou valoir quelques dixièmes de pourcents pour certains granites. Cela explique que les roches laissent circuler l'eau. Cependant, la porosité ne définit pas la facilité avec laquelle l'eau peut circuler dans les roches. Cette propriété, liée à la porosité mais non déductible de cette dernière, s'appelle la perméabilité.

L'hydrogéologie est l'étude de l'écoulement de l'eau dans les roches. Un premier modèle permettant d'étudier le phénomène est la loi de Darcy, du nom de l'hydraulicien Henry Darcy qui l'a établie. Elle s'écrit :  $V = -K \nabla(h)$  où  $V$  est la vitesse de Darcy,  $K$  la perméabilité et  $h$  la charge.

Le logiciel HYTEC utilisé pour le calcul du modèle hydrogéologique détermine les écoulements de l'eau dans les roches par des calculs de charge en tenant compte des conditions imposées aux limites en charge, des perméabilités des milieux traversés et de la loi de Darcy. Le modèle du site de la Ribière étant constitué d'un ensemble de zones de perméabilité uniforme, nous établissons dans un premier temps le profil de charge dans des cas très simples de modèles à une dimension, et étudions rapidement un modèle très simple de prise en compte des précipitations. La vitesse de Darcy représente alors le débit de l'écoulement à travers la roche ou son opposé selon l'orientation du problème, le débit étant pris positif.

### 2) Modèles simples pour la compréhension des phénomènes

#### a) Variations de perméabilité

On considère une zone d'épaisseur  $L$  et de perméabilité uniforme  $K$  (figure 41).

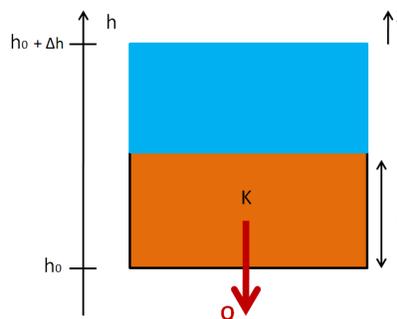


FIGURE 41 – Écoulement dans une roche de perméabilité uniforme

De l'eau s'y écoule avec un débit  $Q$ . On se place au régime stationnaire. La charge en amont de la roche est notée  $h_1$  et la charge en aval est notée  $h_2$ .

La loi de Darcy relie les paramètres du problème :

$$Q = -V = K \nabla(h) = K \frac{dh}{dx}$$

La conservation de la masse impose un débit constant dans toute l'épaisseur de la roche. Le gradient de charge est donc constant et  $Q = K \frac{\Delta h}{L}$ .

On considère à présent une deux zones de roches superposées d'épaisseurs respectives  $L_1$  et  $L_2$  et de perméabilités respectives  $K_1$  et  $K_2$  (figure 42).

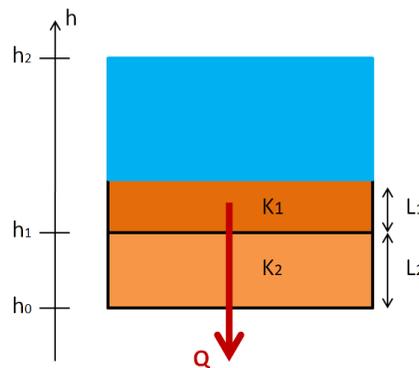


FIGURE 42 – Écoulement dans une roche de perméabilité variable

On cherche à déterminer, au régime stationnaire, le profil de charge. Pour ce faire, on se place au régime stationnaire et on fixe les valeurs  $h_2$  et  $h_0$  en amont et en aval du système. La conservation de la masse empêche l'accumulation d'eau dans une tranche élémentaire de roche : le débit est donc uniforme sur tout le système. On note  $h_1$  la valeur de la charge à l'interface entre les roches.

Grâce à la loi de Darcy, l'égalité du débit s'écrit alors :

$$K_1 \frac{h_2 - h_1}{L_1} = K_2 \frac{h_1 - h_0}{L_2}$$

D'où l'on tire :

$$\left( \frac{K_1}{L_1} + \frac{K_2}{L_2} \right) \cdot h_1 = \frac{K_2}{L_2} h_0 + \frac{K_1}{L_1} h_2$$

On peut alors exprimer  $Q$  en fonction de  $h_0$  et  $h_2$  :

$$\begin{aligned}
Q &= \frac{K_1}{L_1} \left( h_0 - \frac{K_1}{L_1 \left( \frac{K_1}{L_1} + \frac{K_2}{L_2} \right)} h_2 - \frac{K_2}{L_2 \left( \frac{K_1}{L_1} + \frac{K_2}{L_2} \right)} h_0 \right) \\
&= \frac{K_1}{L_1} \left( h_2 \left( 1 - \frac{K_1}{L_1 \left( \frac{K_1}{L_1} + \frac{K_2}{L_2} \right)} \right) - h_0 \frac{K_2}{L_2 \left( \frac{K_1}{L_1} + \frac{K_2}{L_2} \right)} \right) \\
&= \frac{K_1}{L_1} \left( h_2 \frac{\frac{K_2}{L_2}}{\frac{K_1}{L_1} + \frac{K_2}{L_2}} - h_0 \frac{\frac{K_2}{L_2}}{\frac{K_1}{L_1} + \frac{K_2}{L_2}} \right) \\
&= \frac{\frac{K_1 K_2}{L_1 L_2}}{\frac{K_1}{L_1} + \frac{K_2}{L_2}} (h_2 - h_0)
\end{aligned} \tag{1}$$

On peut alors définir une perméabilité équivalente pour le système complet, en considérant que sa longueur équivalente est  $L_{eq} = L_1 + L_2$  :

$$Q = \frac{K_{eq}}{L_{eq}} (h_0 - h_2)$$

Il vient :

$$K_{eq} = (L_1 + L_2) \frac{\frac{K_1 K_2}{L_1 L_2}}{\frac{K_1}{L_1} + \frac{K_2}{L_2}}$$

On peut généraliser la relation à un nombre quelconque de perméabilités en série en notant que le rapport  $\frac{L}{K}$  est additif :

$$\frac{L_{eq}}{K_{eq}} = \frac{L_1}{K_1} + \frac{L_2}{K_2}$$

Pour  $n$  zones de roches en série de perméabilités et longueurs respectives  $K_i$  et  $L_i$ , la perméabilité équivalente est :

$$K_{eq} = \frac{\sum_{i=1}^n L_i}{\sum_{i=1}^n \frac{K_i}{L_i}}$$

On est alors en mesure, connaissant les conditions aux bords d'un système de perméabilités en série, de déterminer la charge aux interfaces entre deux zones de roches en se ramenant à un problème

à deux perméabilités par un calcul de perméabilité équivalente. Alors, le débit et la perméabilité étant constants dans une même zone rocheuse, la loi de Darcy permet d'affirmer que le gradient de charge  $y$  est aussi constant. On peut alors calculer la charge en tout point du système.

Le système s'apparente alors à un système électrostatique, et on peut dresser l'analogie suivante :

TABLE 9 – Analogie entre hydrologie et électrocinétique

Hydrologie	Électrocinétique
Charge $h$	Potentiel $V$
Vitesse de Darcy $\vec{v}$	Densité de courant $\vec{j}$
Perméabilité $K$	Conductance électrique $\gamma$
Loi de Darcy : $\vec{v} = -K \vec{\nabla} h$	$\vec{j} = -\gamma \vec{\nabla} V$

## b) Une première intégration des précipitations au modèle

On considère le problème unidimensionnel suivant : une roche de perméabilité  $K$  et de longueur  $L$  est traversée par un écoulement stationnaire. Pour modéliser des précipitations (plus précisément leur infiltration dans les roches), on ajoute de l'eau de manière uniforme sur toute la longueur de la roche. On note  $q$  l'apport d'eau en  $\text{m}^3/\text{s}/\text{m}$ .

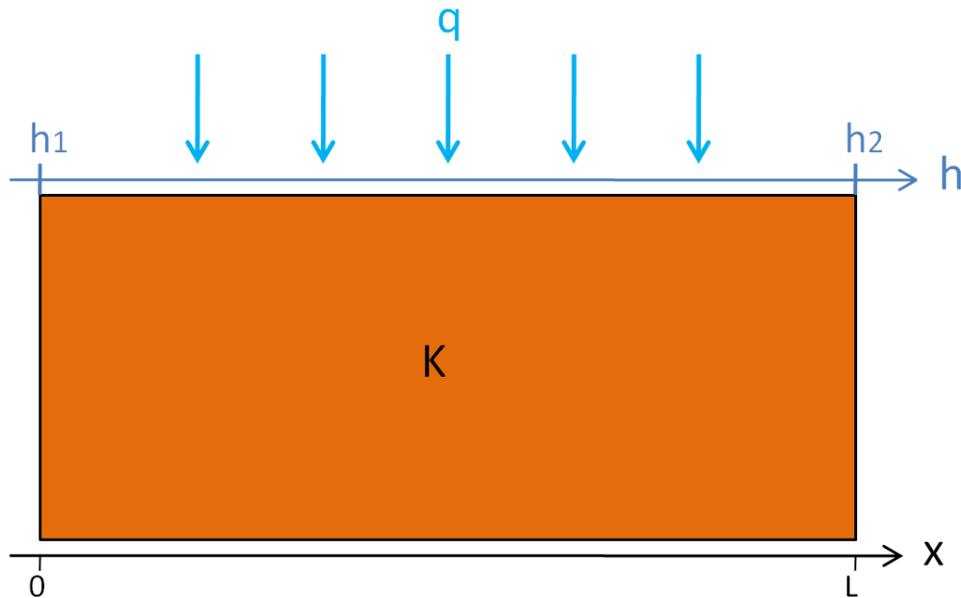


FIGURE 43 – Écoulement selon la direction  $x$  dans une roche de perméabilité uniforme soumise à des précipitations

On écrit l'équation de conservation de la charge sur une tranche  $[x, x+dx]$  (figure 44) :  $\text{div}(Q) = q$ .

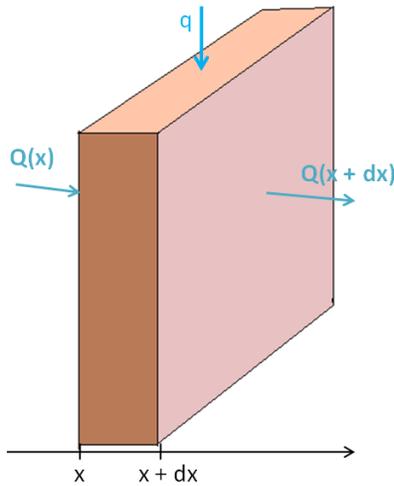


FIGURE 44 – Conservation de la charge dans une tranche élémentaire de roche

On a donc  $\frac{dQ}{dx} = q$ . Or  $Q = -K \frac{dh}{dx}$ . On obtient ainsi l'équation différentielle du second ordre :

$$\frac{d^2h}{dx^2} = -\frac{q}{K}$$

Pour la résoudre entièrement, il est nécessaire de connaître les conditions aux limites.

En supposant les conditions en charge en  $x = 0$  et  $x = L$  connues et en les notant  $h_1$  et  $h_2$  respectivement, on obtient le profil de charge dans la roche :

$$h(x) = -\frac{Q}{2K}x^2 + \left(\frac{h_2 - h_1}{L} + \frac{QL}{2K}\right)x + h_1$$

En supposant la condition en charge en  $x = L$  et le débit entrant  $Q_0 = K \frac{dh}{dx}(x = 0)$  connus, on obtient le profil de charges dans la roche :

$$h(x) = -\frac{Q}{2K}x^2 + \frac{Q_0}{x} + h_2$$

## Annexe C - Radon : détails des raisonnements

### 1) Estimation du facteur d'émanation

On définit le facteur d'émanation comme étant la proportion d'atomes de radon qui atteignent les porosités sans être absorbés par un autre grain. Il est possible d'estimer le facteur d'émanation [36] dans le cas simplifié d'un grain sphérique de diamètre  $D$ , sans prendre en compte l'humidité ou la potentielle absorption des atomes par un grain adjacent.

La formule suivante du facteur d'émanation  $F_e$  est donnée en fonction du paramètre  $x = 2 R_s/D$  et on a tracé la fonction selon le diamètre, avec  $R_s = 30$  nm dans le grain (figure 45).

$$F_e(x) = \frac{3}{4} x \left(1 - \frac{x^2}{12}\right)$$

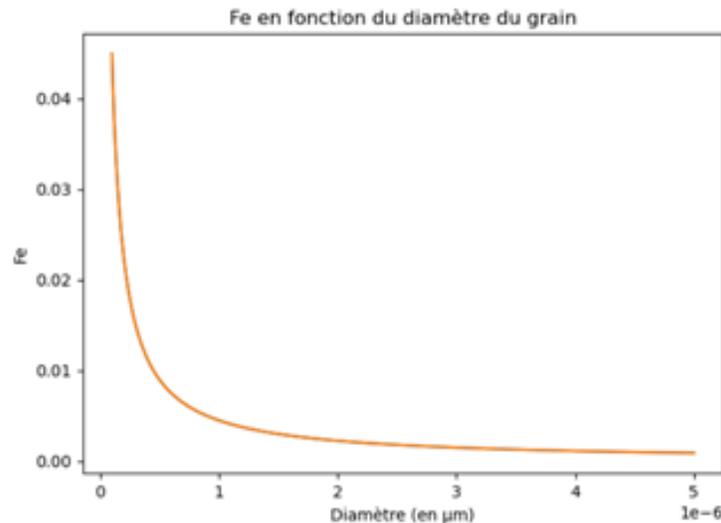


FIGURE 45 – Facteur d'émanation en fonction du diamètre des grains

La littérature scientifique [37] permet de confirmer l'ordre de grandeur obtenu par le calcul simplifié à sec pour des grains dont le diamètre est de l'ordre du micromètre ( $E \simeq 10^{-2}$ ). On note que le facteur d'émanation est d'autant plus élevé que les résidus sont humides ( $E \simeq 0,3$ ) puisque l'eau, avec une distance d'arrêt plus courte, empêche les atomes d'être absorbés par les grains adjacents.

Pour nos valeurs numériques dans les résidus miniers, enfouis en zone saturée, on a sélectionné une valeur du coefficient d'émanation  $E = 0,3$ .

## 2) Équilibre séculaire : calculs

Le but est de déterminer l'activité volumique du radon au sein des résidus, de concentration en radium solide  $c_{Ra}$  constante (en mol/m<sup>3</sup>).

La proportion de quantité de matière de  $Rn(g)$  créée par désintégration atteignant les porosités par unité de volume est  $Ec_{Ra}$ , où  $E$  est le facteur d'émanation. On note  $\lambda_{Ra}$  et  $\lambda_{Rn}$  les coefficients de désintégration du radium et du radon en s<sup>-1</sup>.

On caractérise le milieu par une masse volumique  $\rho$ , une porosité  $\omega$  et une saturation en gaz  $S_g$ . La concentration en radon  $c_{Rn}$  en mol/m<sup>3</sup> évolue selon l'équation :

$$\frac{d\omega S_g c_{Rn}}{dt} = -\lambda_{Rn} \cdot \omega \cdot S_g \cdot c_{Rn} + \lambda_{Ra} \cdot E \cdot (1 - \omega) \cdot c_{Ra}$$

À l'équilibre séculaire,  $c_{Rn}(t) = c_0$  et ainsi :

$$c_0 = \frac{\lambda_{Ra} E (1 - \omega) c_{Ra}}{\lambda_{Rn} \omega S_g}$$

On notera les activités en radon et en radium dans les résidus, avec  $N_a$  le nombre d'Avogadro :

- $a_{Rn} = \lambda_{Rn} N_a c_{Rn}$  en Bq/m<sup>3</sup>
- $A_{Ra} = \frac{\lambda_{Ra} N_a}{\rho} c_{Ra}$  en Bq/kg

Ce qui permet d'obtenir les expressions, et les applications numériques dans le cas du site de la Ribière, avec  $\rho = 2,6 \cdot 10^3$  kg/m<sup>3</sup>,  $\omega = 0,43$ ,  $S_g = 0,3$  et  $A_{Ra} = 4000$  Bq/kg :

$$c_0 = \frac{E(1-\omega)\rho}{\lambda_{Rn}\omega S_g N_a} A_{Ra} = 7,1 \cdot 10^{-12} \text{ mol/m}^3$$

$$a_0 = \lambda_{Rn} N_a c_0 = \frac{E(1-\omega)\rho}{\omega S_g} A_{Ra} = 9,1 \text{ MBq/m}^3$$

## 3) Dose efficace : calculs

Il est possible de déduire la dose efficace d'exposition au radon sur le lieu de travail à partir de l'activité volumique en radon  $a$  en Bq/m<sup>3</sup>, le temps de travail en heures  $\Delta t$  et du facteur d'équilibre  $F$ , qui est une image de la qualité de la ventilation du milieu. Un facteur d'équilibre proche de 0 caractérise un milieu bien aéré, et un facteur d'équilibre proche de 1 signifie que l'air du milieu n'est que très peu renouvelé. Le facteur d'équilibre 0,4 correspond à la moyenne dans les habitations françaises. Une ventilation forcée peut baisser ce paramètre. L'INRS donne alors une expression [38] de la dose efficace (en Sieverts) :

$$d = r F a \Delta t$$

où  $r = 7,8 \cdot 10^{-6}$  mSv/(Bq/m<sup>3</sup>.h) est un coefficient lié à l'impact du radon, que l'on approxime en annexe C4).

Le tableau 10 permet de visualiser la position du niveau de référence de 300 Bq/m<sup>3</sup> par rapport aux limites d'exposition (les cases rouges sont les doses dépassant la limite légale de dose efficace) pour des travailleurs qui ont travaillé 35 heures pendant 56 semaines de l'année. On note que le niveau de référence est bien positionné.

TABLE 10 – Dose efficace en mSv/an en fonction de  $F$  et  $a$  pour un travailleur exposé au radon

$d$ mSv/an		Activité volumique du radon dans l'air $a$ (Bq/m <sup>3</sup> )								
		10	50	100	200	300	500	1000	1500	2000
Facteur d'équilibre $F$	0,1	0,02	0,08	0,15	0,31	0,46	0,76	1,53	2,29	3,05
	0,2	0,03	0,15	0,31	0,61	0,92	1,53	3,05	4,58	6,10
	0,4	0,06	0,31	0,61	1,22	1,83	3,05	6,10	9,15	12,21
	0,6	0,09	0,46	0,92	1,83	2,75	4,58	9,15	13,73	18,31
	0,9	0,14	0,69	1,37	2,75	4,12	6,87	13,73	20,60	27,46

#### 4) Dose efficace : estimation du facteur $r$

On cherche à retrouver la valeur  $r = 7,8 \cdot 10^{-6}$  mSv/(Bq/m<sup>3</sup>.h).

L'IRSN donne un lien [11] entre l'activité volumique du radon  $a$  et l'énergie alpha potentielle volumique  $e_\alpha$  (l'énergie libérée par les désintégrations successives par unité de volume) à l'aide du facteur d'équilibre  $F$  et du coefficient de conversion  $f = 5,56$  nJ/Bq :

$$F = \frac{e_\alpha}{f \cdot a}$$

On sait que le risque radiologique du radon gazeux se situe au niveau des poumons. Le volume d'air inspiré par une personne est égal à  $V = 4,8 \cdot 10^3$  m<sup>3</sup>/an = 0,55 m<sup>3</sup>/h. Or, la dose absorbée en Grey pendant une durée  $\Delta t$  et avec des poumons moyens de masse  $m = 1,2$  kg est donnée par :

$$d_{Gy} = \frac{E_{\text{absorbée}}}{m} = \frac{e_\alpha V \Delta t}{m} = \frac{F f V \Delta t}{m} a$$

On peut en déduire la dose efficace en Sieverts, qui est pondérée par un facteur  $\omega_{rad} = 20$  (radioactivité alpha) et un facteur  $\omega_{tissu} = 0,12$  (tissus pulmonaires) :

$$d_{Sv} = \omega_{rad} \omega_{tissu} d_{Gy} = r' \cdot F \cdot \Delta t \cdot a$$

On a alors posé le facteur  $r'$  :

$$r' = \frac{\omega_{rad} \omega_{tissu} f V}{m} = 6,1 \cdot 10^{-6} \text{ mSv}/(\text{Bq}/\text{m}^3 \cdot \text{h})$$

Qui constitue un ordre de grandeur raisonnable du facteur  $r$ , avec un écart relatif de 22 %.

## 5) Diffusion unidimensionnelle : mise en équation

On se place dans la couche de stériles, au-dessus de la couche de résidus, où on néglige la production de radon dans un premier temps. On prend en compte la désintégration radioactive du radon et sa diffusion, de coefficient effectif  $D_{eff} = D\omega^a S_g^b$  ( $a$  et  $b$  sont les coefficients de Millington-Quirk, on peut prendre  $a = b = 2$  dans les stériles miniers et  $a = b = 1$  dans l'air ou l'eau). La concentration de radon gazeux  $c(z, t)$  en mol/m<sup>3</sup> évolue selon l'équation [37] :

$$\frac{\partial \omega S_g c}{\partial t} = D_{eff} \frac{\partial^2 c}{\partial z^2} - \lambda \omega S_g c$$

L'équation admet une longueur caractéristique de diffusion :

$$L = \sqrt{\frac{D_{eff}}{\lambda \omega S_g}} = \sqrt{\frac{D\omega^a S_g^b}{\lambda \omega S_g}}$$

## 6) Diffusion unidimensionnelle : régime stationnaire

On montre en annexe 7) que le régime transitoire ne dure que quelques jours. En régime stationnaire, l'équation différentielle admet la solution :

$$c(z) = A \exp\left(-\frac{z}{L}\right) + B \exp\left(\frac{z}{L}\right)$$

La constante  $B$  est nulle, car la concentration est nulle à l'infini. On place l'interface résidus/stériles à la cote  $z = 0$ . L'équilibre séculaire dans les résidus implique alors l'égalité  $c(0) = A = c_0$ . Ainsi, on a :

$$\begin{cases} c(z) = c_0 \exp\left(-\frac{z}{L}\right) \\ a(z) = N_a \lambda c(z) = a_0 \exp\left(-\frac{z}{L}\right) \end{cases}$$

Site de la Ribière : pour  $L = 0,6 \text{ m}$  et une profondeur de résidus  $h = 6,5 \text{ m}$ , on trouve une activité volumique du radon de  $180 \text{ Bq/m}^3$  à la surface.

## 7) Diffusion unidimensionnelle : régime transitoire

Notons erfc la fonction d'erreur complémentaire :

$$\text{erfc}(u) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_u^{+\infty} e^{-\xi^2} d\xi$$

Il existe une solution de l'équation en régime transitoire avec  $c(0, t) = c_0$ , de la forme :

$$c(z, t) = \frac{c_0}{2} \left( \exp\left(-\frac{z}{L}\right) \text{erfc}\left(\frac{z}{2L\sqrt{\lambda t}} - \sqrt{\lambda t}\right) + \exp\left(\frac{z}{L}\right) \text{erfc}\left(\frac{z}{2L\sqrt{\lambda t}} + \sqrt{\lambda t}\right) \right)$$

L'expression admet un temps caractéristique de convergence vers l'état stationnaire :

$$\tau = \frac{1}{\lambda} = 4,8 \cdot 10^5 \text{ s} = 5\text{j } 13\text{h}$$

Les graphiques suivants illustrent la progression de la solution transitoire vers l'état stationnaire, de gauche à droite.

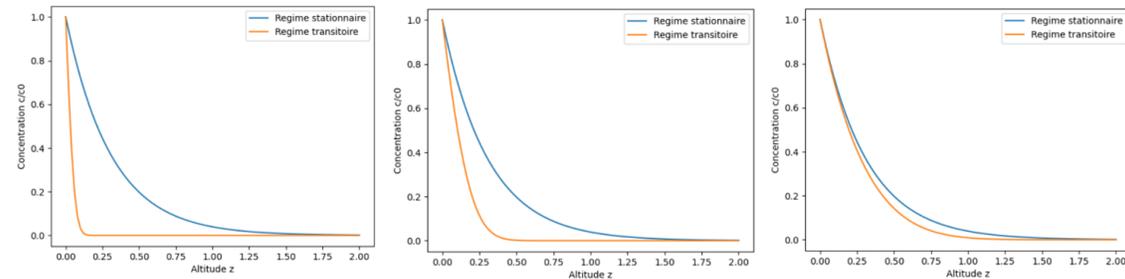


FIGURE 46 – Transition vers l'état stationnaire

Ainsi, au bout d'une ou deux semaines, le régime stationnaire est atteint.

## 8) Sensibilité du modèle analytique aux différents paramètres

Cette partie s'intéresse à la sensibilité des différents paramètres quant à leur impact sur l'efficacité de la diffusion du radon. Dans le modèle analytique, la variabilité tourne autour de la longueur caractéristique de diffusion, qui est déterminée selon le coefficient de diffusion, la porosité, la saturation et les coefficients de Millington-Quirk. Comme on s'intéresse en particulier à l'effet de la saturation en eau plus loin, focalisons nous d'abord sur les autres paramètres.

La figure 47 montre l'impact significatif que le coefficient de diffusion a sur la diffusion du radon. Sur le site de la Ribière, on peut l'estimer autour de  $1 \cdot 10^5 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ .

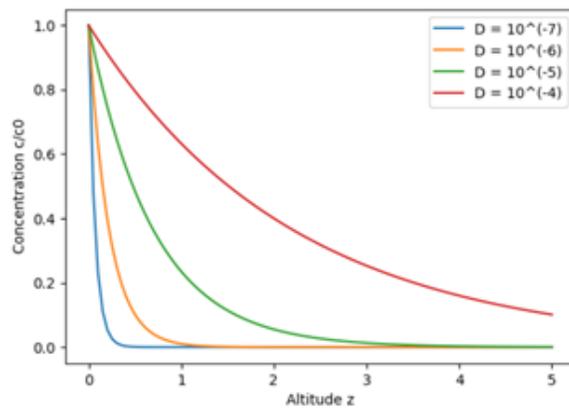


FIGURE 47 – Allure de la courbe de diffusion analytique en fonction du coefficient de diffusion

D'autres paramètres rentrent également en compte. La porosité et les coefficients de Millington-Quirk, qui interviennent dans l'expression du coefficient de diffusion effectif, peuvent grandement impacter la longueur effective de diffusion :

$$L = \sqrt{\frac{D_{\text{eff}}}{\lambda \omega S_g}} = \sqrt{\frac{D \omega^a S_g^b}{\lambda \omega S_g}}$$

Le tableau suivant donne une gamme de valeurs possibles de la longueur caractéristique  $L$  en fonction de ces différents paramètres. On a retenu une saturation en gaz moyenne  $S_g = 0,3$ .

TABLE 11 – Valeur de  $L$  en fonction de  $a = b$ ,  $D$  et  $\omega$

Cas	Coefficients	Expression de $L$	Valeur pour $D = 1.10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$		Valeur pour $D = 2.10^{-6} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$	
			$\omega = 0,43$	$\omega = 0,30$	$\omega = 0,43$	$\omega = 0,30$
Pire cas	$a = b = 1$	$\sqrt{\frac{D}{\lambda}}$	2,2 m	2,2 m	0,98 m	0,98 m
Cas moyen	$a = b = 2$	$\sqrt{\frac{D \omega S_g}{\lambda}}$	0,78 m	0,65 m	0,35 m	0,29 m
Meilleur cas	$a = b = 3$	$\sqrt{\frac{D \omega^2 S_g^2}{\lambda}}$	0,28 m	0,20 m	0,13 m	0,09 m

Sur le site de la Ribière, il y a une couche protectrice d'environ 6,5 m au dessus des résidus. Ainsi, la longueur caractéristique doit être inférieure à 0,65 m afin de respecter le niveau de référence à la surface des résidus. L'échelle de couleur donne les valeurs de  $L$  pour lesquelles la référence est respectée. On peut estimer que les stériles miniers de la Ribière ont des coefficients de Millington-Quirk proches de 2, et des porosités inférieures à 0,43. Ainsi, le modèle analytique prévoit que le niveau de référence d'activité en radon peut être respecté.

## 9) Détails des modèles HYTEC utilisés

Cette partie explicite des détails propres aux implémentations dans HYTEC des différents modèles utilisés.

### Deux codes HYTEC

Pour étudier le transport du radon gazeux vers la surface, la prise en compte de sa désintégration radioactive est primordiale, en effet sa demie-vie de 2,8 jours est assez courte pour qu'une part non négligeable du gaz se soit désintégrée avant d'arriver à la surface : ce phénomène va avoir un impact sur son transport. Cette décroissance radioactive n'est pas prise en compte par HYTEC par défaut, nous avons donc utilisé deux méthodes pour pallier à ce problème.

La première consiste à imposer au radon de se précipiter en un minéral inerte et (fictif car le radon ne précipite pas dans la réalité). La réaction de précipitation est la suivante :



Pour simuler la désintégration du radon à travers cette réaction on impose à cette dernière une cinétique particulière définie ci dessous.

$$\frac{d[Rn_{mineral}]}{dt} = \lambda_{Rn} [Rn_{aq} \text{ ou } g]$$

Ainsi le radon au lieu de se désintégrer, se précipite. Cela revient au même du point de vue de la simulation : le radon précipité ne réagit avec rien et n'influe sur rien ainsi c'est comme si il n'existait plus pour la simulation.

La deuxième méthode consiste à modifier le code HYTEC lui même en incorporant cette décroissance directement dans l'équation de transport du radon dans le code source. Cette modification a été mise en place par Irina Sin, le nouveau code HYTEC est formellement renommé HYTEC\_R.

Dans la suite l'une et l'autre méthode sont utilisés selon l'accès ou non (au temps de la simulation) au code HYTEC\_R, ou encore des éventuels problèmes de compatibilité du code HYTEC\_R avec le modèle utilisé. Cela n'a pas d'impact sur les résultats car les 2 méthodes sont équivalentes.

### Modèles de type « condition aux limites »

Le premier type de modèle utilisé est le plus simple : on modélise une colonne verticale stériles avec éventuellement une zone d'air au dessus selon les besoins. On ne modélise pas ici les résidus à proprement parler, on modélise juste leur impact sur les stériles. Cet impact se traduit par une fugacité constante en radon à la limite basse de la zone stériles du modèle (limite qui est en réalité l'interface stériles/résidus). HYTEC a besoin d'un condition limite en fugacité (pression partielle en radon dans le gaz contenu dans les pores), on ne connaît pas directement cette valeur : on en propose un calcul dans la partie 10) ci-dessous.

### Modèles de type « production de radon dans toute la colonne »

Ce deuxième type de modèle met en place, pour modéliser la création de radon dans toute la colonne de résidus et de stériles, un mécanisme similaire à celui introduit plus haut : au lieu de précipiter du radon on force du radon sous forme minérale (on aura introduit ce radon minéral au préalable) à se dissoudre :



On pilote cette réaction en lui imposant une cinétique qui dépend de l'activité en radium dans la zone de la colonne considérée (stériles ou résidus) :

$$\frac{d[Rn_{aq} \text{ ou } g]}{dt} = K(Activit_{Ra})$$

## 10) Relation entre fugacité et activité du radon

Les modèles numériques demandent, pour les gaz, des conditions initiales exprimées en fugacité. Le but de cette partie est de formaliser les relations reliant l'activité du radon gazeux  $a(z, t)$  en  $\text{Bq/m}^3$ , la concentration en radon gazeux  $c(z, t)$  en  $\text{mol/m}^3$  et la fugacité du radon gazeux  $P_{Rn}(z, t)$  en Pa. La relation des gaz parfaits donne, à une température  $T$  et avec  $R$  la constante des gaz parfaits :

$$P_{Rn}(z, t) = \frac{n_{Rn}RT}{V} = RT c(z, t) = \frac{RT}{N_a \lambda} a(z, t)$$

On en déduit, pour une activité du radon  $a_0 = 9,1 \text{ MBq/m}^3$  dans les résidus, la fugacité initiale  $p_0 = p(0, t)$  à entrer dans le modèle HYTEC :

$$p_0 = 1,7 \cdot 10^{-8} \text{ Pa} = 1,7 \cdot 10^{-13} \text{ bar}$$

## 11) Sensibilité des modèles numériques aux différents paramètres

Cette partie est consacrée à la sensibilité des paramètres sur les modèles numériques. Les simulations ont été réalisées avec un même coefficient de diffusion  $D = 1.10^{-6} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ , une porosité élevée  $\omega = 0,43$  et une saturation variable dans la zone des stériles.

La figure 48 donne, en pourcentage, l'atténuation du radon en fonction des coefficients de Millington-Quirk sélectionnés. La simulation a été réalisée sur un modèle de 2 mètres, réduit par rapport à la réalité du site, mais cela suffit pour visualiser la sensibilité. On note que ces coefficients influent grandement sur la diffusion du radon.

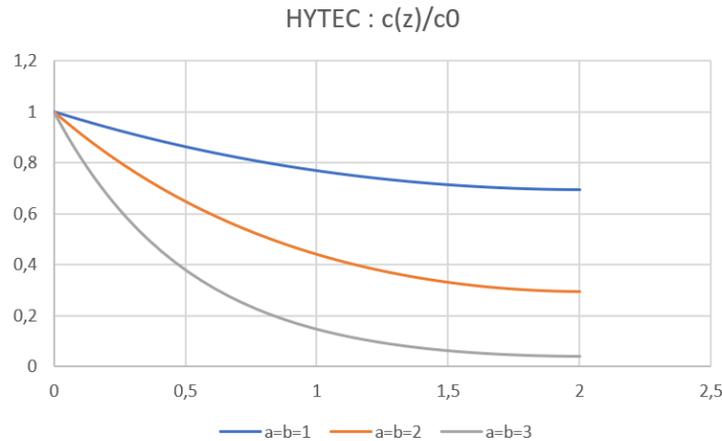


FIGURE 48 – Courbe de diffusion numérique en fonction des coefficients de Millington-Quirk

Les coefficients de Van-Genuchten, notés  $\alpha$  et  $n$ , interviennent dans l'expression de la pression capillaire, qui joue un rôle lorsque la saturation en eau n'est pas uniforme, en particulier dans un

modèle vertical. En posant  $S_{e,\text{eff}}$  la saturation effective en eau, son expression est donnée par :

$$p_c(S_e) = \frac{1}{\alpha} \left( S_{e,\text{eff}}^{\frac{n}{n-1}} - 1 \right)^{1/n}$$

Les figures 49 et 50 illustrent la sensibilité des paramètres de Van-Genuchten, et montrent qu'avec des coefficients de Millington-Quirk égaux à 2, une variation d'ordre  $\pm 1$  du paramètre  $\alpha$  ou une variation d'ordre  $\pm 0,1$  du paramètre  $n$  ne modifie pas l'ordre de grandeur de la fugacité du radon à la surface.

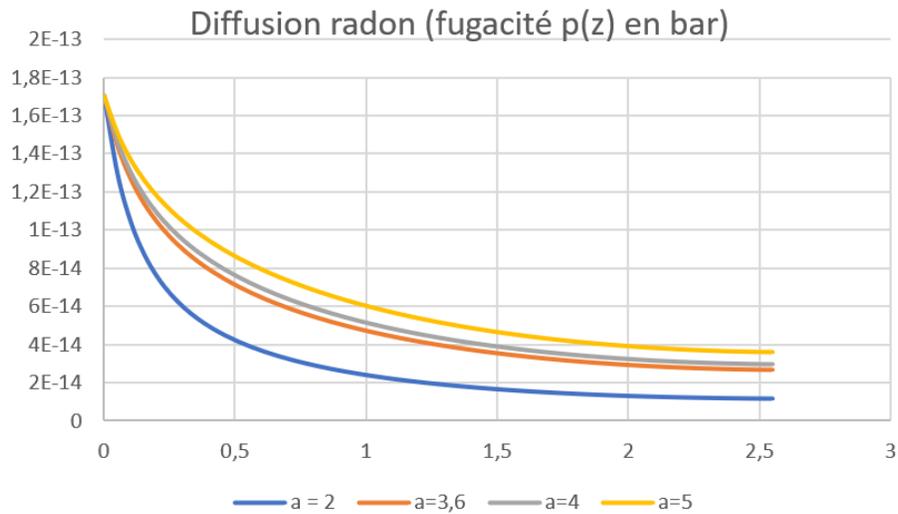


FIGURE 49 – Allure de la courbe de diffusion numérique en fonction de  $\alpha$ , à  $n = 1,56$  fixé

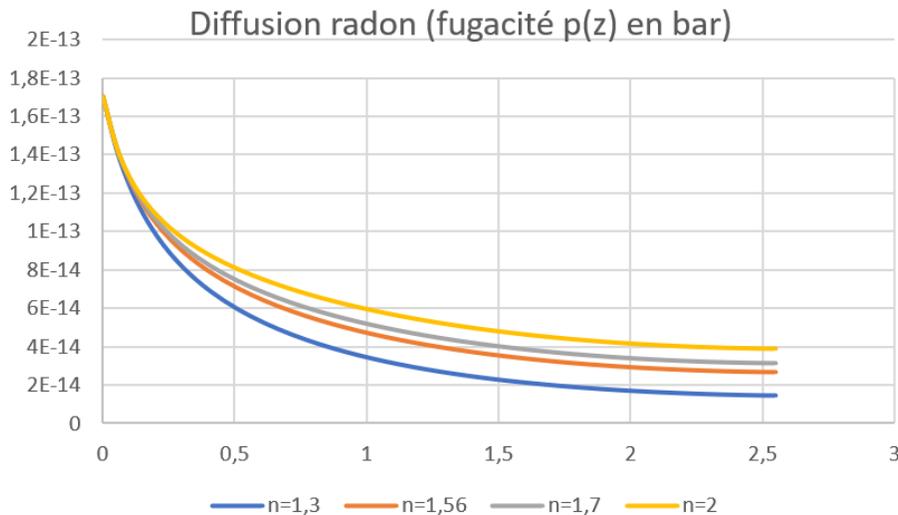


FIGURE 50 – Allure de la courbe de diffusion numérique en fonction de  $n$ , à  $\alpha = 3,6$  fixé

Par la suite, nous avons fixé les paramètres de Van-Genuchten à  $\alpha = 3,6$  et  $n = 1,56$ , qui sont des valeurs moyennes pour les matériaux concernés.

## 12) Impact d'un terme source dans les stériles

Les stériles contiennent du radium d'activité massique  $A_{Ra,s}$ . Le radium se désintègre avec un coefficient  $\lambda_{Ra}$ . Ajoutons un terme source dans l'équation différentielle en concentration de radon  $c(z, t)$  (exprimée en mol/m<sup>3</sup>) :

$$\frac{\partial \omega S_g c}{\partial t} = D_{eff} \frac{\partial^2 c}{\partial z^2} - \lambda \omega S_g c + \lambda_{Ra} (1 - \omega) E c_{Ra}$$

Cette équation se résout également en régime stationnaire, pour  $c = c(z)$  et  $L = \sqrt{\frac{D_{eff}}{\lambda \omega S_g}}$  :

$$\frac{d^2 c}{dz^2} - \frac{c}{L^2} = \frac{\lambda_{Ra} (1 - \omega) E}{D_{eff}} c_{Ra}$$

On obtient, avec les mêmes conditions aux limites :

$$c(z) = c_s + (c_0 - c_s) \exp(-z/L)$$

On a posé la concentration source  $c_s$  :

$$c_s = \frac{(1 - \omega) E \rho_s}{\lambda_{Rn} \omega S_g N_a} A_{Ra,s}$$

Ce résultat est à comparer avec la solution sans terme source, de la forme  $c_0 \exp(-z/L)$ . On calcule donc le rapport suivant :

$$R = \frac{c_s}{c_0} = \frac{\frac{(1 - \omega) E \rho}{\lambda_{Rn} \omega S_g N_a} A_{Ra,s}}{\frac{E_r (1 - \omega_r) \rho_r}{\lambda_{Rn} \omega_r S_{g,r} N_a} A_{Ra,r}} = \frac{E}{E_r} \frac{(1 - 1/\omega)}{(1 - 1/\omega_r)} \frac{\rho}{\rho_r} \frac{S_{g,r}}{S_g} \frac{A_{Ra,s}}{A_{Ra,r}}$$

On a alors :

$$c(z) = c_s + c_0 (1 - R) \exp(-z/L)$$

L'interprétation de cette expression est claire :

- Si  $R \ll 1$ , alors la production de radon dans les stériles est négligeable.
- Sinon, la production de radon dans les stériles peut être importante.
- Dans tous les cas, au bout d'une certaine altitude, seule la production de radon dans les stériles n'est visible à la surface.

## Annexe D - Géochimie

### 1) Choix des minéraux et calcul de concentration

Le stockage de résidus de la Ribière se caractérise par la présence de deux faciès très distincts : un faciès sableux, dont la composition élémentaire est représentative du granite minéralisé dont les résidus sont issus, les éléments majoritaires y sont le silicium, l'aluminium et le potassium et un faciès gypseux, riche en calcium, soufre et carbone inorganique, assimilé aux boues de neutralisation, composées principalement de gypse et de carbonates, obtenues par le traitement à la chaux de solutions riches en acide sulfurique et éléments dissous. Pour modéliser au mieux ces deux faciès, il nous fallait leur composition en différents minéraux qui se trouvent sur le site. Pour commencer, nous avons déterminé quels minéraux étaient à prendre en compte et nous sommes restreints à 8 minéraux différents (voir tableau 12).

Les données d'ORANO nous fournissaient les pourcentages massiques en oxyde de chaque élément présent. Grâce à ces chiffres, nous avons calculé les concentrations en gramme par litre d'eau de chaque minéral retenu. Pour cela, nous avons introduit la densité de la roche ainsi que sa porosité et utilisé la formule :  $[mineral] = \frac{\text{pourcentage}(\text{oxyde})}{\text{densite} \times \text{porosite}}$ . Ainsi, on obtient le tableau 8 qui donne la concentration en minéraux des différents faciès.

TABLE 12 – Minéraux des deux faciès et leur concentration

Minéral	Concentration faciès sable	Concentration faciès boue
Quartz	557 g/L	0
Microcline	321 g/L	29,5 g/L
Montmorillonite	137 g/L	297 g/L
Gypse	19,3 g/L	403 g/L
BaSO4	841 mg/L	0
Autunite	239 mg/L	82,2 mg/L
Ferrihydrite	33 g/L	66,9 g/L
Calcite	0	16,7 g/L

## 2) Résultats de simulation : figures

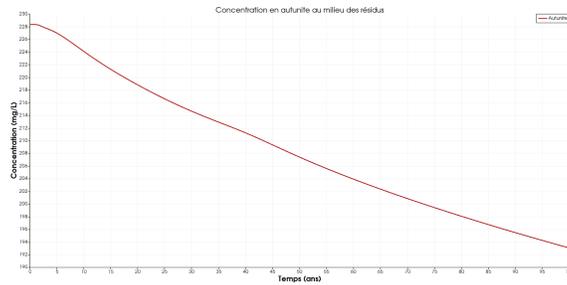


FIGURE 51 – Concentration en autunite au milieu des résidus

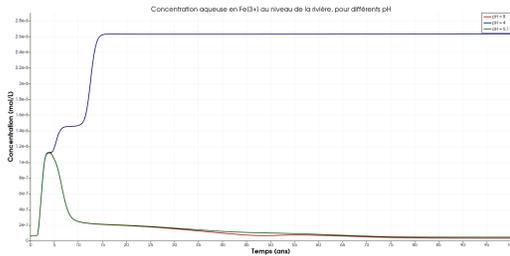


FIGURE 52 – Concentration aqueuse en  $Fe^{3+}$  dans l'eau rejetée dans la rivière, pour différents pH

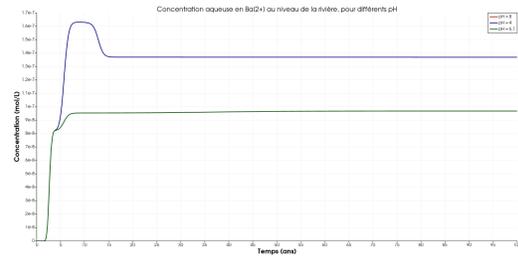


FIGURE 53 – Concentration aqueuse en  $Ba^{2+}$  dans l'eau rejetée dans la rivière, pour différents pH

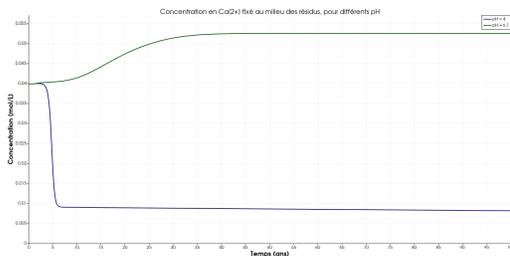


FIGURE 54 – Concentration en  $Ca^{2+}$  fixé au milieu des résidus, pour différents pH

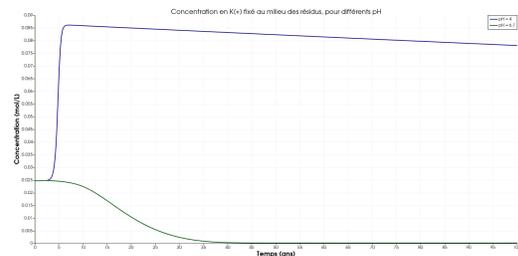
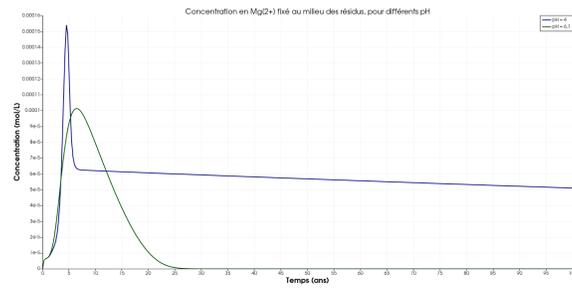
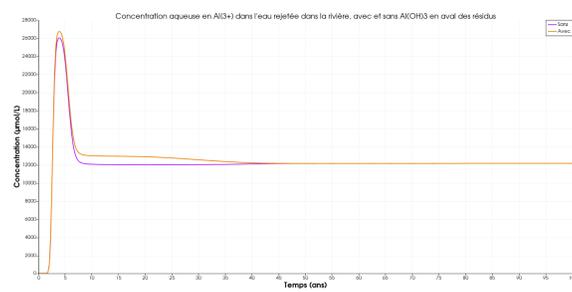


FIGURE 55 – Concentration en  $K^+$  fixé au milieu des résidus, pour différents pH

FIGURE 56 – Concentration en  $Mg^{2+}$  fixé au milieu des résidus, pour différents pHFIGURE 57 – Concentration aqueuse en  $Al^{3+}$  dans l'eau rejetée dans la rivière, avec et sans  $Al(OH)_3$  en aval des résidus

## Annexe E - Comparaison à l'échelle internationale

### Australie

L'existence de dépôts d'uranium est connue en Australie depuis 1890 et les mines de Radium Hill et Mount Painter, exploitées pour leur radium, produisent également un peu d'uranium. Mais ce n'est qu'à partir de 1944 que commencent les recherches intensives de gisements d'uranium. Dans les années 1950, commença l'exploitation des mines de Rum Jungle, Mary Kathleen et South Alligator. L'uranium a principalement été exporté aux Etats-Unis et au Royaume-Uni, pour alimenter leurs programmes d'armement nucléaire. Le développement de l'énergie nucléaire conduit à l'exploitation des mines de Ranger, Nabarlek et Koongarra à la fin des années 1970. En 1988, la mine Olympic Dam commence une production d'uranium comme sous-produit. Néanmoins, en 1984, le gouvernement limite la production et l'exportation d'uranium aux sites de Ranger, Nabarlek et Olympic Dam. Ce n'est qu'en 2007 que cette politique sera abandonnée et en 2009 que sera approuvé le projet d'une quatrième mine, Four Mile face, marquant le retour de l'expansion du marché de l'uranium en Australie. Le pays est désormais le troisième producteur mondial d'uranium et le premier pays en termes de ressources connues. Cependant, toute la production est exportée.

En Australie, les *Environmental Requirements* (ER) pour la mine d'uranium de Ranger, établis en 1999, fixent les normes de protection environnementale auxquelles l'entreprise responsable d'un site minier doit se soumettre [21]. L'entreprise doit s'assurer que les opérations minières ne compromettent pas l'écosystème environnant et la santé de la population locale. Elle doit maintenir la biodiversité des écosystèmes et assurer la continuation des processus biologiques. Elle doit par ailleurs réhabiliter le site minier de sorte à établir un environnement correspondant à sa zone géographique, en assurant la revégétalisation avec des espèces natives de cette zone, avec la même densité et abondance, ou encore en faisant en sorte que les caractéristiques d'érosion du site soient cohérentes, afin d'assurer la viabilité à long terme et, à terme, de permettre à la zone de se développer sans maintenance particulière par rapport aux zones alentour. De plus, l'entreprise doit assurer des conditions radiologiques stables afin que la dose reçue par les travailleurs et le public soit aussi basse que raisonnablement possible. Elle doit pour cela minimiser le volume d'eau contaminée nécessaire pour faire fonctionner le site, et minimiser la quantité de contaminants présente dans cette eau, tout en s'assurant que ces contaminants soient contenus dans le site. De même, les émissions gazeuses et particulières doivent être minimisées. L'objectif étant de limiter autant que raisonnablement possible les risques pour la santé des locaux. L'entreprise doit pour cela suivre le principe BPT (*Best Practicable Technology*), en implémentant la technologie disponible ayant le plus de retombées positives sur l'environnement. L'Australie a donc mis en place un mode de gestion ALARA (*As Low As Reasonably Achievable*) pour le contrôle et la réhabilitation de ses mines d'uranium. Les mesures correctives doivent être prises en accord avec le ministère de l'environnement, mais ce sont les compagnies minières qui ont la responsabilité de réaliser la réhabilitation et de payer les coûts associés jusqu'à ce que les autorités estiment que le site a été réhabilité à un niveau satisfaisant.

La méthode privilégiée pour le stockage de résidus en Australie est le stockage souterrain. Cependant, un manque d'attention au stockage des résidus, en particulier à la perméabilité des roches constituant les sites de stockage, a souvent conduit à la contamination des réserves d'eau souterraines, notamment par interaction avec les eaux de pluies accélérant grandement l'érosion des roches, ce qui est exacerbé pendant la saison des pluies. De plus, le traitement des eaux souterraines a souvent été insuffisant voire inexistant, conduisant à la contamination des réserves d'eau naturelles. À la mine de Rum Jungle, l'approche utilisée pour limiter cette acidification a été la

construction d'une couverture multicouches, limitant l'infiltration des eaux de pluie. À la mine de Nabarlek, l'eau des bassins de rejet a même été dispersée en 1985 sur 20 hectares de terrains forestiers pour accélérer la déshydratation en dispersant l'eau contaminée. Cependant, une élévation de la concentration de sulfate et nitrate dans les eaux souterraines a conduit à la mort d'une partie des arbres de la forêt qui ne s'est rétablie qu'en 1997. La revégétalisation des sites de stockage permet en outre de limiter l'érosion des roches et de déshydrater les couches de couverture par évapotranspiration et captage de l'humidité, et donc de limiter les émissions de polluants.

## Allemagne

Durant la guerre froide, une importante industrie minière a été établie en Allemagne de l'Est. De 1947 à 1990, des mines d'uranium ont été exploitées en Saxe (Johanngeorgenstadt, Aue, Schlema) et en Thuringe (Ronneburg, Königstein...). La production a été utilisée par l'Union Soviétique, dans un premier temps, pour la production d'armes nucléaires puis en tant que combustible dans des centrales nucléaires. Les mines d'uranium ont toutes été fermées suite à la réunification de l'Allemagne, pour des raisons environnementales. Au début, l'uranium extrait était traité dans des usines mécaniques proches des mines, mais la production s'est concentrée dans des usines à traitement chimique à Crossen et Seelingstädt dans les années 1950. La mine de Königstein s'est convertie au In-Situ Leaching acide dans les années 1980. La production totale d'uranium aura été d'environ 230 000 tonnes, avec jusqu'à 7 000 tonnes par an.

Le *Strahlenschutzgesetz*, établi en 2017, fournit le cadre juridique de la protection face aux effets néfastes des radiations et établit les bases légales de radioprotection [22]. Cet acte implémente la directive 2013/59/Euratom du conseil européen qui met en place des standards de protection face à l'exposition aux radiations [39]. Cette loi met en place des valeurs limites précises de concentration, d'activité et de dose effective annuelles pour différentes espèces radioactives et différents publics. Par exemple, la limite générale de la dose efficace annuelle pour le public est de 1 mSv, c'est-à-dire la même qu'en France, et la concentration d'activité de l'uranium ne doit pas dépasser 10 kBq/kg. La réhabilitation des mines d'uranium allemandes est principalement gérée par la société Wismut, détenue et financée par l'État allemand. Elle est chargée du démantèlement des mines, du réaménagement des sites et de la surveillance des installations et des émanations. Cependant, il n'existe pas de loi spécifique à la gestion des mines d'uranium après la fin de leurs activités, ni de législation globale sur les méthodes à appliquer. Le gouvernement allemand préfère appliquer des méthodes propres à chaque site afin d'apporter des réponses adaptées. La surveillance implique des mesures menées sur le long terme à des positions précises afin d'assurer la cohérence du site avec la loi et un meilleur contrôle sur les actions de réhabilitation.

Lors de la réhabilitation d'une mine d'uranium, la société Wismut GmbH peut procéder à une inondation des mines souterraines, un traitement des eaux contaminées et au stockage des résidus miniers. La première étape du traitement des résidus miniers est de les déplacer jusqu'à un site de stockage, comme un bassin de rejet ou une ancienne mine, et Wismut a par exemple eu recours à un convoyeur tubulaire, un convoyeur à courroie ayant la forme d'un tuyau permettant ainsi de limiter le déversement des résidus miniers dans l'environnement, d'une longueur de 2 kilomètres. L'inondation des mines stockant les résidus permet alors de contenir le rejet de contaminants des matériaux. Pour traiter les bassins de rejet des résidus miniers, la société procède par déshydratation. Dans un premier temps, l'eau de surface est pompée pour être traitée, les résidus sont recouverts par une couverture multicouche, des drains sont ajoutés pour déshydrater les résidus et enfin, le tout est recouvert par une couche de stériles miniers dont la pression accélère le processus de déshydratation. La société peut alors procéder à une revégétalisation cohérente avec la zone géographique. Les

procédés utilisés pour le traitement de l'eau sont le traitement par précipitations et le traitement par résines échangeuses d'ions. Les stériles miniers ont également été impliqués dans la production de gravier et de ciment utilisés dans la construction de routes et de voies ferrées. Le projet permettrait de disperser les matériaux radioactifs sur de grandes surfaces pour en réduire la concentration et donc la dangerosité.

## États-Unis

Si des mines de l'ouest du Colorado, exploitées pour leur radium, produisent de l'uranium dès 1898, les années 1950 ont vu un boom de l'extraction d'uranium dans l'ouest des États-Unis : ils ont été le premier producteur mondial d'uranium de 1953 à 1980. La baisse des prix au début des années 1980 a conduit à la fermeture de nombreuses mines. Dans la plupart des gisements, le minerai d'uranium aux États-Unis est de moindre qualité que ceux de l'Australie et du Canada. En raison de la moindre teneur, de nombreux gisements d'uranium aux États-Unis sont devenus non rentables lorsque le prix de l'uranium a fortement baissé à la fin des années 1970. En 2001, il n'y avait plus que trois mines d'uranium en activité. Elles étaient toutes exploitées par lixiviation in-situ<sup>5</sup> (*in-situ recovery*, ISR). La production annuelle a atteint un minimum de 779 tonnes d'oxyde d'uranium en 2003. En 2011, les États-Unis ont extrait 9 % de l'uranium consommé par leurs centrales nucléaires ; le reste était importé. Bien que la production d'uranium soit tombée à de faibles niveaux, les États-Unis possèdent la quatrième plus grande ressource d'uranium au monde, derrière l'Australie, le Canada et le Kazakhstan.

En 1950, le *US Public Health Service* a commencé une étude sur les mineurs d'uranium, conduisant à la première publication en 1962 d'une corrélation statistique entre le cancer et l'extraction d'uranium. Le gouvernement fédéral a finalement réglementé la quantité standard de radon dans les mines en 1969 en fixant le niveau à 0,3 WL. Plus tard, l'USAEC (*United States Atomic Energy Commission*) a fixé des objectifs et des conseils pour la réhabilitation de l'eau dans les anciens sites miniers, surtout pour les eaux souterraines contaminées par ISR. L'objectif est de restaurer la qualité de l'eau dans les nappes aquifères telle qu'elle était avant l'exploitation minière. Bien que toutes les caractéristiques chimiques ne puissent pas être restaurées, l'eau doit être assurée aux mêmes utilisations qu'auparavant. L'USAEC (*United States Atomic Energy Commission*) formule des recommandations concernant la caractérisation du niveau de base de la qualité des eaux souterraines avant le début des opérations minières, la surveillance pour détecter l'évolution de lixiviat pendant l'exploitation minière et la surveillance à long terme pour déterminer à quel moment la qualité des eaux souterraines se stabilise après la fermeture des opérations minières. L'eau avant l'exploitation est généralement de mauvaise qualité (teneurs élevées en métal, en uranium et parfois de haute salinité), ce qui résulte des mécanismes de genèse du minerai. L'objectif de qualité physico-chimique à atteindre dépend de la réglementation locale. Généralement, la concentration doit redevenir aussi proche que possible du niveau de base. Par exemple, au Texas, c'est la TCEQ (*Texas Commission on Environmental Quality*) qui définit le niveau de base pour ses sites miniers locaux et surveille la réhabilitation. Au Texas, 26 éléments chimiques sont mesurés avant l'exploitation minière pour établir le niveau de base, qui constitue l'objectif de restauration. On sélectionne la concentration moyenne la plus élevée de la zone minière. Cependant, une étude publiée par l'*U.S. Geological Survey* en 2009 a révélé que « À ce jour, aucune opération après ISR (*in-situ recovery*) aux États-Unis n'a réussi à restaurer l'eau dans l'aquifère au niveau de base ». Tous les sites du Texas ont reçu des objectifs de restauration modifiés pour au moins un élément, déterminés par TCEQ.

---

<sup>5</sup>La technique est décrite plus loin.

Le *in-situ recovery* (ISR) ou *in-situ leach mining* est une technique de lixiviation employée dans l'industrie minière pour extraire les minéraux d'uranium naturellement présents à l'état solide dans un gisement. Elle consiste à injecter lentement une solution (généralement acide) dans le gisement par un premier forage, puis quelques mois plus tard, la solution riche d'uranium est pompée à la surface grâce à un deuxième forage. Aujourd'hui, le *in-situ recovery* (ISR) représente plus de 90 % d'exploitation d'uranium aux États-Unis. Cependant, il présente un risque accru de contamination des eaux souterraines. Les deux méthodes de restauration les plus courantes sont le balayage des eaux souterraines (*groundwater sweep*) et l'osmose inversée (*reverse osmosis*). Le balayage des eaux souterraines consiste à pomper les eaux souterraines contaminées du centre du site minier. Cela induit un afflux d'eau souterraine provenant des nappes aquifères environnantes. L'eau provenant de l'extérieur se déplace à travers l'espace poreux en déplaçant l'eau contaminée. Le processus est appelé « balayage des eaux souterraines » parce que les eaux souterraines propres balayent l'eau contaminée vers les puits d'extraction. Une rangée de puits est placée pour assurer un flux d'eau plus uniforme vers le centre de la zone contaminée. L'osmose inversée consiste à pomper les eaux souterraines contaminées hors du sol vers un équipement d'osmose inversée. Avant de s'écouler vers cet équipement, l'eau est filtrée, le pH est abaissé pour empêcher le carbonate de calcium de boucher les membranes filtres et l'eau est acheminée vers une pompe de haute pression (à environ 550 psig). À cette pression, environ 60 à 75 % de l'eau est forcée à travers les membranes filtres, laissant environ 70 à 90 % des solutés. L'eau propre est ensuite réinjectée dans les champs. Les deux méthodes sont souvent combinées pour maximiser l'efficacité.

## Canada

La première découverte d'uranium enregistrée au Canada a eu lieu dans les années 1930 dans les Territoires du Nord-Ouest. Pendant la Seconde Guerre Mondiale, la demande d'uranium a explosé lorsque les États-Unis ont lancé le projet Manhattan pour produire les premières armes atomiques. En conséquence, en 1943, le gouvernement du Canada a formé une société fédérale, *Eldorado Gold Mines Limited*, pour surveiller les exploitations d'uranium. L'industrie minière uranifère était uniquement contrôlée par le gouvernement. L'interdiction de la prospection privée a été levée en 1947. Cela a conduit à un boom d'exploration qui a rapidement abouti à la découverte des mines dans les Territoires du Nord-Ouest (Rayrock), en Ontario (Bancroft et Elliot Lake) et en Saskatchewan (Uranium City). En 1956, 23 mines étaient en opération dans cinq provinces. En 1959, les exportations canadiennes d'uranium étaient évaluées à 330 millions de dollars, plus que tous les autres minerais exportés du Canada cette année-là. Au début des années 1960, la demande militaire d'uranium a diminué et, en 1965, le Canada a imposé une politique consistant à ne vendre de l'uranium que pour des objectifs pacifiques. Cette période marque la fin du boom de l'uranium et le nombre de mines en exploitation tombe à quatre. Le 30 juin 1996, la dernière mine de la région d'Elliot Lake, la mine Stanleigh, ferme. Après cela, seule la province de la Saskatchewan continue à produire de l'uranium, mais comme la teneur en uranium du gisement de la Saskatchewan est élevée, le Canada reste le plus grand producteur d'uranium au monde. En 2009, le Canada était le deuxième producteur d'uranium, derrière le Kazakhstan : 20 % de la production mondiale d'uranium primaire provenait du Canada.

C'est un État fédéral et la responsabilité de la réglementation de traitement et la réhabilitation est partagée entre les gouvernements provinciaux et le gouvernement fédéral. L'AEBC (*Atomic Energy Control Board*), un organisme public indépendant, est responsable des affaires liées à l'énergie nucléaire et aux matières radioactives. Le règlement R-90 traite de la fermeture et de la réhabilitation des sites. Bien que le Canada réglemente les mines d'uranium, les provinces sont les principaux propriétaires fonciers. Par conséquent, les mines d'uranium fermées reviendront finalement aux

provinces ou redeviendront des terres de la Couronne. Les agences environnementales provinciales sont les principaux régulateurs de la qualité de l'eau de tous les sites miniers. En 1996, l'AECB a établi la réglementation stratégique de gestion des déchets radioactifs pour s'assurer que les déchets après les mines sont gérés de manière responsable. Les objectifs de cette réglementation sont :

- protéger l'environnement, en tenant compte des facteurs sociaux et économiques
- minimiser le besoin de contrôle et de surveillance à long terme
- s'assurer que les risques pour la santé sont conformes aux normes en vigueur
- ne pas interdire l'utilisation future des ressources naturelles contenues dans les déchets miniers.

Des normes spécifiques sont développées pour chaque site. Néanmoins, un certain nombre de critères communs sont applicables à tous les sites. Par exemple, une valeur de 1 mSv par an pour l'équivalent de dose efficace moyen est à respecter sur une période de 50 ans après la fermeture des sites d'uranium, ainsi que les autres exigences légales sur la sécurité nucléaire et la protection radiologique mises en place par l'AECB. Dans ce cadre, les propriétaires des déchets sont responsables du financement, de l'organisation, de la gestion et de l'élimination des installations. Pour les anciennes mines d'uranium, dont beaucoup ont été fermées il y a plus de 50 ans, plusieurs facteurs doivent être pris en compte. Dans de nombreux cas, l'entreprise qui exploitait la mine, ou son successeur, existe toujours et s'occupe des déchets sur ses sites. Cependant, dans certains cas, le site est revenu à la Couronne lorsque les entreprises ont disparu et la responsabilité de traitement des déchets est alors partagée entre les gouvernements provincial et fédéral. Lorsque ces anciennes mines fonctionnaient, les réglementations environnementales appliquées à l'industrie minière n'étaient pas très strictes. Cependant, il n'est pas rentable de remettre en état les anciens sites en respectant les normes actuelles. La plupart des sites présentent un risque très faible, en raison des faibles teneurs de minerai, de leurs emplacements éloignés et du fait que les polluants se sont dissipés au cours des 50 dernières années.

Au Canada, la technologie de réhabilitation des anciens sites miniers d'uranium a évolué sur une période de plus de 50 ans. Les premières pratiques tendent à déverser directement des stériles non traités dans la dépression ou le lac le plus proche et de laisser les installations en place. Les traitements sont planifiés et mis en place plus tard. Comme pour les mines d'uranium partout dans le monde, les principaux problèmes sont la radioactivité, la dispersion et la contamination de l'eau. Pour la plupart des sites miniers au Canada, la quantité de précipitation est plus grande que l'évaporation tout au long de l'année, c'est pourquoi la couverture d'eau est une méthode de traitement souvent utilisée au Canada, mais qui est rarement vue dans les autres pays. Avec un très faible coefficient de diffusion dans l'eau, la longueur caractéristique d'atténuation de radon est de l'ordre de quelques centimètres. Les résidus étaient asséchés avant d'être placés dans un bassin avec des remblais à faible perméabilité ou dans un lac naturel rénové avec des barrages. Cette méthode a pour objectif de prévenir l'émission de radon, la génération d'acide et de limiter les coûts.

## Conclusions de la comparaison

Le stockage des résidus dans l'objectif de limiter la contamination de l'environnement est une étape essentielle du cycle de vie d'une mine. Cependant, dans deux cas ces résidus ont été relâchés dans la nature sans aucun contrôle : aux usines de Bukovo en Bulgarie et de Mounana au Gabon,

avec de graves retombées sur l'environnement et la santé des populations locales. De plus, la végétalisation est une étape nécessaire à la réhabilitation des sites de stockage de résidus. Néanmoins, dans certains pays, comme le Niger, le climat désertique ne permet pas d'assurer cette étape. Le stockage souterrain des résidus miniers offre une meilleure protection face à l'érosion que le stockage à la surface. Cependant, ce stockage diminue la distance entre les résidus et les eaux souterraines, et toute fuite provoquerait leur contamination. Si les résidus présentent une certaine chimiotoxicité, seule la présence d'une couche géologique imperméable, naturelle ou artificielle, permettrait de minimiser les risques du stockage souterrain. Le stockage à la surface permet de mieux contrôler le confinement des résidus, qui sont plus faciles d'accès, mais nécessite donc des mesures plus strictes afin d'assurer la protection de l'environnement. Il ressort donc qu'une approche au cas par cas de la gestion des sites miniers permettrait de choisir le traitement le plus adapté, mais l'absence de normes précises peut conduire les entreprises à une réhabilitation plus laxiste des sites. Il est néanmoins nécessaire d'assurer une surveillance régulière et intensive des sites de stockages et de leurs environs afin de certifier l'efficacité des méthodes mises en place et de prévenir au plus vite toute brèche de confinement.

## Annexe F - Scripts HYTEC

Script n° 1 – Modèle couplé hydrogéologique et chimique

```
# MIG 2020 – MP1
# Modele final

database = prodata1104_utf8_MIG_test.tdb
5
# Geometrie and hydrogeologie
# -----
flow-regime = saturated , transient
solver-regime = vertex
10 grid-regime = vertex ribiere_gros.msh

diffusion-coeff = 1e-9 m2/s

15 # les differentes zones du profil
# -----
zone 1001 {
  head = 360 m
  porosity = 0.03
20 permeability = 1e-9, 1e-9, 0, 0 m/s
  geochem = chimie_granite
}

zone 1002 {
25 head = 360 m
  porosity = 0.05
  permeability = 5e-7, 5e-6, 0, 0 m/s
  geochem = chimie_granite_frac
}

30 zone 1003 {
  head = 370 m
  porosity = 0.1
  permeability = 1.9e-6, 1e-4, 0, 0 m/s
35 geochem = chimie_steriles
}

zone 1004 {
40 head = 360 m
  porosity = 0.2
  permeability = 5e-5, 5e-5, 0, 0 m/s
  geochem = chimie_residus_sable
}

45 zone 1005 {
```

```

head = 360 m
porosity = 0.2
permeability = 1e-5, 1e-5, 0, 0 m/s
geochem = chimie_residus_boues
50 }

# les frontieres qui definissent les conditions aux limites

boundary 2001 {
55   coordinates = 0,300 0,370 m
#   transport-condition = constant-concentration using chimie_granite
}

boundary 2002 {
60   coordinates = 430,300 430,350 m
    flow-condition = constant-head at 348 m
}

boundary 2003 {
65   coordinates = 0,395 21,394
    transport-condition = flux using top
    flow-condition = constant-flow at 0,-200 mm/y
    modify at $1 d, flow-condition = constant-flow at 0,$2 mm/y from
        precipitations.dat
70 }

# Geochimie
# -----
exclude gases, minerals
75 equilibration-time = 10 y

unit top {
    tot Tpluie(aq) = 1 umol/l

80   tot Na[+] = 1 umol/L
    tot Cl[-] = 1 umol/L
    conc CO2(aq) = 3.3884e-05 molal
    tot Ca[2+] = 1 umol/L
    tot Mg[2+] = 1 umol/L
85   tot SO4[2-] = 1 umol/L
}

unit chimie_residus_sable {
90   pH = 4.361
    tot Tresidus = 1 umol/l

    tot Na[+] = 1 mmol/L
    tot Cl[-] = 1 mmol/L

```

```

95   conc CO2(aq) = 3.3884e-05 molal

    mineral Quartz = 557 g/L
    mineral Microcline = 321 g/L, surface = 0.1 m2/g
    mineral Montmorillonite-Ca = 137 g/L , surface = 600 m2/g
    mineral Gypse = 19.3 g/L
100  mineral Autunite = 239 mg/L
    mineral Ferrihydrite = 33 g/L , surface = 0.1 m2/g
}

unit chimie_residus_boues {
105  tot Tresidus = 1 umol/l

    tot Na[+] = 0.1 mmol/L
    tot Cl[-] = 0.1 mmol/L

110  mineral Microcline = 29.5 g/L, surface = 0.1 m2/g
    mineral Montmorillonite-Ca = 297 g/L, surface = 700 m2/g
    mineral Gypse = 403 g/L
    mineral Calcite = 16.7 g/L
    mineral Autunite = 82.2 mg/L
115  mineral Ferrihydrite = 66.9 g/L, surface = 0.2 m2/g
}

unit chimie_steriles {
#sol
120  pH = 5.60862
    tot Tsteriles(aq) = 1 umol/l

    conc CO2(aq) = 3.3884e-05 molal
125  tot Na[+] = 1 mmol/L
    tot Cl[-] = 1 mmol/L
    tot Ca[2+] = 1 umol/L
    tot Mg[2+] = 1 umol/L
    tot SO4[2-] = 1 umol/L

130  mineral Quartz = 1 kg/L
    mineral Microcline = 29.5 g/L, surface = 0.1 m2/g
    mineral Montmorillonite-Ca = 30 g/L
}

135  unit chimie_granite {
    pH = 6.5
    tot Tgranite(aq) = 1 umol/l

    tot Na[+] = 1 mmol/L
140  tot Cl[-] = 1 mmol/L
    conc Mg[2+] = 1e-10 molal
    conc K[+] = 1e-8 molal

```

```

    conc CO2(aq) = 3.3884e-05 molal
145  mineral Quartz = 1 kg/L
    mineral Microcline = 100 g/L, surface = 0.1 m2/g
    mineral Montmorillonite-Ca = 100 g/L, surface = 600 m2/g
}

150  unit chimie_granite_frac {
    pH = 6.5
    tot Tgfrac = 1 umol/l

    tot Na[+] = 1 mmol/L
155  tot Cl[-] = 1 mmol/L
    conc Mg[2+] = 1e-10 molal
    conc K[+] = 1e-8 molal
    conc CO2(aq) = 3.3884e-05 molal

160  mineral Quartz = 1 kg/L
    mineral Microcline = 100 g/L, surface = 0.1 m2/g
    mineral Montmorillonite-Ca = 100 g/L, surface = 600 m2/g
}

165  extend mineral Ferrihydrite {
    surface = 0.1 m2/g
}

extend mineral Microcline {
170  surface = 0.1 m2/g
    kinetics {
        rate = -1e-8 mol/m2/s
        area = Microcline
        y-term, species = Microcline
175  w-term {
            species = H[+]
            power = 0.3
        }
    }
}

180  kinetics {
    rate = 1e-8 mol/m2/s
    area = Microcline
    y-term, species = Microcline
    w-term {
185  species = H[+]
        power = 0.3
    }
}
}

190  extend mineral Montmorillonite-Ca {

```

```

surface = 600 m2/g
kinetics {
  rate = -1.2e-13 mol/m2/s
195  area = Montmorillonite-Ca
  y-term, species = Montmorillonite-Ca
  w-term {
    species = H[+]
    power = 0.22
200  }
}
kinetics {
  rate = 1.9e-13 mol/m2/s
205  area = Montmorillonite-Ca
  y-term, species = Montmorillonite-Ca
  w-term {
    species = H[+]
    power = 0.22
210  }
}
}

exclude (UO2)11(CO3)6(OH)12[2-], (UO2)3(CO3)6[6-], U(CO3)5[6-], S3O6[2-],
S2[2-], S4[2-], S5[2-], S6[2-], S3[2-], S3O6[2-]
exclude Mg2UO2(CO3)3(aq), MgUO2(CO3)3[2-], UO2(CO3)3[4-], Ca2UO2(CO3)3(
215  aq), CaUO2(CO3)3[2-], (UO2)3O(OH)2(HCO3)[+], UO2(H2PO4)(H3PO4)[+]

define basis Tresidus
define basis Tgranite(aq)
define basis Tsteriles(aq)
define basis Tpluie(aq)
220 define basis Tfrac

# Simulation parameters
# -----
225 duration = 25 y
sample = 300

timestep = variable {
  start = 10 min
230  maximum = 10 d
  courant-factor = 10
}

# Output specifications
# -----
235 output-format = vtk

select Tresidus in umol/l

```

```
select Tgranite(aq) in umol/l
240 select Tsteriles(aq) in umol/l
select Tpluie(aq) in umol/l
select Tgfrac in umol/l
select head
select x-permeability
245 select y-permeability
select porosity
select x-flowrate in m/s
select y-flowrate in m/s

250 select aqueous{UO2[2+]}, fixed{UO2[2+]}, mineral{UO2[2+]} in umol/L
select pH
select minerals in mg/l
select rate{Gypse}, rate{Montmorillonite-Ca}, rate{Microcline}, rate{
  Ferrihydrite}
select rate{Quartz}, rate{Autunite}
255 select aqueous{SO4[2-]}, fixed{SO4[2-]}
select aqueous{K[+]}, fixed{K[+]}
select aqueous{Mg[2+]}, fixed{Mg[2+]}
select aqueous{Ca[2+]}, fixed{Ca[2+]}
select aqueous{Na[+]}, fixed{Na[+]}
260 select aqueous{Cl[-]}, fixed{Cl[-]}
select aqueous{H[+]}, fixed{H[+]}
select aqueous{Al[3+]}, fixed{Al[3+]}
select aqueous{Fe[3+]}, fixed{Fe[3+]}
select aqueous{PO4[3-]}, fixed{PO4[3-]}
```

## Script n° 2 – Modèle géochimique sans injection d'aluminium

```

domain = 0,0 200,0 200,30 0,30 m
dispersivity = 2.5 mm
permeability = 1e-6
diffusion-coeff = 1e-9 m2/s
5 flow-regime = saturated , stationary

zone sable {
  porosity = 0.3
10 geometry = rectangle 15,15 30,30 m, nodes = 20,1
  geochem = sable
}

zone granite {
15 porosity = 0.05
  geometry = rectangle 115,15 170,30 m, nodes = 50,1
  geochem = granit
}

20 boundary inject {
  coordinates = 0,0 0,30 m
  flow-condition = constant-head at 20 m
  transport-condition = flux using tracer
25 }

boundary droite {
  coordinates = 200,0 200,30 m
  flow-condition = constant-head at 0 m
30 }

exclude gases , minerals
exclude BaRaSO4
35 define basis T1(aq)

unit sable {
  tot Na[+] = 1 mmol/L
  tot Cl[-] = 1 mmol/L
40 fug CO2(g) = 0.001

  mineral Quartz = 557 g/L
  mineral Microcline = 321 g/L
  mineral Montmorillonite-Ca = 137 g/L , surface = 600 m2/g
45 mineral Gypse = 19.3 g/L
  mineral BaSO4(cr) = 841 mg/L
  mineral Autunite = 239 mg/L
  mineral Ferrihydrite = 33 g/L , surface = 0.1 m2/g

```

```

50 }
    mineral RaSO4(s) = 1.76 ug/L

unit boue {
    tot Na[+] = 0.1 mmol/L
    tot Cl[-] = 0.1 mmol/L
55    mineral Microcline = 29.5 g/L
    mineral Montmorillonite-Ca = 297 g/L , surface = 700 m2/g
    mineral Gypse = 403 g/L
    mineral Calcite = 16.7 g/L
    mineral Autunite = 82.2 mg/L
60    mineral Ferrihydrite = 66.9 g/L , surface = 0.2 m2/g
    mineral RaSO4(s) = 594 ng/L
}

unit granit {
65    tot Na[+] = 1 mmol/L
    tot Cl[-] = 1 mmol/L
    fug CO2(g) = 0.001
    mineral Quartz = 1 kg/L
    mineral Microcline = 1 kg/L
70    mineral Ferrihydrite = 33 g/L, surface = 0.1 m2/g
}

unit tracer {
75    pH = 6.1
    tot Tl(aq) = 1 mmol/L
    mineral Quartz = 1 kg/L
    mineral Microcline = 100 g/L
    mineral Gypse = 19.3 g/L
    mineral Ferrihydrite = 33 g/L, surface = 0.1 m2/g
80    tot Na[+] = 1 mmol/L
    tot Cl[-] = 1 mmol/L
}

extend mineral Montmorillonite-Ca {
85    surface = 600 m2/g
}

extend mineral Ferrihydrite {
90    surface = 0.1 m2/g
}

extend mineral Montmorillonite-Ca {
    kinetics {
95        rate = -1.2e-15 mol/m2/s
        area = Montmorillonite-Ca
        y-term, species = Montmorillonite-Ca
        w-term {

```

```

    species = H[+]
    power = 0.22
100     }
    }
    kinetics {
    rate = 1.9e-15 mol/m2/s
105     area = Montmorillonite-Ca
    y-term, species = Montmorillonite-Ca
    w-term {
        species = H[+]
        power = 0.22
110     }
    }
}

exclude (UO2)11(CO3)6(OH)12[2-], (UO2)3(CO3)6[6-], U(CO3)5[6-], S3O6[2-
], S2[2-], S4[2-], S5[2-], S6[2-], S3[2-], S3O6[2-]
exclude Mg2UO2(CO3)3(aq), MgUO2(CO3)3[2-], UO2(CO3)3[4-], Ca2UO2(CO3)3(
aq), CaUO2(CO3)3[2-], (UO2)3O(OH)2(HCO3)[+], UO2(H2PO4)(H3PO4)[+]
115 include Brucite

database = /home/nseigneur/prodata1104_utf8_MIG.tdb
duration = 100 y
timestep = variable {
120     minimum = 30 s
        start = 1 h
        maximum = 5 d
}

125 output = ribieresable
output-format = res, vtk
sample = 400

select T1(aq) in umol/l
130 select aqueous{UO2[2+]}, fixed{UO2[2+]}, mineral{UO2[2+]} in umol/L
select pH
select minerals in mg/L
select x-flowrate

135 select aqueous{Ca[2+]}, fixed{Ca[2+]}
select aqueous{Mg[2+]}, fixed{Mg[2+]}
select aqueous{Na[+]}, fixed{Na[+]}
select aqueous{K[+]}, fixed{K[+]}
select aqueous{H[+]}, fixed{H[+]}
140 select aqueous{Ba[2+]}, fixed{Ba[2+]}
select aqueous{PO4[3-]}, fixed{PO4[3-]}
select aqueous{SO4[2-]}, fixed{SO4[2-]}
select aqueous{Fe[3+]}, fixed{Fe[3+]}

```

## Script n° 3 – Modèle géochimique avec injection d'aluminium

```

domain = 0,0 200,0 200,30 0,30 m
dispersivity = 2.5 mm

flow-regime = saturated , stationary
5
zone sable {
  porosity = 0.3
  geometry = rectangle 15,15 30,30 m, nodes = 20,1
  geochem = sable
10  permeability = 1e-6 m/s
      diffusion-coeff = 1e-9 m2/s
}

zone granite {
15  porosity = 0.05
    geometry = rectangle 115,15 170,30 m, nodes = 50,1
    geochem = granit
    permeability = 1e-6 m/s
    diffusion-coeff = 1e-10 m2/s
20 }

boundary inject {
  coordinates = 0,0 0,30 m
  flow-condition = constant-head at 20 m
25  transport-condition = flux using tracer
}

boundary droite {
30  coordinates = 200,0 200,30 m
    flow-condition = constant-head at 0 m
}

exclude gases , minerals
35 exclude BaRaSO4
define basis T1(aq)

unit sable {
40  tot Na[+] = 1 mmol/L
    tot Cl[-] = 1 mmol/L
    fug CO2(g) = 0.001

    mineral Quartz = 557 g/L
45  mineral Microcline = 321 g/L
    mineral Montmorillonite-Ca = 137 g/L , surface = 600 m2/g
    mineral Gypse = 19.3 g/L
    mineral BaSO4(cr) = 841 mg/L

```

```

50  mineral Autunite = 239 mg/L
    mineral Ferrihydrite = 33 g/L , surface = 0.1 m2/g
    mineral RaSO4(s) = 1.76 ug/L
    mineral Al(OH)3(am) = 1e-6 mol/l , surface = 1 m2/g
}

55  unit boue {
    tot Na[+] = 0.1 mmol/L
    tot Cl[-] = 0.1 mmol/L
    mineral Microcline = 29.5 g/L
    mineral Montmorillonite-Ca = 297 g/L , surface = 700 m2/g
60  mineral Gypse = 403 g/L
    #mineral BaSO4(cr) = 48.3 mg/L
    mineral Calcite = 16.7 g/L
    mineral Autunite = 82.2 mg/L
    mineral Ferrihydrite = 66.9 g/L , surface = 0.2 m2/g
65  mineral RaSO4(s) = 594 ng/L
    mineral Al(OH)3(am) = 0 mol/l , surface = 1 m2/g
}

unit granit {
70  tot Na[+] = 1 mmol/L
    tot Cl[-] = 1 mmol/L
    fug CO2(g) = 0.001
    mineral Quartz = 1 kg/L
    mineral Microcline = 1 kg/L
75  mineral Ferrihydrite = 33 g/L, surface = 0.1 m2/g
    mineral Al(OH)3(am) = 1 mol/l , surface = 1 m2/g
}

80  unit tracer {
    pH = 6.1
    tot Tl(aq) = 1 mmol/L
    mineral Quartz = 1 kg/L
    #mineral Microcline = 100 g/L
85  mineral Gypse = 19.3 g/L
    mineral Ferrihydrite = 33 g/L, surface = 0.1 m2/g
    tot Na[+] = 1 mmol/L
    tot Cl[-] = 1 mmol/L
    #tot UO2[2+] = 10 nmol/L
    #mineral Al(OH)3(am) = 10 g/L
90  tot Al[3+] = 0.1 mol/l
    mineral Al(OH)3(am) = 0 mol/l , surface = 0 m2/g
}

95  extend mineral Montmorillonite-Ca {
    surface = 600 m2/g
}

```

```

}
100 extend mineral Ferrihydrite {
    surface = 0.1 m2/g
}

105 extend mineral Al(OH)3(am) {
    surface = 1 m2/g
}

110 extend mineral Montmorillonite-Ca {
    kinetics {
        rate = -1.2e-15 mol/m2/s
        area = Montmorillonite-Ca
        y-term, species = Montmorillonite-Ca
        w-term {
115             species = H[+]
                power = 0.22
            }
        }
    }
120     kinetics {
        rate = 1.9e-15 mol/m2/s
        area = Montmorillonite-Ca
        y-term, species = Montmorillonite-Ca
        w-term {
125             species = H[+]
                power = 0.22
            }
        }
    }
}

130 extend mineral Al(OH)3(am) {
    kinetics {
        rate = 1e-10 mol/m2/s
        y-term, species = Al(OH)3(am)
        #area = Al(OH)3(am)
135     surface = 1 m2/l
    }
    kinetics {
        rate = -1e-10 mol/m2/s
        y-term, species = Al(OH)3(am)
140     area = Al(OH)3(am)
    }
}

145 exclude (UO2)11(CO3)6(OH)12[2-], (UO2)3(CO3)6[6-], U(CO3)5[6-], S3O6[2-],
S2[2-], S4[2-], S5[2-], S6[2-], S3[2-], S3O6[2-]

```

```

exclude Mg2UO2(CO3)3(aq), MgUO2(CO3)3[2-], UO2(CO3)3[4-], Ca2UO2(CO3)3(
  aq), CaUO2(CO3)3[2-], (UO2)3O(OH)2(HCO3)[+], UO2(H2PO4)(H3PO4)[+]
include Brucite, Al(OH)3(am)

150 #database = /home/sguillon/prodata1104_utf8_MIG_test.tdb
database = /home/nseigneur/prodata1104_utf8_MIG.tdb
duration = 100 y
timestep = variable {
  minimum = 15 min
155   start = 1 h
   maximum = 5 day
}

output = ribieresablealumax
160 output-format = res, vtk
sample = 400

select Tl(aq) in umol/l
select aqueous{UO2[2+]}, fixed{UO2[2+]}, mineral{UO2[2+]} in umol/L
165 select pH
select minerals in mg/L
select SI{Al(OH)3(am)}
select x-flowrate
select aqueous{Ca[2+]}, fixed{Ca[2+]}
170 select aqueous{Mg[2+]}, fixed{Mg[2+]}
select aqueous{Na[+]}, fixed{Na[+]}
select aqueous{K[+]}, fixed{K[+]}
select aqueous{H[+]}, fixed{H[+]}
select aqueous{Ba[2+]}, fixed{Ba[2+]}
175 #select aqueous{Ra[2+]}, fixed{Ra[2+]}
select aqueous{PO4[3-]}, fixed{PO4[3-]}
select aqueous{SO4[2-]}, fixed{SO4[2-]}
select aqueous{Fe[3+]}, fixed{Fe[3+]}
select aqueous{Al[3+]}, fixed{Al[3+]}

```

## Annexe G - Modèle topographique du site

Script n° 4 – Modèle topographique du site de La Ribière

```
// Geometrie du site de La Ribiere
// Mini-projet 1 – hydrogeologie

// precision du maillage
5 dx = 5;
  dxx = 2;
  dxxx = 2;

// 4 zones
10 zone_granite_dur = 1001;
  zone_granite_fracture = 1002;
  zone_steriles = 1003;
  zone_residus_sable = 1004;
  zone_residus_boues = 1005;

15 // les conditions aux limites
  CL_g = 2001;
  CL_d = 2002;
  CL_h = 2003;

20 // les points
  Point(1) = {0, 300, 0, 10};
  Point(4) = {430, 300, 0, 10};
  Point(6) = {36, 392, 0, dxx};
25 Point(7) = {91, 379, 0, dxx};
  Point(8) = {109, 376, 0, dxx};
  Point(9) = {206, 367, 0, dxx};
  Point(11) = {286, 356, 0, dxx};
  Point(12) = {327, 356, 0, dxx};
30 Point(13) = {390, 351, 0, dxx};
  Point(14) = {46, 390, 0, dx};
  Point(15) = {121, 375, 0, dx};
  Point(16) = {0, 395, 0, dxx};
  Point(17) = {430, 350, 0, dxx};
35 Point(18) = {0, 395, 0, dx};
  Point(19) = {46, 358, 0, 3};
  Point(21) = {121, 375, 0, dx};
  Point(22) = {36, 388, 0, dx};
  Point(23) = {46, 386, 0, dxx};
40 Point(24) = {91, 375, 0, dxx};
  Point(25) = {109, 376, 0, dx};
  Point(26) = {109, 372, 0, dxx};
  Point(27) = {206, 363, 0, dxx};
  Point(28) = {286, 352, 0, dx};
45 Point(29) = {327, 352, 0, dx};
```

```
Point (30) = {390, 347, 0, dxx};
Point (31) = {430, 346, 0, dx};
Point (32) = {121, 371, 0, dxx};
Point (33) = {0, 391, 0, dx};
50 Point (34) = {91, 350, 0, dx};
Point (39) = {430, 341, 0, dx};
Point (40) = {430, 337, 0, dx};
Point (41) = {270, 337, 0, dx};
Point (42) = {199, 338, 0, dx};
55 Point (43) = {36, 358, 0, dx};
Point (44) = {46, 352, 0, dxxx};
Point (45) = {46, 373, 0, dx};
Point (46) = {91, 367, 0, dxx};
Point (47) = {109, 366, 0, dx};
60 Point (48) = {121, 365, 0, dx};
Point (49) = {46, 362, 0, 1.0};
Point (50) = {53, 358, 0, 1.0};
Point (51) = {53, 362, 0, 1.0};
Point (52) = {121, 362, 0, 1.0};
65 Point (53) = {115, 358, 0, 1.0};
Point (54) = {115, 362, 0, 1.0};

// Les lignes
Line (1) = {1, 33};
70 Line (2) = {33, 16};
Line (3) = {16, 6};
Line (4) = {6, 14};
Line (5) = {14, 7};
Line (6) = {7, 8};
75 Line (7) = {8, 15};
Line (8) = {15, 9};
Line (9) = {9, 11};
Line (10) = {11, 12};
Line (11) = {12, 13};
80 Line (12) = {13, 17};
Line (13) = {17, 31};
Line (14) = {31, 39};
Line (15) = {39, 40};
Line (16) = {40, 4};
85 Line (17) = {4, 1};
Line (18) = {33, 22};
Line (19) = {22, 23};
Line (23) = {32, 26};
Line (24) = {26, 24};
90 Line (25) = {24, 23};
Line (26) = {32, 27};
Line (27) = {27, 28};
Line (28) = {28, 29};
Line (29) = {29, 30};
```

```

95  Line(30) = {30, 31};
    Line(34) = {34, 42};
    Line(35) = {42, 41};
    Line(36) = {41, 40};
    Line(38) = {22, 43};
100 Line(39) = {44, 34};
    Line(40) = {45, 46};
    Line(41) = {46, 47};
    Line(42) = {47, 48};
    Line(43) = {23, 45};
105 Line(46) = {32, 48};
    Line(48) = {49, 45};
    Line(49) = {48, 52};
    Line(50) = {53, 50};
    Ellipse(37) = {43, 19, 19, 44};
110 Ellipse(51) = {49, 51, 51, 50};
    Ellipse(52) = {52, 54, 54, 53};

115 // les surfaces

    Line Loop(48) = {37, 39, 34, 35, 36, 16, 17, 1, 18, 38};
    Plane Surface(1) = {48};
    Physical Surface(zone_granite_dur) = {1};
120 Line Loop(49) = {35, 36, -15, -14, -30, -29, -28, -27, -26, 46, 49, 52,
    50, -51, 48, -43, -19, 38, 37, 39, 34};
    Plane Surface(2) = {49};
    Physical Surface(zone_granite_fracture) = {2};

125 Line Loop(50) = {3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12, 13, -30, -29, -28,
    -27, -26, 23, 24, 25, -19, -18, 2};
    Plane Surface(5) = {50};
    Physical Surface(zone_steriles) = {5};

    Line Loop(51) = {40, 41, 42, 49, 52, 50, -51, 48};
130 Plane Surface(3) = {51};
    Physical Surface(zone_residus_boues) = {3};

    Line Loop(52) = {43, 40, 41, 42, -46, 23, 24, 25};
    Plane Surface(4) = {52};
135 Physical Surface(zone_residus_sable) = {4};

// les limites

    Physical Line(CL_g) = {1, 2};
140 Physical Line(CL_d) = {16, 14, 15, 13};
    Physical Line(CL_h) = {3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12};

```

## Annexe H - Modélisations de l'atténuation du radon

Script n° 5 – Radon type 1 : modèle vertical à deux zones

```

#
# Non-sature, colonne verticale, diffusion de Rn
#
5 # Description de l'écoulement

flow-regime = two-phase, transient

temperature = 25 C
10
unsaturated-model = van-genuchten { # parameters for loam
  alpha = 3.6
  n = 1.56
}
15
# Geometrie

domain = 0,0 1,0 1,6.5 0,6.5 m

20 zone Steriles {
  geometry = rectangle 0.5,3 1,6 m, nodes = 1,60
  geochem = chimie_steriles

  head = -0.2 m
25 porosity = 0.43
  permeability = 3e-6 m/s

  unsaturated-model = van-genuchten { # parameters for loam
30   alpha = 3.6
   n = 1.2
  }
  water-content {
35   start = 0.3
   minimum = 0.078
   maximum = 0.43
  }
  millington-quirk = enabled {
40   porosity-coefficient = 2
   saturation-coefficient = 2
   gas-porosity-coefficient = 2
   gas-saturation-coefficient = 2
  }

45 diff.coeff = 1e-9 m2/s
   gas-diffusion-coefficient = 2e-5 m2/s

```

```

}

zone Atm {
50   geometry = rectangle 0.5,6.25 1,0.5 m, nodes = 1,5
      geochem = chimie_atm

      head = -0.2 m
      porosity = 1
      permeability = 1e-20 m/s
55     dispersivity = 0 m

      unsaturated-model = van-genuchten { # parameters
          alpha = 8.85
          n = 1.56
60     }
      water-content {
          start = 0.3
          minimum = 0.01
          maximum = 1
65     }
      millington-quirk = enabled {
          porosity-coefficient = 1
          saturation-coefficient = 1
          gas-porosity-coefficient = 1
70     gas-saturation-coefficient = 1
      }
      diff.coeff = 0 m2/s
      gas-diffusion-coefficient = 1e-4 m2/s
75   }

# Conditions aux limites

boundary Residus {
80   coordinates = 0,0 1,0 m
      flow-condition = constant-head at -0.2 m
      gas-transport-condition = constant-conc using chimie_residus
}
boundary Atm {
85   coordinates = 0,6.5 1,6.5 m
      flow-condition = constant-flow at 0,0 mm/y
      transport-condition = flux using chimie_atm
}

# Geochimie
90   unit chimie_atm {
      temperature = 25 C
      tot Tatm = 1 umol/l
      fug N2(g) = 1

```

```

95   fug Rn(g) = 1e-25
     fug Ar(g) = 1e-25
}
unit chimie_steriles {
100  temperature = 25 C
     tot Tcol = 1 umol/l
     fug N2(g) = 1
     fug Rn(g) = 1e-25
     fug Ar(g) = 1e-25
}
105  unit chimie_residus {
     temperature = 25 C
     tot Tres = 1 umol/l
     fug Ar(g) = 1.7e-13
     fug Rn(g) = 1.7e-13
110 }

database = llnlR+gas2019P.tdb
exclude gases, minerals, colloids, sites
define basis-species Tcol
115  define basis-species Tres
     define basis-species Tatm

# Criteres de temps
120  duration = 100 d
     timestep = variable {
         start = 0.1 h
         maximum = 2 h
     }
125

# Parametres de sortie

output-format = res, vtk
sample = 40
130  verbose = enabled

select head, pressure in m
select water-content
select gas-diffusion
135  select moisture
     select effective-saturation
     select y-flowrate in m/s
     select permeability in m/s
     select Tatm, Tcol, Tres in umol/l
140  select fug{Rn(g)} in Pa
     select fug{Ar(g)} in Pa
     select Rn(g), Rn(aq) in molal
     select Ar(g), Ar(aq) in molal

```

## Script n° 6 – Radon type 1 : modèle vertical avec précipitations

```

#
# Non-sature, colonne verticale, diffusion de Rn
#
5
# Description de l'écoulement
#
flow-regime = two-phase, transient

10 temperature = 25 C

unsaturated-model = van-genuchten { # parameters for loam
  alpha = 3.6
  n = 1.56
15 }

# Geometrie
#
domain = 0,0 1,0 1,3 0,3 m

20 zone Steriles {
  geometry = rectangle 0.5,1.5 1,3 m, nodes = 1,50
  geochem = chimie_steriles

25 head = -0.4 m
  porosity = 0.43
  permeability = 3e-6 m/s

  unsaturated-model = van-genuchten { # parameters for loam
30 alpha = 3.6
  n = 1.56
  }
  water-content {
35 start = 0.3
  minimum = 0.078
  maximum = 0.43
  }
  millington-quirk = enabled {
40 porosity-coefficient = 1
  saturation-coefficient = 1
  gas-porosity-coefficient = 1
  gas-saturation-coefficient = 1
  }

45 diff.coeff = 1e-9 m2/s
  gas-diffusion-coefficient = 2e-5 m2/s
}

```

```

# Conditions aux limites
50 # -----
boundary Residus {
  coordinates = 0,0 1,0 m
  flow-condition = constant-head at -0.4 m
  gas-transport-condition = constant-conc using chimie_residus
55 }
boundary Atm {
  coordinates = 0,3 1,3 m
  flow-condition = constant-flow at 0,-200 mm/y
  transport-condition = flux using chimie_pluie
60 }

# Geochimie
# -----
unit chimie_pluie {
65   temperature = 25 C
   tot Tplu = 1 umol/l
   fug Rn(g) = 1e-25
   fug Rn_1(g) = 1e-25
   fug Ar(g) = 1e-25
70 }

unit chimie_steriles {
   temperature = 25 C
75   tot Tcol = 1 umol/l
   fug Rn(aq) = 1e-25
   fug Rn_1(aq) = 1e-25
}

unit chimie_residus {
80   temperature = 25 C
   tot Tres = 1 umol/l

   fug Rn(g) = 1.7e-13
   fug Rn_1(g) = 1.7e-13
85   fug Rn(g) = 1.7e-13
}

database = ../lln1R+gas2019P.tdb
exclude gases, minerals, colloids, sites
90 define basis-species Tcol
define basis-species Tres
define basis-species Tatm
define basis-species Tplu

95 # Criteres de temps
# -----
duration = 50 d

```

```
timestep = variable {  
  start = 0.1 h  
  maximum = 2 h  
}  
  
# Parametres de sortie  
# -----  
105 output-format = res , vtk  
  sample = 50  
  verbose = enabled  
  
110 select head , pressure in m  
  select water-content  
  select moisture  
  select effective-saturation  
  select y-flowrate in m/s  
  select permeability in m/s  
115 select Tcol , Tres , Tplu in umol/l  
  select fug{Rn(g)} in Pa  
  select fug{Rn_l(g)} in Pa  
  select fug{Ar(g)} in Pa  
  select Rn(g) , Rn(aq) in molal  
120 select Rn_l(g) , Rn_l(aq) in molal  
  select Ar(g) , Ar(aq) in molal
```

## Script n° 7 – Radon type 2 : production de radon sur toute la colonne

```

#
# -----
# Production de radon dans toute la colonne : residus 100%, steriles
# 10%
# -----

output-format = res , vtk
5 read minerals in 10m_r100_s010.dat
precision of coupling = 1e-15

# Description de l'écoulement
# -----
10 flow-regime = two-phase , stationary
unsaturated-model = van-genuchten {
    alpha = 0
    n = 0
}
15 gas-diffusion-coefficient = 1.5e-5 m2/s
# Geometrie
# -----
domain = 0,0 1,0 1,10 0,10 m

20 zone bottom { #-----residus-----
    geometry = rectangle 0.5,5 1,10 m, nodes = 1,100
    permeability = 1e-5 m/s
    dispersivity = 0.1 m
    diff. coeff = 1e-10 m2/s
25 storage = 1e-2
    porosity = 0.43
    gas-diffusion-coefficient = 1.5e-5 m2/s
    geochem = bottom
    unsaturated-model = van-genuchten { # parameters for silty loam
30     alpha = 2
        n = 1.41
    }
    head = -1 m
    millington-quirk = enabled {
35     porosity-coefficient = 2
        saturation-coefficient = 2
        gas-porosity-coefficient = 2
        gas-saturation-coefficient = 2
    }
40 water-content {
    start = 0.3
    minimum = 0.
    maximum = 0.43
}

```

```

45 }
}

#-----conditions limites-----
#-----

50 boundary top {
    coordinates = 0,10 1,10 m
    flow-condition = constant-head at -1 m
}

55 #-----geochimie-----
#-----

60 unit bottom {
    fug Rn(g) = 1e-25
    fug Ar(g) = 1e-25
    mineral decreissance_radon = 0 mol/kg, surface = 2.0985e-6 m2/1
    mineral prod_radon = 1 g/l, surface = 1 m2/g
}

65 unit top {
    fug Rn(g) = 1e-25
    fug Ar(g) = 1e-25
    mineral decreissance_radon = 0 mol/kg, surface = 2.0985e-6 m2/1
70 mineral prod_radon = 1 g/l, surface = 1 m2/g
}

define mineral decreissance_radon {
75 composition = 1 Rn(aq)
    logK = 3
    vol.weight = 1e6
}

define mineral prod_radon {
80 composition = 1 Rn(aq)
    logK = 3
    vol.weight = 1e6
}

85 extend mineral decreissance_radon {
    kinetics {
        rate = 1 mol/m2/s #correction volumique d'eau: 0.1 m3 par
            maille, 0.3 water content
        w-term, species = Rn(aq)
        area = decreissance_radon
90 }
    kinetics {

```

```

    rate = 1 mol/m2/s #correction volumique d'eau: 0.1 m3 par
                    maille, 0.3 water content
    w-term, species = Rn(g)
    area = decroissance_radon
95  }
}

extend mineral prod_radon {
  kinetics {
100   rate = -1.5e-17 mol/m2/s #rate ajuste pour eviter les
        instabilites numeriques
        surface = 1 m2/g
  }
}

105 include Rn(g)
exclude minerals, gases, gas, sites
database = chess.tdb

# Criteres de temps
110 # -----
duration = 240 days
timestep = variable {
  start = 2 h
  maximum = 10 h
115 }

# Parametres de sortie
# -----
sample = 60
120 verbose = enabled

select head in m
select water-content
select decroissance_radon
125 select prod_radon
select fug{Rn(g)}
select rate{prod_radon}
select surface{prod_radon}
select aqueous{Rn(aq)}
130 select fug{Ar(g)}
```

## Script n° 8 – Variation du facteur d'émanation selon le diamètre des grains

```
import matplotlib.pyplot as plt
import numpy as np

def Fe(x):
5     return 3*(10**(-9))*(3*x**2-(3*(10**(-9))))**2/(2*x**3)

d=np.linspace(10**(-7),5*10**(-6),1000000)

F=np.vectorize(Fe)
10 plt.title('Fe_en_fonction_du_diametre_du_grain')
plt.xlabel('Diametre_(en_m)')
plt.ylabel('Fe')
plt.plot(d,f(d))
```

## Annexe I - Résultats des simulations numériques HYTEC

Dans cette annexe, nous exposons les différentes figures obtenues avec HYTEC et le modèle hydrogéologique du site de La Ribière, comme détaillé page 22 du rapport.

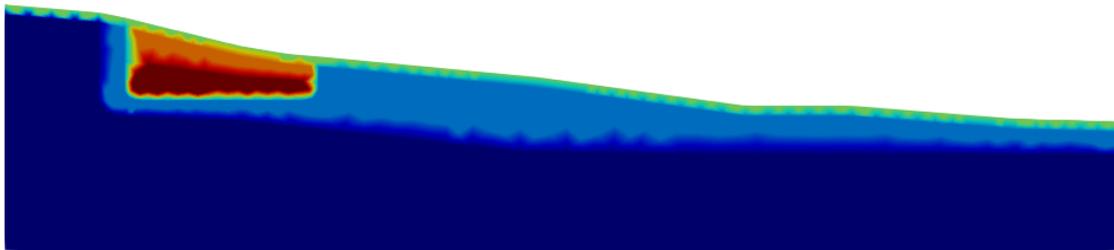


FIGURE 58 – Les différentes zones du terrain prises en compte par HYTEC

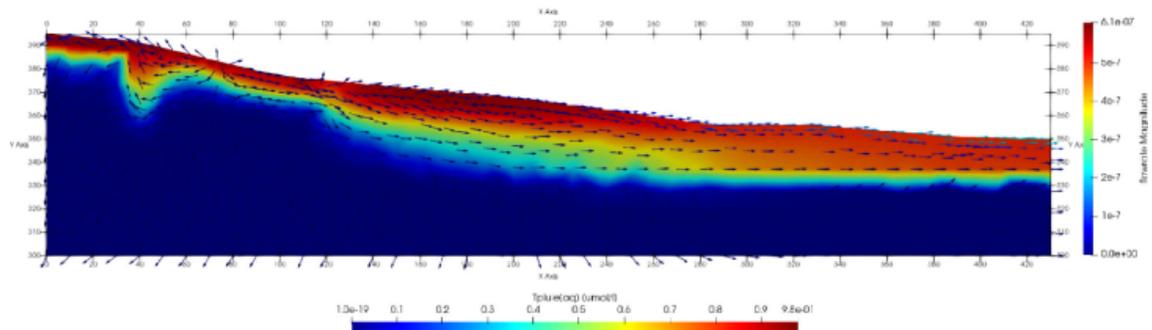


FIGURE 59 – Carte du traceur associé aux précipitations et du champ de vitesse orienté vers la rivière. Faibles précipitations.

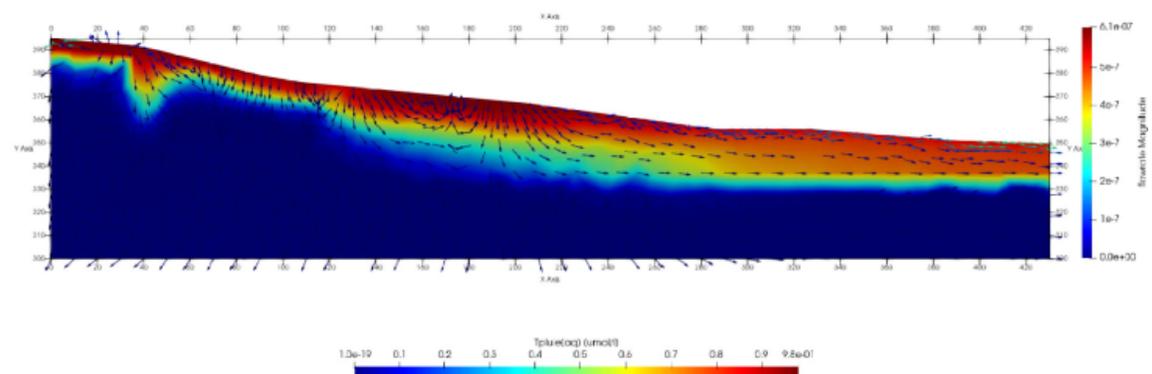


FIGURE 60 – Carte du traceur associé aux précipitations et du champ de vitesse orienté verticalement. Fortes précipitations.

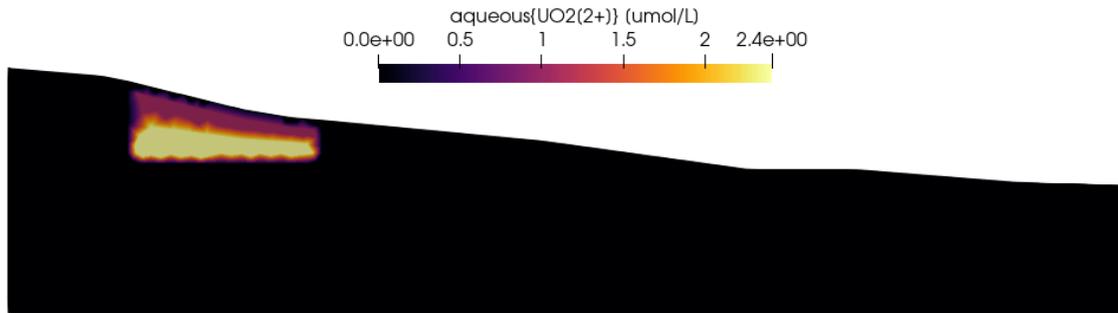


FIGURE 61 – Concentration initiale en  $UO_2^{2+}$

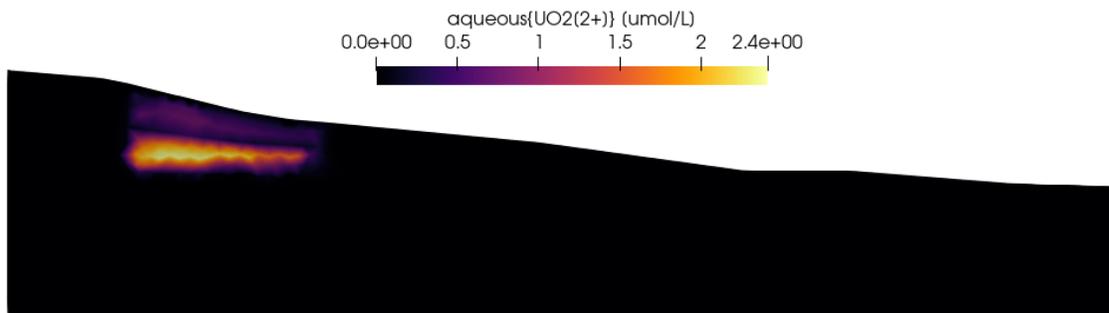


FIGURE 62 – Concentration finale en  $UO_2^{2+}$

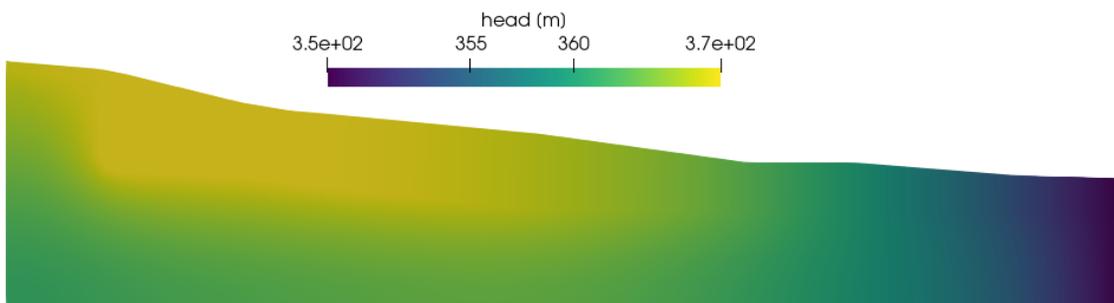


FIGURE 63 – Charge hydraulique sur le site de La Ribière à l'équilibre

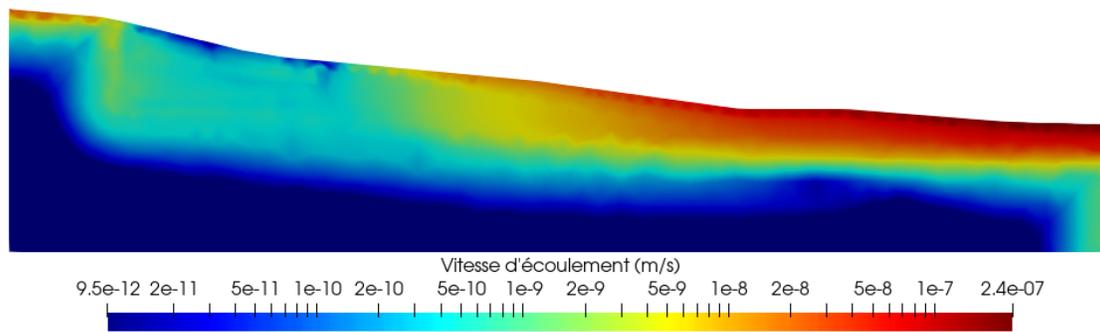


FIGURE 64 – Vitesse d'écoulement de l'eau dans le sol, en échelle logarithmique

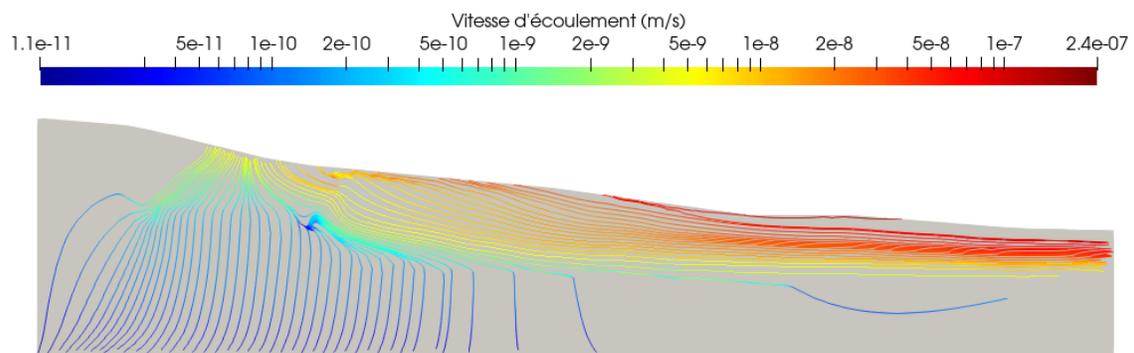


FIGURE 65 – Lignes de courant de l'écoulement de l'eau dans le sol, en échelle logarithmique

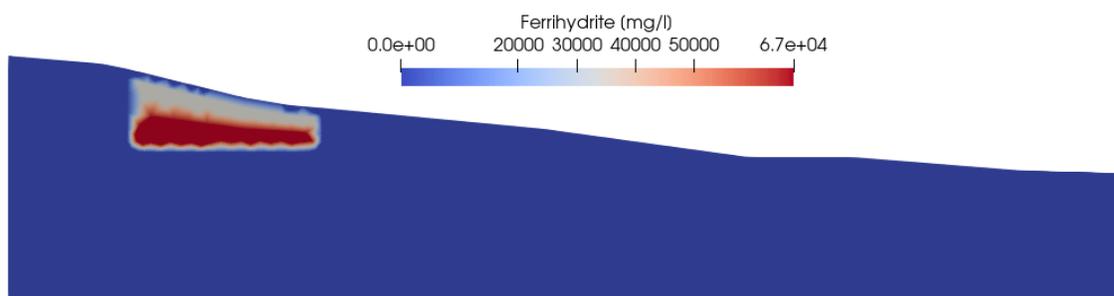


FIGURE 66 – Concentration en ferrihydrite sur le site de La Ribière

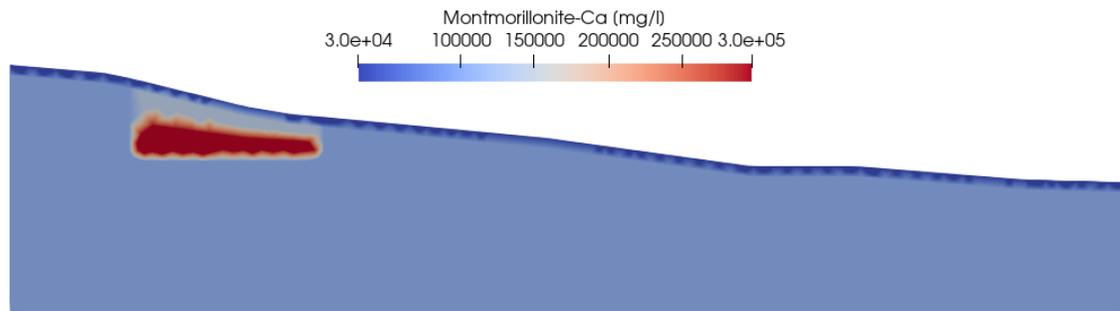


FIGURE 67 – Concentration en montmorillonite sur le site de La Ribière

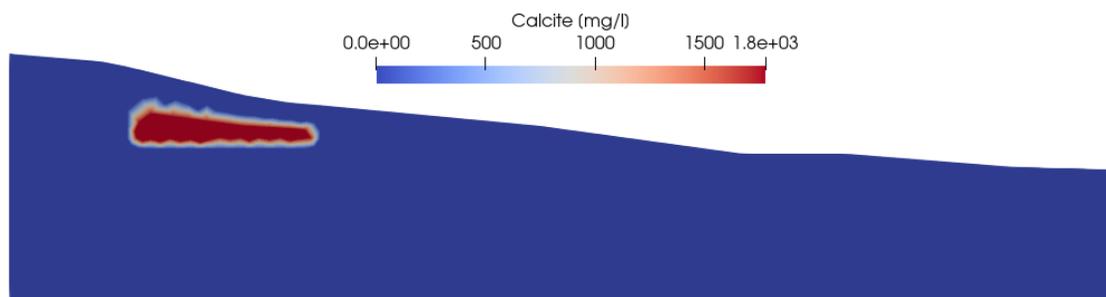


FIGURE 68 – Concentration en calcite sur le site de La Ribière au début de la simulation

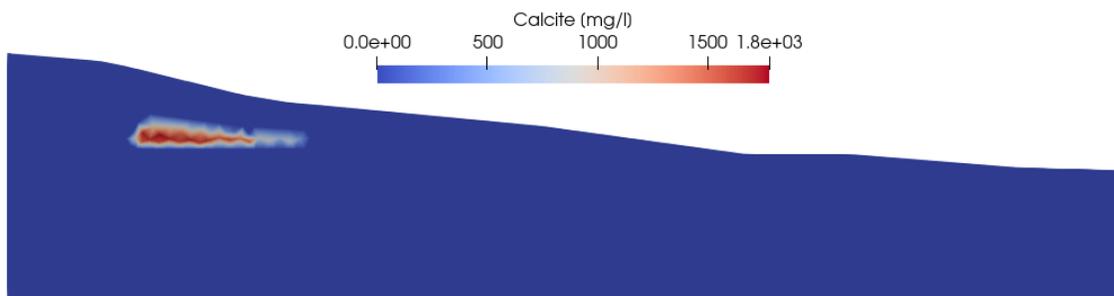


FIGURE 69 – Concentration en calcite sur le site de La Ribière à la fin de la simulation

Nous nous intéressons à l'évolution de l'autunite, minéral de formule  $\text{Ca}(\text{UO}_2)_2(\text{PO}_4)_2 \cdot 3 \text{H}_2\text{O}$  qui relâche des ions  $\text{UO}_2^{2+}$  en solution quand solubilisé par les eaux de pluies qui s'infiltrent.

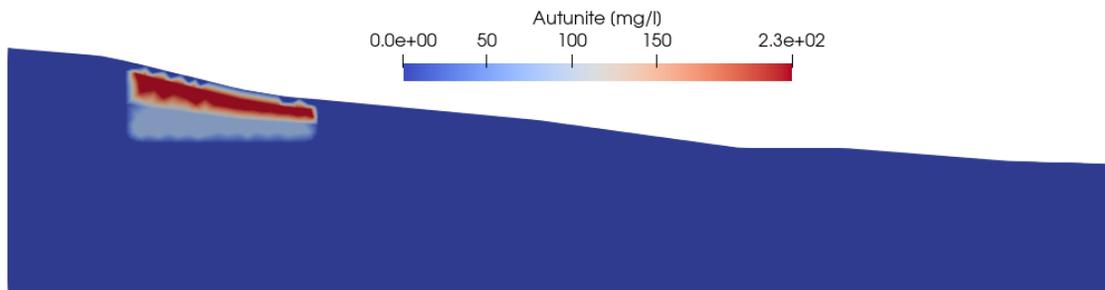


FIGURE 70 – Concentration en autunite sur le site de La Ribière

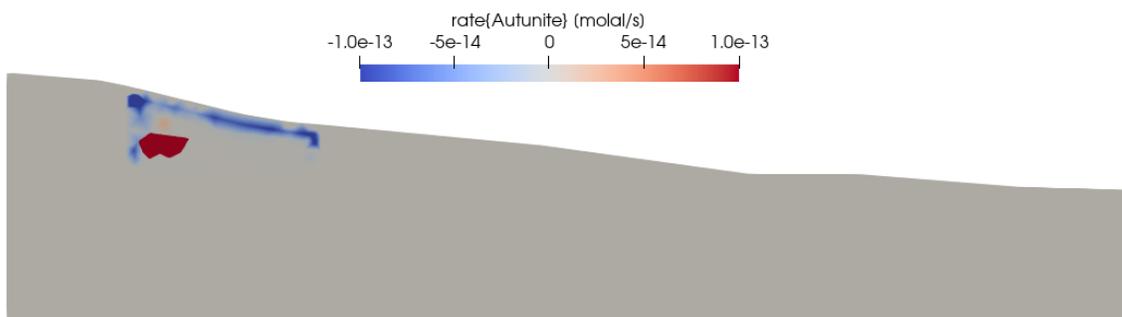


FIGURE 71 – Taux de dissolution de l'autunite à la saison des pluies

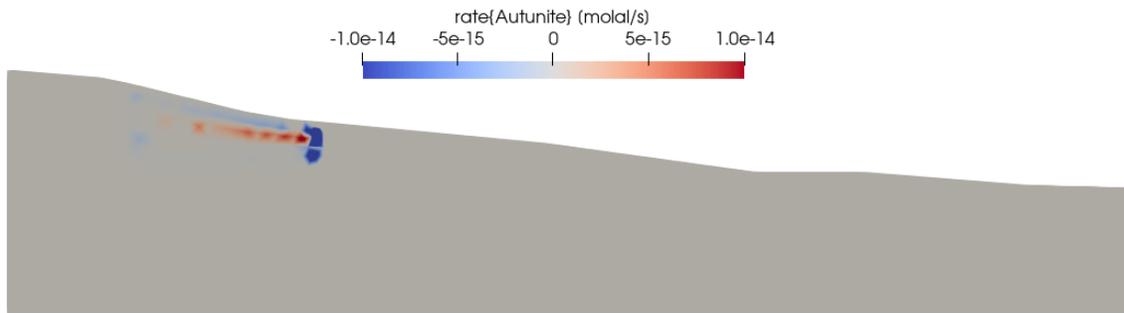


FIGURE 72 – Taux de dissolution de l'autunite à la saison sèche

La dissolution de microcline et la précipitation de montmorillonite peuvent être observées dès le début de la simulation. Ces phénomènes conjoints impliquent une baisse du pH du milieu.

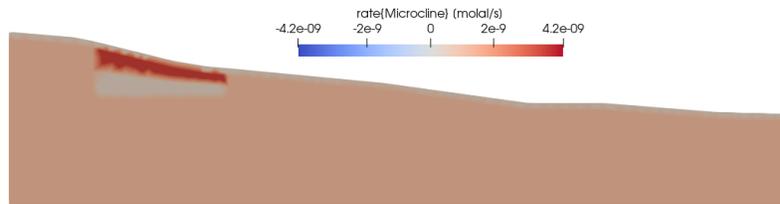


FIGURE 73 – Vitesse de réaction de la microcline à l'état initial

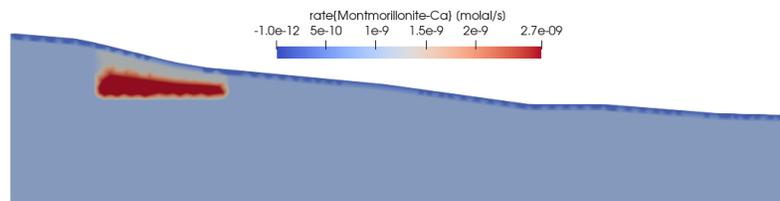


FIGURE 74 – Vitesse de réaction de la montmorillonite à l'état initial

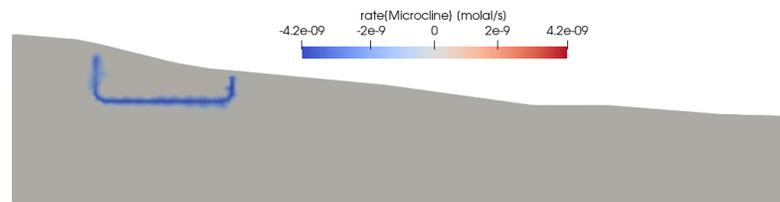


FIGURE 75 – Vitesse de réaction de la microcline sous régime de pluies fortes au début de la simulation

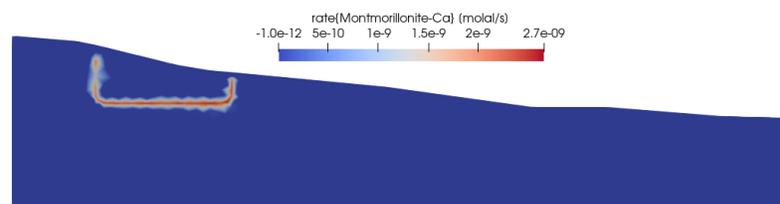


FIGURE 76 – Vitesse de réaction de la montmorillonite sous régime de pluies fortes au début de la simulation

## Annexe J - Table des figures

1	Site de Bellezane (Orano) . . . . .	2
2	Site de La Ribière (Orano) . . . . .	2
3	Les différentes phases du réaménagement d'une mine (inspiré d'un graphique d'Orano)	2
4	Le site de Bellezane avant et après le réaménagement (Orano) . . . . .	3
5	Une résine échangeuse d'ions (Orano) . . . . .	12
6	Les colonnes de résines échangeuses d'ions de l'usine de traitement de Lodève dans l'Hérault (Orano) . . . . .	12
7	Bassin de décantation (Orano) . . . . .	12
8	Modélisation 1D des blocs de résidus (en noir) et de granite (en rouge) . . . . .	18
9	Concentration aqueuse en $\text{UO}_2^{2+}$ au milieu des résidus . . . . .	18
10	Concentration en $\text{UO}_2^{2+}$ fixé au milieu des résidus . . . . .	18
11	pH de l'eau rejetée dans la rivière . . . . .	19
12	Concentration aqueuse en $\text{UO}_2^{2+}$ dans l'eau rejetée dans la rivière . . . . .	19
13	Concentration aqueuse en $\text{Fe}^{3+}$ dans l'eau rejetée dans la rivière . . . . .	19
14	Concentration aqueuse en $\text{Ba}^{2+}$ dans l'eau rejetée dans la rivière . . . . .	19
15	Concentration en autunite au milieu des résidus, pour différents pH . . . . .	20
16	Concentration aqueuse en $\text{UO}_2^{2+}$ au milieu des résidus, pour différents pH . . . . .	20
17	Concentration en $\text{UO}_2^{2+}$ fixé au milieu des résidus, pour différents pH . . . . .	20
18	Concentration aqueuse en $\text{UO}_2^{2+}$ au niveau de la rivière, pour différents pH . . . . .	20
19	Concentration aqueuse en $\text{UO}_2^{2+}$ au milieu des résidus . . . . .	21
20	Concentration en $\text{UO}_2^{2+}$ fixé au milieu des résidus . . . . .	21
21	Concentration aqueuse en $\text{UO}_2^{2+}$ dans l'eau rejetée dans la rivière . . . . .	21
22	Concentration aqueuse en $\text{Al}^{3+}$ dans l'eau rejetée dans la rivière . . . . .	21
23	pH de l'eau rejetée dans la rivière, avec et sans $\text{Al}(\text{OH})_3$ en aval des résidus . . . . .	21
24	Concentration aqueuse en $\text{UO}_2^{2+}$ dans l'eau rejetée dans la rivière, avec et sans $\text{Al}(\text{OH})_3$ en aval des résidus . . . . .	21

25	Coupe du site de la Ribière . . . . .	23
26	Évolution du traceur associé à la zone de résidus après 25 ans de simulation . . . . .	25
27	Évolution du pH au cours de la simulation . . . . .	26
28	Concentration en $\text{UO}_2^{2+}$ aqueux après 25 ans . . . . .	27
29	Concentration en $\text{UO}_2^{2+}$ fixé après 25 ans . . . . .	27
30	Carte des sites miniers uranifères en France (Orano) . . . . .	37
31	Chaîne de désintégration de l'uranium (Wikimedia Commons) . . . . .	38
32	Une tourbière pour le traitement passif des eaux (Orano) . . . . .	39
33	Profil topographique du site de La Ribière . . . . .	39
34	Modélisation des différentes zones pour le site de la Ribière . . . . .	40
35	Maillage de la zone obtenu grâce à GMSH . . . . .	40
36	Exposition moyenne de la population aux rayonnements ionisants (IRSN) . . . . .	41
37	Comparaison des normes radiologiques sur le radon (IRSN) . . . . .	42
38	Carottage dans les résidus du site de la Ribière . . . . .	43
39	Fugacité du radon avec ou sans précipitations (bleu : pluie) . . . . .	44
40	Modèle numérique : impact d'un terme source . . . . .	44
41	Écoulement dans une roche de perméabilité uniforme . . . . .	47
42	Écoulement dans une roche de perméabilité variable . . . . .	48
43	Écoulement selon la direction x dans une roche de perméabilité uniforme soumise à des précipitations . . . . .	50
44	Conservation de la charge dans une tranche élémentaire de roche . . . . .	51
45	Facteur d'émanation en fonction du diamètre des grains . . . . .	52
46	Transition vers l'état stationnaire . . . . .	56
47	Allure de la courbe de diffusion analytique en fonction du coefficient de diffusion . . . . .	56
48	Courbe de diffusion numérique en fonction des coefficients de Millington-Quirk . . . . .	59
49	Allure de la courbe de diffusion numérique en fonction de $\alpha$ , à $n = 1,56$ fixé . . . . .	60
50	Allure de la courbe de diffusion numérique en fonction de $n$ , à $\alpha = 3,6$ fixé . . . . .	60
51	Concentration en autunite au milieu des résidus . . . . .	63

52	Concentration aqueuse en $\text{Fe}^{3+}$ dans l'eau rejetée dans la rivière, pour différents pH	63
53	Concentration aqueuse en $\text{Ba}^{2+}$ dans l'eau rejetée dans la rivière, pour différents pH	63
54	Concentration en $\text{Ca}^{2+}$ fixé au milieu des résidus, pour différents pH . . . . .	63
55	Concentration en $\text{K}^{+}$ fixé au milieu des résidus, pour différents pH . . . . .	63
56	Concentration en $\text{Mg}^{2+}$ fixé au milieu des résidus, pour différents pH . . . . .	64
57	Concentration aqueuse en $\text{Al}^{3+}$ dans l'eau rejetée dans la rivière, avec et sans $\text{Al}(\text{OH})_3$ en aval des résidus . . . . .	64
58	Les différentes zones du terrain prises en compte par HYTEC . . . . .	97
59	Carte du traceur associé aux précipitations et du champ de vitesse orienté vers la rivière. Faibles précipitations. . . . .	97
60	Carte du traceur associé aux précipitations et du champ de vitesse orienté verticale- ment. Fortes précipitations. . . . .	97
61	Concentration initiale en $\text{UO}_2^{2+}$ . . . . .	98
62	Concentration finale en $\text{UO}_2^{2+}$ . . . . .	98
63	Charge hydraulique sur le site de La Ribière à l'équilibre . . . . .	98
64	Vitesse d'écoulement de l'eau dans le sol, en échelle logarithmique . . . . .	99
65	Lignes de courant de l'écoulement de l'eau dans le sol, en échelle logarithmique . . .	99
66	Concentration en ferrihydrite sur le site de La Ribière . . . . .	99
67	Concentration en montmorillonite sur le site de La Ribière . . . . .	100
68	Concentration en calcite sur le site de La Ribière au début de la simulation . . . . .	100
69	Concentration en calcite sur le site de La Ribière à la fin de la simulation . . . . .	100
70	Concentration en autunite sur le site de La Ribière . . . . .	101
71	Taux de dissolution de l'autunite à la saison des pluies . . . . .	101
72	Taux de dissolution de l'autunite à la saison sèche . . . . .	101
73	Vitesse de réaction de la microcline à l'état initial . . . . .	102
74	Vitesse de réaction de la montmorillonite à l'état initial . . . . .	102
75	Vitesse de réaction de la microcline sous régime de pluies fortes au début de la simulation . . . . .	102

76	Vitesse de réaction de la montmorillonite sous régime de pluies fortes au début de la simulation . . . . .	102
----	--	-----

## Annexe K - Liste des tableaux

1	Coût d'exploitation des différents traitements [7] . . . . .	15
2	Comparaison des valeurs simulées et mesurées . . . . .	17
3	Porosité et perméabilité dans les différentes zones modélisées . . . . .	24
4	Longueurs caractéristiques de diffusion dans l'air, les stériles et l'eau . . . . .	28
5	Valeurs de $L$ et $h$ en fonction de la saturation en gaz . . . . .	30
6	Données des précipitations effectives sur le site utilisées pour le modèle hydrogéochimique . . . . .	40
7	Teneurs élémentaires moyenne, minimale et maximale mesurées dans les échantillons du site de La Ribière [35] . . . . .	45
8	Minéraux identifiés au MEB et au DRX pour différents sites miniers, dont La Ribière (RIB) [35] . . . . .	46
9	Analogie entre hydrologie et électrocinétique . . . . .	50
10	Dose efficace en mSv/an en fonction de $F$ et $a$ pour un travailleur exposé au radon .	54
11	Valeur de $L$ en fonction de $a = b$ , $D$ et $\omega$ . . . . .	57
12	Minéraux des deux faciès et leur concentration . . . . .	62

## Annexe L - Liste des scripts

1	Modèle couplé hydrogéologique et chimique . . . . .	71
2	Modèle géochimique sans injection d'aluminium . . . . .	77
3	Modèle géochimique avec injection d'aluminium . . . . .	80
4	Modèle topographique du site de La Ribière . . . . .	84
5	Radon type 1 : modèle vertical à deux zones . . . . .	87
6	Radon type 1 : modèle vertical avec précipitations . . . . .	90
7	Radon type 2 : production de radon sur toute la colonne . . . . .	93
8	Variation du facteur d'émanation selon le diamètre des grains . . . . .	96