

Orano – BU Mines  
DSSER/DRDE

Réf : IDF-DT-009551

**Titre :** Relation entre les flux rejetés par le site de Bois Noirs-Limouzat et l'accumulation de sédiments marqués dans le lac de Saint-Clément. Rapport final.

**Mots clés :** Rejets, Sédiments, Bois Noirs-Limouzat, St -Clément, Mines, Uranium, Radium, Cu, Sn, Charrier, chlorite, Plan National de Gestion des Matières et Déchets Radioactifs, PNGMDR

**Diffusion Limitée Orano**

	Nom	Signature
Rédacteur	DESCOSTES Michael	
Vérificateurs	CROCHON Philippe	
	MASSET Olivier	
Approbateur	PIQUET Carine	

Révision n°	Date	Nature des modifications
01	03/01/2022	Première émission

## RESUME

Le Plan National de Gestion des Matières et Déchets Radioactifs (PNGMDR) prescrit à ORANO Mining de réaliser l'étude suivante de R&D : «*ORANO devra préciser la relation entre les flux rejetés et l'accumulation de sédiments marqués dans les rivières et surtout les lacs, notamment au travers d'une étude de la spéciation de l'uranium dans les eaux et de la caractérisation radiologique fine des sédiments en fonction de leur granulométrie et en fonction du régime hydraulique des cours d'eau* ». Cette étude a été appliquée au site de Bois Noirs-Limouzat (BNL) dont les eaux traitées sont rejetées dans la rivière Besbre, qui alimente en aval le lac de St-Clément. Elle a fait l'objet d'une approche pluridisciplinaire alliant recherches historiques, photographies aéroportées, géochimie, minéralogie et microbiologie en partenariat avec de nombreux acteurs académiques internationaux spécialisés dans les domaines de recherche appropriés.

Les précédents rapports d'avancement avaient permis de démontrer qu'**aucun marquage radiologique n'est observé dans les eaux du lac de St-Clément, indiquant que les rejets actuels de BNL n'ont pas d'influence sur la qualité de ces eaux**. Des prélèvements de sédiments au sein du lac réalisés en différents points, de l'amont jusqu'à l'aval ainsi qu'à différentes profondeurs ont permis de déterminer d'une part **les valeurs de bruit de fond naturel en  $^{238}\text{U}$  et  $^{226}\text{Ra}$**  et d'autre part, la présence d'un marquage radiologique historique. Les résultats ont mis en évidence l'importance des lithofaciés rencontrés dans la détermination de ce bruit de fond étant donné leur réactivité différente vis-à-vis de U et  $^{226}\text{Ra}$ . Ainsi, les valeurs d'U proposées **s'échelonnent de 4 à 156 ppm**. Quant à  $^{226}\text{Ra}$  et autres descendants de la chaîne de  $^{238}\text{U}$ , les activités correspondant au bruit de fond naturel s'échelonnent sur la gamme **52-785 Bq/kg en masse sèche**. Aucun marquage radiologique en aval du lac de St-Clément n'est constaté. Il en va de même dans les premiers 50 centimètres des sédiments en zones amont et intermédiaire. Ce résultat témoigne de **l'absence de marquage radiologique actuel lié aux activités de l'ancien site minier. Un marquage radiologique localisé sur une très faible épaisseur** de l'ordre de quelques centimètres a été confirmé dans les parties amont et intermédiaire du lac, avec un pic en  $^{238}\text{U}$  et descendants vers 50-80 cm de profondeur ( $^{238}\text{U}$  max. = 8348 Bq/kg soit 671 ppm de matière sèche ;  $^{226}\text{Ra}$  max. = 3268 Bq/kg soit 89 ppt de matière sèche). Ce marquage **est corrélé à l'historique de rejet de BNL** (maximum de rejets en U vers 1981, au moment de la fermeture et réaménagement du site, et du noyage naturel consécutif des travaux miniers souterrains). Concernant l'empreinte environnementale sur les sédiments du lac de St-Clément, liée aux rejets du site de BNL dans les années 1980, les phases porteuses identifiées de U et celles présumées pour  $^{226}\text{Ra}$  sont stables, quelles que soient les conditions d'oxydo-réduction, et les activités radiologiques dans les niveaux superficiels où vivent la majorité des invertébrés benthiques sont relativement faibles. C'est pourquoi en l'état actuel, **aucun risque radiologique n'est identifié**.

**Un niveau polymétallique** à des concentrations exceptionnelles ( $\text{Fe}_2\text{O}_3 \sim 30\%$  ; Zn, Cu et Sn  $\sim 1000$  ppm) **est également observé dans les 50 premiers centimètres des sédiments du lac de St-Clément**. Celui-ci s'est mis en place au début des années 2000 et est **constitué de résidus de traitement issus de l'ancienne mine polymétallique de Charrier** (Cu, Sn, Pb), composé de minéraux riches en Fe, Cu, Sn. La régularité de la couche polymétallique au sein des sédiments lacustres ainsi que son épaisseur de quelques centimètres, accèdent la thèse d'un transport des matériaux par voie particulière sur une période restreinte à l'occasion d'épisodes de crues ou de hautes eaux. Les résidus de traitement de la mine de Charrier proviennent d'un ancien bassin de décantation localisé en bordure de la Besbre entre le site de BNL et le lac de St-Clément. Cette infrastructure n'est jamais mentionnée sur les documents et les

Relation entre les flux rejetés par le site de Bois Noirs-Limouzat et l'accumulation de sédiments marqués dans le lac de Saint-Clément. Rapport final.	03/01/2022	Page : 2/22
Auteur : Michaël DESCOSTES	<b>Diffusion Limitée Orano</b>	

plans retrouvés dans les archives mais a pu être identifiée grâce à une étude de photographies aéroportées historiques. **L'ensemble de ces résultats permet donc d'identifier l'origine des apports sédimentaires du lac de St-Clément et de démontrer que le marquage polymétallique n'est en aucun cas imputable aux rejets de la mine de BNL.**

L'interprétation initiale des **caractérisations microbiologiques et des eaux interstitielles** originellement prévues pour mieux contraindre la mobilité à long terme de l'U et du  $^{226}\text{Ra}$  au sein des sédiments du lac de St-Clément était rendue caduque par la présence du marquage polymétallique, sans pour autant changer les conclusions sur l'absence de marquage radiologique contemporain et la stabilité à long terme du marquage historique constaté.

Ainsi, même si la présence de concentrations importantes en métaux issus du marquage polymétallique de la mine de Charrier rend difficile toute interprétation approfondie de **l'identification des populations microbiennes au sein des échantillons du lac de St-Clément**, elle **permet toutefois de confirmer l'occurrence de conditions anoxiques dès 50 cm de profondeur** en accord avec les précédentes caractérisations minéralogiques et géochimiques, **favorables à la faible mobilité des métaux et de l'uranium** bien plus insolubles qu'en conditions oxiques et oxydantes.

**Les profils de concentrations en U et  $^{226}\text{Ra}$  dissout au sein des eaux interstitielles des sédiments indiquent des faibles valeurs tant en amont qu'en aval avec des valeurs inférieures à 2  $\mu\text{g/L}$  et 1  $\text{Bq/L}$  respectivement**, mais plus élevées que celles mesurées au sein des eaux du lac (0,2  $\mu\text{g/L}$  et 0,02  $\text{Bq/L}$  respectivement). Les variations verticales des teneurs observées en U et  $^{226}\text{Ra}$  demeurent également faibles et témoignent des facteurs concomitants que sont l'évolution des conditions géochimiques en fonction de la profondeur, telle que mise en lumière par les précédentes caractérisations géochimiques et microbiologiques ; la présence du marquage radiologique historique vers 80 cm de profondeur en zone amont ; et enfin la variation des facies lithologiques observés au sein des sédiments. **Les faibles concentrations en U et  $^{226}\text{Ra}$  observées sont expliquées selon plusieurs mécanismes géochimiques traduisant la dynamique de diagénèse des sédiments. L'ensemble de ces équilibres géochimiques garantit dans le temps des faibles concentrations en  $^{226}\text{Ra}$  et U au sein des eaux interstitielles des sédiments du lac de Saint-Clément, ainsi que tout risque de remobilisation.**

Aussi, **ces nouveaux résultats confirment** les précédentes conclusions quant à **l'absence de marquage radiologique actuel lié à l'activité de la mine de BNL** mais également **la faible mobilité de l'U et du  $^{226}\text{Ra}$  issus du marquage radiologique historique** localisé en profondeur sur quelques centimètres au sein des sédiments du lac de St-Clément. Ces résultats confirment enfin **l'absence également de risque d'exposition radiologique**. C'est pourquoi, étant donné la stabilité dans le temps des phases porteuses de U et  $^{226}\text{Ra}$  sans perturbation des sédiments, **il est recommandé de laisser en place les sédiments faiblement radiomarqués**, ou d'éviter leur remaniement au-delà de 50 cm de profondeur. Le déplacement des sédiments marqués est une opération comportant un risque fort de remobilisation des radionucléides. Ces recommandations ne considèrent pas les concentrations élevées en métaux issues du marquage polymétallique provenant de la mine de Charrier.

**Mots-clés : Rejets, Sédiments, Bois Noirs-Limouzat, St-Clément, Mines, Uranium, Radium, Cu, Sn, Charrier, chlorite, Plan National de Gestion des Matières et Déchets Radioactifs, PNGMDR.**

Relation entre les flux rejetés par le site de Bois Noirs-Limouzat et l'accumulation de sédiments marqués dans le lac de Saint-Clément. Rapport final.	03/01/2022	Page : 3/22
Auteur : Michaël DESCOSTES	<b>Diffusion Limitée Orano</b>	

## SOMMAIRE

1	Introduction .....	6
2	Rappels des principaux résultats.....	8
2.1	Marquages radiologique et polymétallique au sein des sédiments du lac de Saint Clément et mobilité à long terme de l'U et du <sup>226</sup> Ra .....	8
2.2	Influence actuelle de la mine de Bois Noirs Limouzat sur les eaux et sédiments du lac de Saint Clément.....	11
3	Présentation des résultats de caractérisation des populations microbiennes .....	12
3.1	Objectifs scientifiques.....	12
3.2	Méthodologie.....	12
3.3	Résultats .....	13
4	Présentation des résultats de mesure en U et <sup>226</sup> Ra des eaux interstitielles par DGT des sédiments du lac de Saint Clément .....	15
4.1	Objectifs scientifiques.....	15
4.2	Méthodologie.....	15
4.3	Résultats .....	15
5	Conclusions / Recommandations .....	17
5.1	Implications des nouveaux résultats présentés au sein de ce rapport sur la mobilité de l'U et du <sup>226</sup> Ra au sein des sédiments du lac de Saint Clément .....	17
5.2	Gestion des sédiments du lac de Saint-Clément .....	18
5.2.1	Scénario 1 : aucune perturbation des sédiments.....	18
5.2.2	Scénario 2 : curage/dragage des sédiments .....	19
5.2.3	Scénario 3 : baisse du niveau d'eau ou vidange du lac .....	20
5.2.4	Scénario 4 : augmentation du niveau d'eau ou crue importante .....	20
5.2.5	Conclusion .....	20
6	Références .....	21

Relation entre les flux rejetés par le site de Bois Noirs-Limouzat et l'accumulation de sédiments marqués dans le lac de Saint-Clément. Rapport final.	03/01/2022	Page : 4/22
Auteur : Michaël DESCOSTES	<b>Diffusion Limitée Orano</b>	

## LISTE DES FIGURES ET TABLES

Figure 1 : Cliché MEB d'une pyrite framboïdale délimitant les zones réduites des sédiments de Saint-Clément localisée entre 40 et 70 cm de profondeur (Phrommavanh *et al.*, 2014). \_\_\_\_\_ 10

Figure 2 : Cliché MEB et cartographie élémentaire d'un phosphate U-Cu (type méta-torbernite) localisé au niveau du pic radiologique traduisant la stabilité de l'U au sein des sédiments de Saint-Clément (Phrommavanh *et al.*, 2014). \_\_\_\_\_ 11

Figure 3 : Embranchements bactériens déterminés au sein des sédiments du lac de Saint Clément. \_\_ 13

Figure 4 : Profils verticaux de concentrations en U et <sup>226</sup>Ra au sein des eaux interstitielles des sédiments du lac de Saint Clément déterminées par DGT (rouge : zone aval ; bleu : zone amont). La cote 0 indique l'interface entre les eaux du lac et le toit des sédiments. \_\_\_\_\_ 16

Tableau 1 : Affiliation taxonomique des communautés bactériennes déterminées au sein des sédiments du lac de Saint Clément. .... 14

Relation entre les flux rejetés par le site de Bois Noirs-Limouzat et l'accumulation de sédiments marqués dans le lac de Saint-Clément. Rapport final.	03/01/2022	Page : 5/22
Auteur : Michaël DESCOSTES	<b>Diffusion Limitée Orano</b>	

# 1 Introduction

Ce rapport s'inscrit dans le cadre des demandes du Plan National de Gestion des Matières et Déchets Radioactifs (PNGMDR), et plus particulièrement de l'étude portant sur la relation entre les flux rejetés par le site des Bois Noirs-Limouzat et l'accumulation des sédiments marqués dans le lac de Saint-Clément.

A cette fin, une étude pluridisciplinaire alliant recherches historiques, photographies aéroportées, géochimie, minéralogie et microbiologie a été développée en partenariat avec de nombreux acteurs académiques internationaux spécialisés dans les domaines de recherche appropriés (Université de Poitiers, Université de Grenade, Université de Bruxelles, CREGU-Université de Lorraine). Quant aux analyses radiologiques des sédiments de Saint-Clément, elles ont été réalisées par EICHRON, laboratoire d'analyses indépendant disposant de la certification COFRAC et agrément de l'ASN.

Les précédents rapports d'avancement fournis par ORANO (Phrommavanh *et al.*, 2014 ; Descostes *et al.*, 2017) avaient permis de conclure sur l'absence de marquage radiologique actuel du lac de Saint Clément. Le marquage radiologique ponctuel en  $^{226}\text{Ra}$  et  $^{238}\text{U}$  observé très localement vers plusieurs dizaines de centimètres de profondeur ( $^{238}\text{U}$  max. = 8348 Bq/kg soit 671 ppm de matière sèche ;  $^{226}\text{Ra}$  max. = 3268 Bq/kg soit 89 ppt – *i.e.*  $89 \times 10^{-6}$  ppm de matière sèche) était inhérent à un marquage historique corrélé à l'historique de rejet de BNL (maximum de rejets en U vers 1981, au moment de la fermeture et réaménagement du site, et du noyage naturel consécutif des travaux miniers souterrains). Les nombreuses caractérisations géochimiques et minéralogiques avaient permis de conclure à la stabilité des phases porteuses de ces radioéléments et à l'absence de leur remobilisation dans le temps.

La découverte d'un marquage polymétallique (Fe, Cu, Zn, Sn) au sein des sédiments inhérent au réaménagement de la mine de Charrier, localisée entre le site des Bois Noirs Limouzat et le lac de Saint-Clément avait rendu caduque l'interprétation initiale des caractérisations microbiologiques et des eaux interstitielles au sein de ces mêmes sédiments, sans pour autant changer les conclusions sur l'absence de marquage radiologique contemporain et la stabilité à long terme du marquage historique constaté.

L'ASN, dans son avis 2021-AV-0374 (ASN, 2021 , rappelle « *que les résultats des caractérisations microbiologiques et des analyses des eaux interstitielles des sédiments du lac de Saint Clément, nécessaires à l'évaluation des processus mis en jeu lors de l'accumulation sédimentaire en aval des sites, n'ont pas été transmis, et ont été reportés par Orano Mining à fin 2020, par lettres du 10 décembre 2018 et du 19 décembre 2019 susvisées ; que ces éléments sont indispensables à la prise de décision sur la gestion de ces sédiments* » et recommande ainsi « *qu'Orano Mining finalise l'étude portant sur la relation entre les flux rejetés par le site des Bois Noirs-Limouzat et l'accumulation des sédiments marqués dans le lac de Saint-Clément. L'ASN recommande qu'Orano Mining examine ensuite l'opportunité d'études analogues pour d'autres sites, en fonction du contexte hydrogéologique ou de particularités locales, et en précise le calendrier.* ».

Relation entre les flux rejetés par le site de Bois Noirs-Limouzat et l'accumulation de sédiments marqués dans le lac de Saint-Clément. Rapport final.	03/01/2022	Page : 6/22
Auteur : Michaël DESCOSTES	<b>Diffusion Limitée Orano</b>	

Ce rapport présente comme demandé les résultats des caractérisations microbiologiques et des analyses des eaux interstitielles des sédiments du lac de Saint Clément. L'opportunité d'études analogues pour d'autres sites sera précisée dans un document ultérieur.

Le présent rapport est donc articulé selon les chapitres suivants :

- Rappel des principaux résultats acquis précédemment et présentés dans les précédents rapports d'étape (Phrommavanh *et al.*, 2014 ; Descostes *et al.*, 2017).
- Présentation des résultats de caractérisation des populations microbiennes au sein des sédiments du lac de Saint Clément.
- Présentation des résultats de mesure en U et  $^{226}\text{Ra}$  des eaux interstitielles des sédiments du lac de Saint Clément.
- Conclusion portant sur la mobilité à long terme de l'U et du  $^{226}\text{Ra}$  au sein des sédiments du lac de Saint Clément et risque radiologique associé.

Relation entre les flux rejetés par le site de Bois Noirs-Limouzat et l'accumulation de sédiments marqués dans le lac de Saint-Clément. Rapport final.	03/01/2022	Page : 7/22
Auteur : Michaël DESCOSTES	<b>Diffusion Limitée Orano</b>	

## 2 Rappels des principaux résultats

### 2.1 Marquages radiologique et polymétallique au sein des sédiments du lac de Saint Clément et mobilité à long terme de l'U et du <sup>226</sup>Ra

Les résultats précédemment fournis par ORANO (Phrommavanh *et al.*, 2014 ; Descostes *et al.*, 2017) avaient permis de démontrer que :

- i) Aucun marquage radiologique n'était observé dans les eaux du lac de St-Clément, indiquant que les rejets actuels de BNL n'ont pas d'influence sur la qualité de ces eaux. Les concentrations mesurées en U et <sup>226</sup>Ra sont de l'ordre de 1 µg/L et de 0,03 Bq/L respectivement, soit comparable au bruit de fond naturel en milieu granitique (Lartigue *et al.*, 2020).
- ii) Des prélèvements de sédiments du lac de Saint Clément ont été réalisés en différents points, de l'amont jusqu'à l'aval ainsi qu'à différentes profondeurs afin de déterminer d'une part les valeurs de bruit de fond naturel en <sup>238</sup>U et <sup>226</sup>Ra lié au lessivage des roches granitiques dans le bassin versant (profondeurs correspondant à des enregistrements sédimentaires avant exploitation de la mine des Bois Noirs Limouzat) et la présence d'un éventuel marquage radiologique actuel ou historique.
- iii) Les résultats ont mis en évidence l'importance de la caractérisation minéralogique dans la détermination de ce bruit de fond. En effet, trois lithofaciès (sables, argiles et boues) ont été observés visuellement et confirmés par caractérisations chimiques et minéralogiques. Etant donné leur réactivité différente vis-à-vis de U, l'accumulation radiologique naturelle est donc propre à chacun d'eux. Ainsi, les valeurs suivantes d'U sont proposées : ~4 ppm (≈ 50 Bq/kg m.s.) dans les sables, ~65 ppm (≈ 800 Bq/kg m.s.) dans les boues, ~156 ppm (≈ 2000 Bq/kg m.s.) dans les argiles. Quant à <sup>226</sup>Ra et autres descendants de la chaîne de <sup>238</sup>U, les activités correspondant au bruit de fond naturel s'échelonnent sur la gamme 52-785 Bq/kg en masse sèche.
- iv) Aucun marquage radiologique en aval du lac de Saint Clément n'est constaté. Il en va de même dans les premiers 50 centimètres des sédiments en zones amont et intermédiaire avec des valeurs en <sup>238</sup>U et <sup>226</sup>Ra comparables aux valeurs du bruit de fond naturel déterminées sur des échantillons antérieurs à l'activité de la mine des Bois Noirs Limouzat. Ce résultat témoigne de l'absence de marquage radiologique actuel lié aux activités du site minier.
- v) Un marquage radiologique localisé sur une très faible épaisseur de l'ordre de quelques centimètres a été confirmé dans les parties amont et intermédiaire du lac, avec un pic en <sup>238</sup>U et descendants vers 50-60 cm de profondeur (<sup>238</sup>U max. = 8348 Bq/kg soit 671 ppm de matière sèche ; <sup>226</sup>Ra max. = 3268 Bq/kg soit 89 ppt – i.e. 89 x 10<sup>-6</sup> ppm de matière sèche). Ce marquage est corrélé à l'historique de rejet de BNL (maximum de rejets en U vers 1981, au moment de la fermeture et réaménagement du site, et du noyage naturel consécutif des travaux miniers souterrains). L'utilisation des déséquilibres radioactifs couplée à des

Relation entre les flux rejetés par le site de Bois Noirs-Limouzat et l'accumulation de sédiments marqués dans le lac de Saint-Clément. Rapport final.	03/01/2022	Page : 8/22
Auteur : Michaël DESCOSTES	<b>Diffusion Limitée Orano</b>	



observations minéralogiques indiquent que cet apport historique est principalement sous forme détritique pour U et  $^{226}\text{Ra}$  (uraninite, zircon, monazite, barytine) et dissoute pour l'U.

- vi) Il est possible de distinguer en fonction de la profondeur l'apparition de conditions anoxiques et réductrices dès 40 cm au travers de témoins minéralogiques tels que des pyrites framboïdales néoformées d'origine biotique (Cf. Figure 1).
- vii) Les phases minérales porteuses d'U (détritiques et néoformées) sont stables, aussi bien en conditions réductrices (e.g. monazites, zircons, uraninite, mais également ningyoite tel que rapportés par Morin *et al.*, 2016 et Stetten *et al.*, 2018) qu'oxydantes du fait des teneurs naturelles en phosphates et de la présence de cuivre (e.g. méta-torbernite ; Cretaz *et al.*, 2013 ; Cf. Figure 2).
- viii) Concernant l'empreinte environnementale sur les sédiments du lac de Saint-Clément, liée aux rejets du site de BNL dans les années 1980, les phases porteuses identifiées de U et celles présumées pour  $^{226}\text{Ra}$  sont stables (car très insolubles), quelles que soient les conditions d'oxydo-réduction (uraninite et ningyoite en conditions réduites, méta-torbernite en conditions oxydantes, zircon et monazite dans les deux cas), et les activités radiologiques dans les niveaux superficiels (où vivent la majorité des invertébrés benthiques) sont relativement faibles (165-700 Bq/kg pour la fraction de  $^{238}\text{U}$  détritique et 0-1350 Bq/kg pour la fraction d'origine dissoute). C'est pourquoi en l'état actuel, aucun risque radiologique n'est identifié.
- ix) Un niveau polymétallique à des concentrations exceptionnelles ( $\text{Fe}_2\text{O}_3 \sim 30\%$  ; Zn, Cu et Sn  $\sim 1000$  ppm) est également observé dans les 50 premiers centimètres des sédiments du lac de St-Clément. Celui-ci semble jouer un rôle significatif dans la rétention de l'uranium. Ce niveau polymétallique s'est mis en place au début des années 2000. Il est constitué de résidus de traitement de granulométrie très fine issus de l'ancienne mine polymétallique de Charrier (Cu, Sn, Pb). La mine de Charrier fut en activité jusqu'en 1953 ; un remodelage de la verse à résidus de traitement fut réalisé en 1999. Ces résidus sont composés de minéraux riches en Fe (magnétite, hématite), Cu (chalcopryrite), Sn (cassitérite), mais également de chlorite ferrifère de type chamosite. La cristalochimie des chlorites prélevées dans la Besbre entre le site de BNL et le lac de St-Clément permet de démontrer également l'origine du marquage polymétallique. La chamosite apparait comme un traceur géochimique et minéralogique de la mine de Charrier puisqu'elle n'est retrouvée que dans la couche polymétallique des sédiments du lac de St-Clément. Les autres chlorites caractérisées au niveau du site de BNL mais également dans les niveaux inférieurs des sédiments du lac de St-Clément, y compris celui présentant un marquage radiologique, sont plus riches en Mg.
- x) La régularité de la couche polymétallique au sein des sédiments du lac de St-Clément ainsi que son épaisseur de quelques centimètres, accèdent la thèse d'un transport des matériaux par voie particulière sur une période restreinte à l'occasion d'épisodes de crues ou de hautes eaux. Les résidus de traitement de la mine de Charrier proviennent d'un ancien bassin de décantation localisé en bordure de la Besbre entre le site de BNL et le lac de St-Clément. Cette infrastructure n'est

Relation entre les flux rejetés par le site de Bois Noirs-Limouzât et l'accumulation de sédiments marqués dans le lac de Saint-Clément. Rapport final.	03/01/2022	Page : 9/22
Auteur : Michaël DESCOSTES	<b>Diffusion Limitée Orano</b>	

jamais mentionnée sur les documents et les plans retrouvés dans les archives mais a pu être identifiée au moyen de photographies aéroportées et de reconnaissance sur place.

- xi) L'ensemble de ces résultats permet donc d'identifier l'origine des apports sédimentaires du lac de Saint-Clément et de démontrer que le marquage polymétallique n'est en aucun cas imputable aux rejets de la mine de BNL.

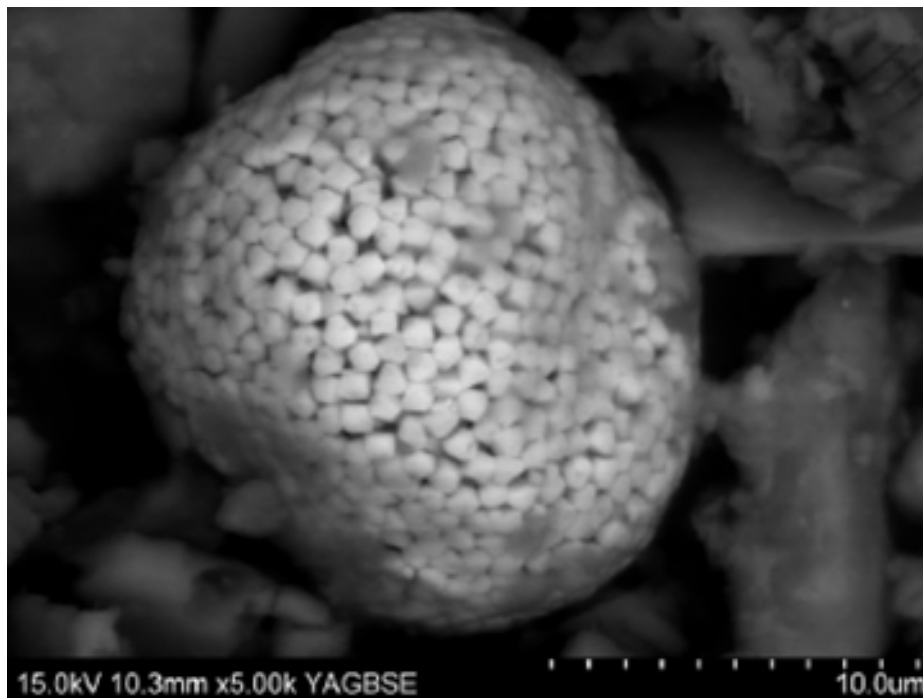


Figure 1 : Cliché MEB d'une pyrite framboïdale délimitant les zones réduites des sédiments de Saint-Clément localisée entre 40 et 70 cm de profondeur (Phrommavanh *et al.*, 2014).

Relation entre les flux rejetés par le site de Bois Noirs-Limouzat et l'accumulation de sédiments marqués dans le lac de Saint-Clément. Rapport final.	03/01/2022	Page : 10/22
Auteur : Michaël DESCOSTES	Diffusion Limitée Orano	

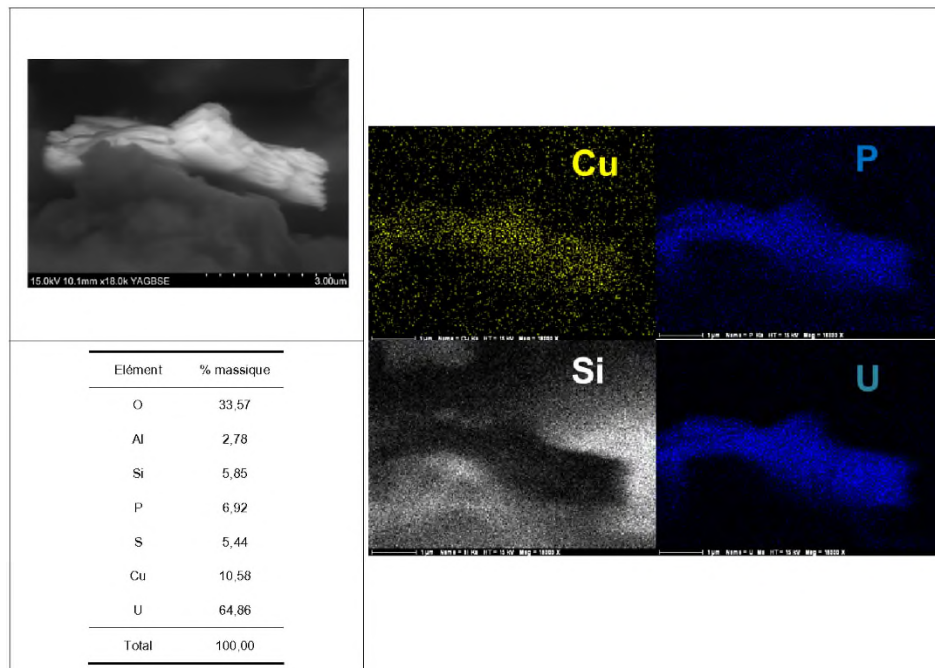


Figure 2 : Cliché MEB et cartographie élémentaire d'un phosphate U-Cu (type méta-torbernite) localisé au niveau du pic radiologique traduisant la stabilité de l'U au sein des sédiments de Saint-Clément (Phrommavanh *et al.*, 2014).

## 2.2 Influence actuelle de la mine de Bois Noirs Limouzat sur les eaux et sédiments du lac de Saint Clément

Les précédents résultats rappelés précédemment et les données issues du suivi environnemental de la mine de Bois Noirs Limouzat, indiquent que les concentrations en U et  $^{226}\text{Ra}$  mesurées en aval du site minier à l'entrée du lac de Saint Clément sont respectivement de l'ordre de  $1\ \mu\text{g/L}$  et de  $0,02\ \text{Bq/L}$ , soit du bruit de fond naturel en milieu granitique (Lartigue *et al.*, 2020). En outre, il a été démontré au travers de mesures par ultrafiltration et par DGT (Diffusive in Gradient Thin films) que le transport de ces éléments chimiques à l'échelle des traces et ultra-traces était totalement sous forme dissoute, limitant ainsi toute accumulation actuelle de ces radioéléments au sein des sédiments du lac de Saint Clément. Les seules variations significatives observées sur la composition des eaux concernant la présence des résidus de traitement de la mine de Charrier en contact des eaux de la Besbre concernant les teneurs en Ba (de l'ordre de  $50\ \mu\text{g/L}$ ) et Sr (de l'ordre de  $30\ \mu\text{g/L}$ ) observées en entrée du lac.

Les teneurs en  $^{238}\text{U}$  et  $^{226}\text{Ra}$  observées au toit des sédiments du lac de Saint Clément couplées aux précédentes caractérisations minéralogiques et géochimiques confirment l'absence d'apport en  $^{238}\text{U}$  et  $^{226}\text{Ra}$  autre que celui lié au bruit de fond géochimique naturel.

Relation entre les flux rejetés par le site de Bois Noirs-Limouzat et l'accumulation de sédiments marqués dans le lac de Saint-Clément. Rapport final.	03/01/2022	Page : 11/22
Auteur : Michaël DESCOSTES	Diffusion Limitée Orano	

## 3 Présentation des résultats de caractérisation des populations microbiennes

### 3.1 Objectifs scientifiques

L'objectif initial de ces caractérisations était d'apporter des contraintes sur les conditions géochimiques prévalentes au sein des sédiments. En effet, en fonction de la nature et de l'activité des populations microbiennes présentes, il est possible de remonter notamment aux conditions d'anoxie, qui sont favorables à l'immobilisation de l'uranium sous forme tétravalente. Comme rappelé précédemment, l'observation de pyrites framboïdales néoformées dès 40 cm de profondeur, témoignent de la présence de conditions anoxiques, et l'activité de populations bactériennes sulfato-réductrices (Cf. Figure 1).

Toutefois, la présence d'un marquage polymétallique au sein des sédiments lié aux activités de la mine de Charrier sur les 50 premiers centimètres, découvert *a posteriori*, rend cette démarche caduque, ou tout du moins sur les profondeurs concernées par ce marquage. En effet, les populations microbiennes observées dans ce niveau polymétallique sont des populations *a fortiori* en équilibre avec le milieu dans lequel elles évoluent et témoignent plus de la présence de fortes concentrations en métaux que des conditions d'oxydo-réduction. C'est pourquoi, même si des concentrations élevées en métaux ont été observées au-delà de 50 cm (plus de 3% en Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ; plusieurs centaines de ppm en Cu, Zn et Sn), seul l'échantillon prélevé le plus en profondeur a fait l'objet de caractérisations microbiologiques approfondies dont les résultats sont présentés ci-après.

### 3.2 Méthodologie

Deux échantillons de sédiments ont été prélevés au sein d'une même passe de sondage selon les protocoles déjà présentés dans les rapports précédents (Phrommavanh *et al.*, 2014) : le premier a été prélevé entre 0 et 50 cm de profondeur, le second renseignant la seconde partie du sondage entre 50 et 100 cm de profondeur. Ils ont été conservés en conditions stériles et à faible température jusqu'au laboratoire pour analyse. Seul le second échantillon, à savoir localisé sous le marquage polymétallique a fait l'objet de caractérisations microbiologiques poussées. Les détails des techniques d'analyses et de caractérisation ont déjà été fournies dans le cadre de précédentes publications scientifiques (Sanchez-Castro *et al.*, 2017 ; Jroundi *et al.*, 2020 ; Martinez Rodriguez *et al.*, 2020). Un rappel simplifié des conditions opératoires est fourni ci-dessous.

Afin d'isoler le plus grand nombre de souches bactériennes, des cultures en milieu anaérobie et aérobie ont été déployées au travers de milieux de culture adaptés. Seules les cultures en milieu aérobie ont fourni des résultats concluants. Le milieu de culture aérobie, comme il sera vu plus loin, n'est pas incompatible avec la présence de populations bactériennes anaérobiques. La teneur importante en

Relation entre les flux rejetés par le site de Bois Noirs-Limouzat et l'accumulation de sédiments marqués dans le lac de Saint-Clément. Rapport final.	03/01/2022	Page : 12/22
Auteur : Michaël DESCOSTES	<b>Diffusion Limitée Orano</b>	

métaux des échantillons semble avoir fortement limité la croissance bactérienne dans les milieux de culture anaérobie. Une fois la croissance des populations bactériennes assurée pendant 6 semaines, les différents isolats bactériens ont été identifiés par séquençage ADN après extraction et amplification de l'ARN 16s. Toutes les séquences obtenues ont été comparées et identifiées avec les bases de données internationales. Lorsque cela était possible, une description et affiliation taxonomique par famille, genre et espèces a été effectuée.

### 3.3 Résultats

Les analyses indiquent la présence de 12 embranchements bactériens différents (Cf. Figure 3). Les membres du phylum *Proteobacteria* sont prédominants (31%), suivis des phylums *Chloroflexi* (20%) et *Firmicutes* (18%) ; tous les autres phylums (*Acidobacteria*, *Actinobacteria*, *Bacteroidetes*, *Chlorobi*, *Elusimicrobia*, *Planctomycetes*, *Spirochaetes*, *Synergistetes* et *Verrucomicrobia*) représentant chacun moins de 7%.

Près de 45 unités taxonomiques ont pu être identifiées, et classées lorsque cela était possible jusqu'au genre (Cf. Tableau 1). Les unités taxonomiques majoritaires déterminées sont par ordre décroissant, OTU-13 (13%), apparenté d'un point de vue phylogénétique à l'ordre *Dehalogenimonas*, OTU-33 (11%), identifié comme *Desulfobacca* sp., et OTU-16 (8%) identifié comme *Clostridium* sp. Toutes les autres unités taxonomiques identifiées ne représentent pas plus de 5% des analyses.

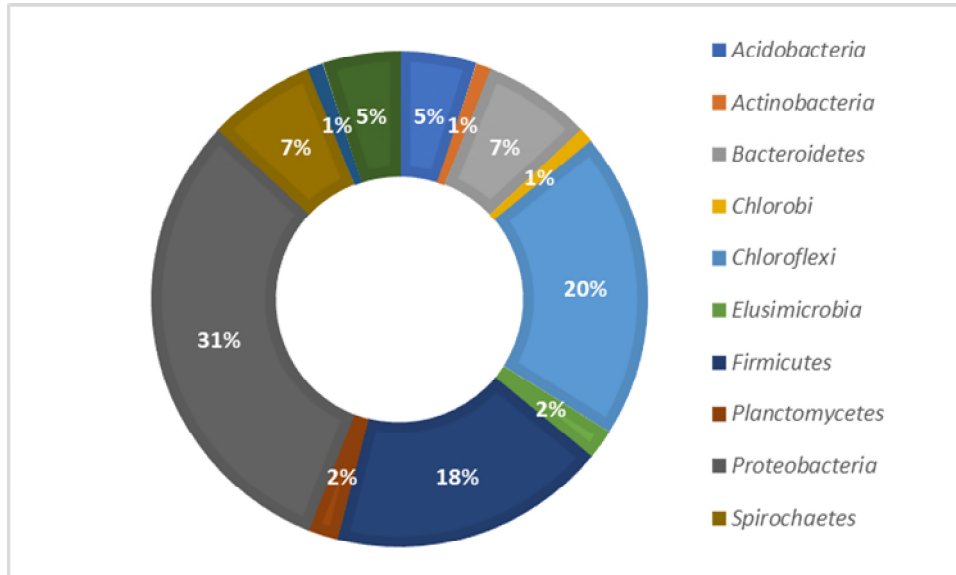


Figure 3 : Embranchements bactériens déterminés au sein des sédiments du lac de Saint Clément.

**Tableau 1 : Affiliation taxonomique des communautés bactériennes déterminées au sein des sédiments du lac de Saint Clément.**

Unité taxonomique	Phylum	Classe/Sous-classe	Ordre	Famille	Genre	Nombre de clones		
OTU-1	Acidobacteria	Acidobacteria_Gp18	Gp18			4		
OTU-2		Acidobacteria_Gp3	Bryobacter			1		
OTU-3	Actinobacteria	Actinobacteria	Actinobacteridae	Actinomycetales	Micromonosporineae	1		
OTU-4	Bacteroidetes	Bacteroidetes_incertae_se	Prolixibacter			3		
OTU-5		Bacteroidia	Bacteroidales	Mariniliabiaceae	Alkaliflexus	1		
OTU-6		Flavobacteria	Flavobacteriales	Cryomorphaeae	Cryomorpha Wandonia	1 2		
OTU-7								
OTU-8	Chlorobi	Ignavibacteria	Ignavibacteriales	Ignavibacteriaceae	Ignavibacterium	1		
OTU-9	Chloroflexi	Anaerolineae	Anaerolineales	Anaerolineaceae	Bellilinea	2		
OTU-10					Leptolinea	1		
OTU-11					Levilinae	1		
OTU-12					Longilinea	3		
OTU-13		Dehalococcoidetes	Dehalogenimonas			13		
OTU-14	Elusimicrobia	Elusimicrobia	Elusimicrobiales	Elusimicrobiaceae	Elusimicrobium	2		
OTU-15	Firmicutes	Bacilli	Bacillales	Pasteuriaceae	Pasteuria	1		
OTU-16		Clostridia		Clostridiales	Clostridiaceae 1	Clostridium sensu stricto	8	
OTU-17					Proteiniclasticum	3		
OTU-18					Clostridiales_Incertae_Sedis_III	Tepidanaerobacter	1	
OTU-19					Incertae_Sedis_III	Fervidicola	1	
OTU-20					Peptococcaceae 2	Cryptanaerobacter	1	
OTU-21					Thermoanaerobacterales	Syntrophaceticus	1	
OTU-22			Thermodesulfobiaceae	Thermodesulfobium	2			
OTU-23		Planctomycetes	Planctomycetacia	Planctomycetales	Planctomycetaceae	Schlesneria	1	
OTU-24			Phycisphaerae	Phycisphaerales	Phycisphaeraeae	Phycisphaera	1	
OTU-25	Proteobacteria	Alphaproteobacteria	Alphaproteobacteria_incertae_sedis	Rhizomicrobium		1		
OTU-26		Rhizobiales	Bruceellaceae	Daeguia	1			
OTU-27		Betaproteobacteria	Rhodocyclales	Rhodocyclaceae	Georgfuchsia	1		
OTU-28		Deltaproteobacteria		Desulfobacteriales	Desulfobacteraceae	Desulfobacterium	1	
OTU-29					Desulfatirhabdium	2		
OTU-30					Desulforegula	2		
OTU-31					Desulfocurvus	1		
OTU-32					Desulfurellales	Desulfurellaceae	Hippea	1
OTU-33							Desulfobacca	11
OTU-34		Syntrophobacteriales		Syntrophaceae	Syntrophus	5		
OTU-35					Smithella	1		
OTU-36					Desulfomonile	1		
OTU-37			Syntrophorhabdaceae	Syntrophorhabdus		1		
OTU-38	Epsilonproteobacteria		Campylobacteriales	Helicobacteraceae	Wolinella	1		
OTU-39				Campylobacteraceae	Dehalospirillum	1		
OTU-40	Spirochaetes	Spirochaetes	Spirochaetales	Spirochaetaceae	Spirochaeta	5		
OTU-41				Treponema	2			
OTU-42	Synergistetes	Synergistia	Synergistales	Synergistaceae	Aminiphilus	1		
OTU-43	Verrucomicrobia	Verrucomicrobiae	Verrucomicrobiales	Verrucomicrobiaceae	Verrucomicrobium	3		
OTU-44					Akkermansia	1		
OTU-45					Subdivision5			

## 4 Présentation des résultats de mesure en U et <sup>226</sup>Ra des eaux interstitielles par DGT des sédiments du lac de Saint Clément

### 4.1 Objectifs scientifiques

La mesure des concentrations en U et <sup>226</sup>Ra dissout au sein des eaux interstitielles des sédiments de Saint Clément, mise en regard des précédentes observations géochimiques et minéralogiques, permet d'apporter des contraintes sur la mobilité de ces éléments. Devant la difficulté d'obtenir ces informations par des méthodes ne perturbant pas les équilibres géochimiques, une mesure *in situ* a été privilégiée au travers de la mise en place de capteurs passifs de type DGT (Diffusive in Gradient Thin films). La réalisation de ces mesures a été effectuée avant la découverte du niveau polymétallique (Fe, Cu, Sn, Zn) lié aux activités de la mine de Charrier, rendant donc cette démarche également caduque car les équilibres eau/roche sont dans ce cas bien plus difficiles à contraindre. Les résultats sont toutefois présentés dans la suite de ce chapitre.

### 4.2 Méthodologie

Le protocole de préparation des DGT sédiment est décrit par Leermakers *et al.* (2005 ; 2016) et Gillan *et al.* (2012). Les DGT ont été placés en deux localisations du lac, à savoir en zones amont et aval. Les profondeurs investiguées vont jusqu'à 1 mètre environ, en fonction de la lithologie rencontrée.

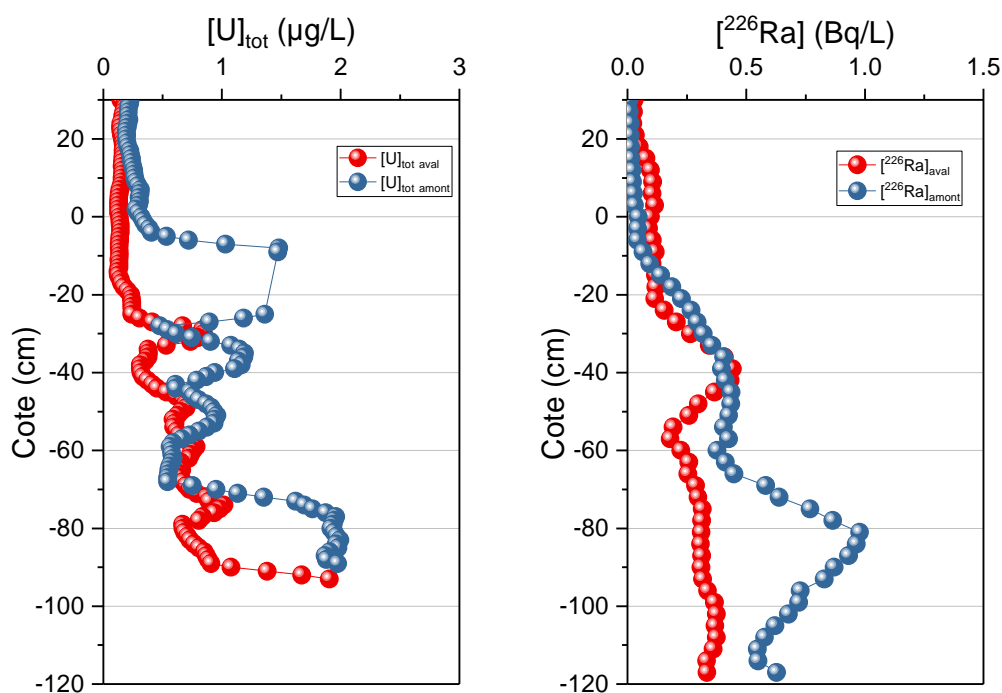
### 4.3 Résultats

Les résultats concernant les profils verticaux de concentrations en U et <sup>226</sup>Ra au sein des eaux interstitielles des sédiments du lac de Saint Clément sont représentés en Figure 4. Les profils obtenus pour les zones amont et aval sont comparées également au sein de la même figure. Les concentrations mesurées au-dessus du toit des sédiments sont également représentées. L'ensemble des valeurs enregistrées demeure très faible avec des valeurs en U et <sup>226</sup>Ra inférieures à 2 µg/L et 1 Bq/L respectivement, mais plus élevées que celles mesurées au sein des eaux du lac (0,2 µg/L et 0,02 Bq/L respectivement). Ces différences témoignent de l'enrichissement en métaux au sein des sédiments lors de diagénèse avec d'une part, une réduction des teneurs en eau par compaction, et d'autre part une réactivité chimique exacerbée par l'activité microbienne à laquelle se rajoute dans le cas présent la présence du niveau polymétallique.

Les valeurs d'U entre les zones amont et aval sont sensiblement les mêmes, avec une légère augmentation vers 10 cm (1,5 µg/L) et 80 cm (2 µg/L) de profondeur au niveau de la zone amont. En zone aval, les teneurs les plus élevées sont également reportées vers 80 cm de profondeur (2 µg/L). Les activités en <sup>226</sup>Ra en zone aval reste sensiblement constantes en fonction de la profondeur comprises entre 0,2 et

Relation entre les flux rejetés par le site de Bois Noirs-Limouzat et l'accumulation de sédiments marqués dans le lac de Saint-Clément. Rapport final.	03/01/2022	Page : 15/22
Auteur : Michaël DESCOSTES	<b>Diffusion Limitée Orano</b>	

0,3 Bq/L, avec toutefois un maximum à 0,4 Bq/L localisé vers 40 cm de profondeur. Les activités mesurées en amont suivent le même profil vertical qu'en zone aval, avec cependant un maximum détecté à 80 cm de profondeur (~1 Bq/L). Les concentrations maximales relatives observées au sein des sédiments localisés en zone amont du lac de Saint Clément, sont à des profondeurs sensiblement plus basses que celles où les pics radiologiques ont été déterminés lors des analyses des échantillons solides, comprises entre également vers 50 et 80 cm de profondeur. Ce léger décalage peut être expliqué notamment par une différence de profondeur du marquage radiologique entre les deux points d'observation (sondage carotté non remanié et dispositif DGT).



**Figure 4 : Profils verticaux de concentrations en U et  $^{226}\text{Ra}$  au sein des eaux interstitielles des sédiments du lac de Saint Clément déterminées par DGT (rouge : zone aval ; bleu : zone amont). La cote 0 indique l'interface entre les eaux du lac et le toit des sédiments.**



## 5 Conclusions / Recommandations

### 5.1 Implications des nouveaux résultats présentés au sein de ce rapport sur la mobilité de l'U et du $^{226}\text{Ra}$ au sein des sédiments du lac de Saint Clément

L'identification de plusieurs populations microbiennes (embranchements *Acidobacteria*, *Clostridia*, *Chlorobi*, *Firmicutes*, *Proteobacteria*) au sein des échantillons du lac de Saint-Clément permet de mettre en évidence des conditions anoxiques (voir par exemple Barns *et al.*, 2007 ; Coral *et al.*, 2018 ; Gao and Francis, 2008 ; Gupta, 2013 ; Jroundi *et al.*, 2020 ; Li *et al.*, 2011 ; Muyzer and Stams, 2008), que ce soit au travers de populations microbiennes connues pour ne fonctionner qu'en conditions anoxiques, ou de populations microbiennes participant à la réduction des principales espèces électroactives en milieu naturel (sulfate, nitrate, métaux de transition et plus particulièrement uranium). Même si la présence de concentrations importantes en métaux issus du marquage polymétallique de la mine de Charrier rend difficile toute interprétation approfondie, ces résultats sont cohérents avec les précédentes caractérisations minéralogiques et géochimiques. Ils indiquent la présence d'un milieu anoxique en profondeur, favorable à la faible mobilité des métaux et de l'uranium bien plus insolubles qu'en conditions oxydantes. En ce qui concerne le  $^{226}\text{Ra}$ , les phases porteuses de  $^{226}\text{Ra}$  précédemment identifiées (barytine, zircon, monazite, minéraux argileux et matière organique) sont également stables dans ces conditions et en surcapacité pour piéger le  $^{226}\text{Ra}$  éventuellement libéré (Ballini *et al.*, 2020 ; Besancon *et al.*, 2020 ; Bordelet *et al.*, 2018 ; Robin *et al.*, 2017) et ne seront pas soumises à une dissolution.

Les profils de concentrations en U et  $^{226}\text{Ra}$  dissout au sein des eaux interstitielles des sédiments du lac de Saint Clément indiquent des faibles valeurs tant en amont qu'en aval avec des valeurs inférieures à 2 µg/L et 1 Bq/L respectivement. Les variations verticales des teneurs observées en U et  $^{226}\text{Ra}$  demeurent également faibles et témoignent de plusieurs facteurs concomitants :

- i. l'évolution des conditions géochimiques en fonction de la profondeur, telle que mise en lumière par les précédentes caractérisations géochimiques et microbiologiques ;
- ii. de la présence du marquage radiologique historique entre 50 et 80 cm de profondeur en zone amont ;
- iii. et de la variation des facies lithologiques observés au sein des sédiments (argileux, sableux, riche en matière organique).

Les faibles concentrations en U observées peuvent être expliquées selon plusieurs mécanismes géochimiques traduisant la dynamique de diagénèse des sédiments : équilibres de solubilité avec des phases minérales que ce soit en conditions oxydantes (minéraux phosphatés de type métatorbernite ; Cretaz *et al.*,

Relation entre les flux rejetés par le site de Bois Noirs-Limouzat et l'accumulation de sédiments marqués dans le lac de Saint-Clément. Rapport final.	03/01/2022	Page : 17/22
Auteur : Michaël DESCOSTES	<b>Diffusion Limitée Orano</b>	

2013) qu'en conditions réductrices (uraninite et ningyoite ; Stetten *et al.*, 2018), mais également équilibres de sorption sur les minéraux détritiques et néoformés déjà présents au sein de la colonne sédimentaire (minéraux argileux, pyrite, oxy-hydroxydes de fer) ainsi que sur la matière organique constitutive des sédiments (voir par exemple Bordelet *et al.*, 2018 ; Descostes *et al.*, 2010 ; Lahrouch *et al.*, 2021 ; Schlegel and Descostes, 2009 ; Tayal *et al.*, 2020). En ce qui concerne les teneurs en  $^{226}\text{Ra}$  des eaux interstitielles, elles sont également tributaires des mêmes dynamiques géochimiques, avec, notamment, une rétention gouvernée par les minéraux déjà présents au sein de la colonne sédimentaire (minéraux argileux, oxy-hydroxydes de fer, barytine) ainsi que sur la matière organique constitutive des sédiments (voir par exemple Besançon *et al.*, 2020 ; Bordelet *et al.*, 2018 ; Robin *et al.*, 2017 ; Sajih *et al.*, 2014).

L'ensemble de ces équilibres géochimiques garantit dans le temps des faibles concentrations en  $^{226}\text{Ra}$  et U au sein des eaux interstitielles des sédiments du lac de Saint-Clément, ainsi que tout risque de remobilisation.

Aussi, ces nouveaux résultats confirment :

- i) Les précédentes conclusions quant à l'absence de marquage radiologique actuel lié à l'activité de la mine des Bois Noirs Limouzat.
- ii) La faible mobilité de l'U et du  $^{226}\text{Ra}$  issus du marquage radiologique historique localisé en profondeur sur quelques centimètres au sein des sédiments du lac de Saint Clément ;
- iii) Enfin, l'absence également de risque d'exposition radiologique.

## 5.2 Gestion des sédiments du lac de Saint-Clément

Comme indiqué précédemment, la faible intensité du marquage radiologique localisé sur quelques centimètres de profondeur dans les sédiments localisés en amont et milieu du lac de Saint Clément s'accompagne d'une faible mobilité actuelle et future de l'U et du  $^{226}\text{Ra}$ . C'est pourquoi, les recommandations vis-à-vis de la gestion des sédiments du lac de Saint-Clément basées sur différents scénarios d'évolution naturelle et d'opération anthropique proposées antérieurement demeurent et sont rappelées ci-dessous (Phrommavanh *et al.*, 2014).

Ces recommandations ne considèrent pas les concentrations élevées en métaux issues du marquage polymétallique provenant de la mine de Charrier.

### 5.2.1 Scénario 1 : aucune perturbation des sédiments

Dans un scénario où les sédiments ne sont pas perturbés, les conditions géochimiques actuelles seront maintenues. Ceci permet de conserver la stabilité des phases porteuses de U et  $^{226}\text{Ra}$  dans les

Relation entre les flux rejetés par le site de Bois Noirs-Limouzat et l'accumulation de sédiments marqués dans le lac de Saint-Clément. Rapport final.	03/01/2022	Page : 18/22
Auteur : Michaël DESCOSTES	<b>Diffusion Limitée Orano</b>	

sédiments et ainsi de ne pas mobiliser ces radioéléments vers les eaux du lac. En effet, les seuls facteurs naturels d'évolution *in situ*, à savoir (i) l'évolution ascendante du front d'oxydo-réduction liée à la réduction naturelle progressive des sédiments de surface initialement oxydés et (ii) les phénomènes de bioturbation, n'ont aucun effet significatif sur la stabilité de ces phases porteuses.

L'évolution ascendante du front d'oxydo-réduction n'a aucun effet sur les phases détritiques porteuses de traces de U et  $^{226}\text{Ra}$  (zircons et monazites), ni sur les uraninites d'origine détritique et précipitées (et ningyoite) *in situ*. Elle favorise même l'immobilisation de U au sein des sédiments, par la dissolution des phosphates d' $\text{U}^{(\text{VI})}$ -Cu au profit de la précipitation d'uraninite  $\text{U}^{(\text{IV})}\text{O}_2$  (et de ningyoite le cas échéant). Concernant la bioturbation, celle-ci n'a aucun effet sur le comportement de U et  $^{226}\text{Ra}$  car son influence est limitée aux 2 premiers cm des sédiments (*i.e.* localisation actuelle du niveau riche en métaux Sn, Cu, Zn et Fe). A terme, l'activité radiologique des sédiments superficiels, est relativement faible (165-700 Bq/kg pour la fraction de  $^{238}\text{U}$  détritique et 0-1350 Bq/kg pour la fraction d'origine dissoute), ce qui permet d'écarter actuellement tout transfert radiologique vers le biotope du lac (comme en atteste la diversité biologique mise en évidence par EDF-SA Gestion de l'Environnement, 2002).

La solution du déplacement des sédiments marqués n'est pas sans conséquence et peut s'avérer plus impactante (mise en solution des contaminants et donc migration encore plus en aval via les eaux, telle que cela a pu être observé lors du curage de Saint-Pardoux dans le Limousin) que de ne conserver en fond de lac, les sédiments stables géochimiquement.

### 5.2.2 Scénario 2 : curage/dragage des sédiments

En zone aval, en cas d'accumulation trop importante des sédiments localisés près des vannes de fond, des purges de courte durée peuvent être réalisées. Cette opération entraîne l'évacuation de sédiments et d'eau en aval du barrage. Toutefois, étant donné les faibles activités radiologiques mesurées dans les sédiments en zone aval et dans les eaux du lac, ce type de purge n'entraîne aucun impact radiologique en aval du barrage. Concernant les zones intermédiaire et amont, où les sédiments sont marqués, d'une part en métaux (Sn, Cu, Zn, Fe) dans les 50 premiers cm, et d'autre part radiologiquement entre 50 et 80 cm, les opérations de dragage sont susceptibles de remobiliser certains éléments. Parmi les différentes techniques de dragage pour les retenues d'eau (dragage mécanique ou hydraulique à aspiration), il est nécessaire de limiter autant que faire se peut, la remobilisation des sédiments marqués. Ceci requiert un dragage limité aux couches superficielles, idéalement au-dessus du niveau sédimentaire riche en métaux, pour ne pas perturber les niveaux sous-jacents en conditions réduites.

Relation entre les flux rejetés par le site de Bois Noirs-Limouzat et l'accumulation de sédiments marqués dans le lac de Saint-Clément. Rapport final.	03/01/2022	Page : 19/22
Auteur : Michaël DESCOSTES	<b>Diffusion Limitée Orano</b>	



### 5.2.3 Scénario 3 : baisse du niveau d'eau ou vidange du lac

Une baisse du niveau d'eau du lac, suffisamment importante pour entraîner la mise à l'air des sédiments, comporte un risque important d'oxydation des sédiments et donc de remobilisation de U (Eagling *et al.*, 2013). Même si les teneurs en fer particulièrement élevées induiront la précipitation d'hydroxydes de fer sur lesquels U peut s'adsorber, ces particules/colloïdes sont susceptibles de migrer.

### 5.2.4 Scénario 4 : augmentation du niveau d'eau ou crue importante

Le bassin versant de la Besbre est régulièrement soumis à des crues subites de forte intensité. D'après les observations actuelles de la colonne sédimentaire en zone amont (près du cône de déjection de la Besbre), aucun impact n'a été observé jusqu'à présent sur la stabilité des niveaux radiologiquement marqués. Cependant, un apport important de matériaux charriés par la Besbre est susceptible de remanier la couche sédimentaire superficielle riche en métaux et surtout d'entraîner des nouveaux apports de métaux provenant de l'ancien bassin de décantation de la mine de Charrier localisé en bordure de la Besbre entre le site de BNL et le lac de St-Clément.

### 5.2.5 Conclusion

La localisation et l'identification des phases porteuses de U et  $^{226}\text{Ra}$  dans les sédiments de Saint-Clément permettent de prévoir le comportement de ces radioéléments en fonction de différents scénarios opérationnels ou d'évolution naturelle de ce lac. Actuellement, le marquage radiologique est limité aux zones amont et intermédiaire, et localisé vers 50 à 80 cm de profondeur. Aucun marquage radiologique n'est observé dans les sédiments superficiels, ni dans les eaux du lac. Ainsi, étant donné la stabilité dans le temps des phases porteuses de U et  $^{226}\text{Ra}$  sans perturbation des sédiments (*i.e.* conservation des conditions réductrices), il est recommandé d'éviter leur remaniement au-delà de 40-50 cm de profondeur (*i.e.* début des conditions réductrices et du pic radiologique). Par conséquent, le déplacement des sédiments marqués est une opération comportant un risque de remobilisation des radionucléides et donc de migration encore en aval via les eaux (comme cela a pu être observé lors du curage du lac de Saint-Pardoux).

Relation entre les flux rejetés par le site de Bois Noirs-Limouzat et l'accumulation de sédiments marqués dans le lac de Saint-Clément. Rapport final.	03/01/2022	Page : 20/22
Auteur : Michaël DESCOSTES	<b>Diffusion Limitée Orano</b>	

## 6 Références

- ASN (2021). Avis no 2021-AV-0374 de l'Autorité de sûreté nucléaire du 4 février 2021 sur les études relatives à la gestion des résidus de traitement miniers d'uranium et des stériles miniers d'uranium remises en application du plan national de gestion des matières et des déchets radioactifs 2016-2018, en vue de l'élaboration du cinquième plan national de gestion des matières et des déchets radioactifs.
- Ballini, M.; Chautard, C.; Nos, J.; Phrommavanh, V.; Beaucaire, C.; Besancon, C.; Boizard, A.; Cathelineau, M.; Peiffert, C.; Vercouter, T.; Vors, E.; Descostes, M. (2020). A multi-scalar study of the long-term reactivity of uranium mill tailings (Bellezane, France). *Journal of Environmental Radioactivity* **218**, 106223.
- Barns, S.M.; Cain, E.C.; Sommerville, L.; Kuske, C.R. (2007). *Acidobacteria* phylum sequences in uranium-contaminated subsurface sediments greatly expand the known diversity within the phylum. *Appl Environ Microbiol.* **73**(9), 3113–3116.
- Besancon, C.; Chautard, C.; Beaucaire, C.; Savoye, S.; Sardini, P.; Gérard, M.; Descostes, M. (2020). The role of Barite in the post-mining stabilization of Radium-226: a modeling contribution for Sequential Extractions. *Minerals* **10**, 497-518.
- Bordelet, G.; Beaucaire, C.; Descostes, M.; Phrommavanh, V. (2018). Chemical reactivity of natural peat towards U and Ra. *Chemosphere* **202**, 651-660.
- Coral, T.; Descostes, M.; de Boissezon, H.; Bernier-Latmani, R.; de Alencastro, F.; Rossi, P. (2018). Microbial communities associated with uranium in-situ recovery mining process are related to acid mine drainage assemblages. *Science of the Total Environment* **628-629**, 26-35.
- Cretaz, F.; Szenknect, S.; Clavier, N.; Vitorge, P.; Mesbah, A.; Descostes, M.; Poinssot, C.; Dacheux, N. (2013). Solubility properties of synthetic and natural meta-torbernite. *Journal of Nuclear Materials* **442**, 195-207.
- Descostes, M.; Schlegel, M.L.; Eglizaud, N.; Descamps, F.; Miserque, F.; Simoni, E. (2010). Uptake of Uranium and trace elements onto pyrite (FeS<sub>2</sub>). *Geochimica et Cosmochimica Acta* **74**, 1551-1562.
- Descostes, M.; Wattinne, A.; Guiollard, P.C.; Patrier, P. (2017). Relation entre les flux rejetés par le site de Bois Noirs-Limouzat et l'accumulation de sédiments marqués dans le lac de Saint-Clément. Second rapport d'avancement. Rapport technique AREVA Mines AMS-DOP-DRD-NT-0101.
- Eagling, J.; Worsfold, P.J.; Blake, W.H.; Keith-Roach, M.J. (2013). Influence of sediment redox conditions on uranium mobilisation during saline intrusion. *Chemical Geology*, **357**, 158-163.
- EDF - SA Gestion de l'Environnement (2002). Aménagement hydroélectrique sur la Besbre – Demande de renouvellement de concession – Etude d'impact. Rapport Technique.
- Gao, W.; Francis, A.J. (2008) Reduction of Uranium(VI) to Uranium(IV) by *Clostridia*. *Appl Environ Microbiol.* **74**, 4580–4584.
- Gillan, D.C.; Baeyens, W.; Bechara, R.; Billon, G.; Denis, K.; Grosjean, P.; Leermakers, M., Lesven, L.; Pede, A.; Sabbe, K.; Gao, Y. (2012). Links between bacterial communities in marine sediments and trace metal geochemistry as measured by in situ DET/DGT approaches. *Marine Pollution Bulletin* **64**, 353-362.
- Gupta, R.S. (2013). Molecular markers for photosynthetic bacteria and insights into the origin and spread of photosynthesis. *Advances in Botanical Research* **66**, 37-66.
- Jroundi, F.; Descostes, M.; Povedano-Priego, C.; Grizard, P.; Sanchez-Castro, I.; Merroun, M.L. (2020). Profiling native aquifer bacteria in a uranium roll-front deposit and their role in biogeochemical cycle dynamics: Insights regarding in situ recovery mining. *Science of the Total Environment* **721**, 137758.
- Lahrouch, F.; Guo, N.; Hunault, M.; Solari, P.L.; Descostes, M.; Gerard, M. (2021). Uranium retention on iron oxyhydroxides in post mining environmental conditions. *Chemosphere* **264**, 128473.
- Lartigue, J.E.; Charasse, B.; Reilé, B.; Descostes, M. (2020). Aqueous inorganic Uranium speciation in European stream waters from the FOREGS dataset using geochemical modelling and determination of U bioavailability baseline. *Chemosphere* **251**, 126302.

Relation entre les flux rejetés par le site de Bois Noirs-Limouzat et l'accumulation de sédiments marqués dans le lac de Saint-Clément. Rapport final.	03/01/2022	Page : 21/22
Auteur : Michaël DESCOSTES	Diffusion Limitée Orano	

- Leermakers, M.; Gao, Y.; Gabelle, C.; Lojen, S.; Ouddane, B.; Wartel, M.; Baeyens, W. (2005). Determination of high resolution pore water profiles of trace metals in sediments of the Rupel river (Belgium) using DET (Diffusive Equilibrium in Thin Films) and DGT (Diffusive Gradients in Thin Films) Techniques. *Water, Air, and Soil Pollution* **66**, 265-286.
- Leermakers, M.; Phrommavanh, V.; Drozdak, J.; Gao, Y.; Nos, J.; Descostes, M. (2016). DGT as a useful monitoring tool for radionuclides and trace metals in environments impacted by uranium mining: case study of the Sagnes wetland in France. *Chemosphere* **155**, 142-151.
- Li, W.; Liu, N.; Cai, L.L.; Jiang, J.L.; Chen, J.M. (2011). Reduction of Fe(III) chelated with citrate in an NOx scrubber solution by *Enterococcus* sp. FR-3. *Bioresour Technol.* **102**, 3049-3054
- Martinez Rodriguez, P.; Sanchez Castro, I.; Descostes, M.; Merroun, M.L. (2020). Draft genome sequence data of Microbacterium maritopicum strain Be9 isolated from uranium-mill tailings porewaters. *Data in Brief* **31**, 105732.
- Morin, G.; Mangeret, A.; Othmane, G.; Stetten, L.; Seder-Colomina, M.; Brest, J.; Ona-Nguema, G.; Bassot, S.; Courbet C.; Guillevic, J.; Thouvenot, A.; Mathon, O.; Proux, O.; Bargar, J.R. (2016). Mononuclear U(IV) complexes and ningyoite as major uranium species in lake sediments. *Geochemical Perspectives Letters* **2**, 95-105.
- Muyzer, G.; Stams, A.J.M. (2008). The ecology and biotechnology of sulphate-reducing bacteria. *Nature Reviews. Microbiology* **6**, 441–454.
- Phrommavanh, V.; Descostes, M.; Nos, J.; de Boissezon, H.; Reile, B. (2014). Relation entre les flux rejetés par le site de Bois Noirs-Limouzat et l'accumulation de sédiments marqués à Saint-Clément. Rapport technique AREVA Mines AMS-DEXP-DRD-RT-0044.
- Robin, V.; Tertre, E.; Beaucaire, C.; Descostes, M.; Regnault, O. (2017). Experimental data and assessment of predictive modeling for radium ion exchange on swelling clay minerals with a tetrahedral charge. *Applied Geochemistry* **85**, 1-9.
- Sajih, M.; Bryan, N.D.; Vaughan, D.J.; Descostes, M.; Phrommavanh, V.; Nos, J.; Morris, K. (2014). Adsorption of Radium and Barium on Goethite and Ferrihydrite: A kinetic and surface complexation modelling study. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **146**, 150-163.
- Sánchez-Castro, I.; Amador-García, A.; Moreno-Romero, C.; López-Fernández, M.; Phrommavanh, V.; Nos, J.; Descostes, M.; Merroun, M.L. (2017). Screening of bacterial strains isolated from uranium mill tailings porewaters for bioremediation purposes. *Journal of Environmental Radioactivity* **166**, 130-141.
- Schlegel, M.; Descostes, M. (2009). Uranium uptake by hectorite and montmorillonite: a solution chemistry and polarized EXAFS study. *Environmental Science & Technology* **43**, 8593–8598.
- Stetten, L.; Mangeret, A.; Brest, J.; Seder-Colomina, M.; Le Pape, P.; Ikogou, M.; Zeyen, N.; Thouvenot, A.; Julien, A.; Alcalde, G.; Reyss, J.L.; Bombled, B.; Rabouille, C.; Olivi, L.; Proux, O.; Cazala, C.; Morin, G. (2018). Geochemical control on the reduction of U(VI) to mononuclear U(IV) species in lacustrine sediments. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **222**, 171–186.
- Tayal, A.; Conradson, S.D.; Kanzari, A.; Lahrouch, F.; Descostes, M.; Gerard, M. (2019). Uranium speciation in weathered granitic waste rock piles: An XAFS investigation. *RSC Advances* **9**, 11762-11773.

Relation entre les flux rejetés par le site de Bois Noirs-Limouzat et l'accumulation de sédiments marqués dans le lac de Saint-Clément. Rapport final.	03/01/2022	Page : 22/22
Auteur : Michaël DESCOSTES	<b>Diffusion Limitée Orano</b>	