



Fontenay-Aux-Roses, le 26 avril 2024

Monsieur le Président de l'Autorité de sûreté nucléaire

AVIS IRSN N° 2024-00067

Objet : Suite des études PNGMDR 2016-2018 Orano – site des Bois Noirs Limouzat.
Relations entre les flux rejetés par le site et les sédiments du lac de Saint-Clément

Réf. : Saisine n°SAISI-DRC-2023-0030 du 25/05/2023

Par la lettre en référence, vous avez sollicité l'avis de l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) sur le rapport final de l'étude faite par Orano sur les relations entre les flux d'uranium et de radium rejetés par le site des Bois-Noirs Limouzat et leur accumulation dans les sédiments du lac de Saint-Clément¹.

Vous souhaitez notamment que l'IRSN examine :

- la pertinence des conclusions tirées par Orano sur l'origine des marquages des sédiments du lac de Saint-Clément et sur la mobilité des contaminants constitutifs de ces marquages (au vu des nouveaux résultats de caractérisation microbiologique et radiologique des eaux porales) ;
- l'option de gestion des sédiments du lac de Saint-Clément retenue par Orano et les justifications associées.

1. CONTEXTE

Un des enjeux de la gestion des anciens sites miniers d'uranium souligné par le Groupe d'expertise pluraliste dans son rapport de 2010 et repris par la troisième édition du Plan national de gestion des matières et déchets radioactifs (PNGMDR [2013-2015]) est l'accumulation potentielle de radionucléides dans les sédiments des rivières et des lacs en aval des anciens sites miniers, du fait de leurs rejets d'uranium et de radium (notamment). Les sédiments radiologiquement marqués constituent ainsi une source secondaire d'exposition potentielle de l'homme et des écosystèmes localisée en dehors de l'emprise minière. C'est pourquoi, le PNGMDR [2013-2015] a demandé à Orano de préciser, dans le cadre d'une étude dédiée sur un site donné, la relation entre les flux d'uranium et de radium rejetés et l'accumulation de sédiments marqués dans les rivières et les lacs. Dans ce contexte, Orano a remis aux autorités, en novembre 2014 et janvier 2017 deux rapports d'étape présentant les résultats des travaux de recherche engagés dès 2011 dans l'environnement de l'ancien site minier des Bois Noirs Limouzat (BNL). Ce site a été choisi par Orano du fait de sa configuration relativement simple : une seule source

¹ Etude dont le rapport a été transmis par Orano le 3 janvier 2022, en réponse à l'article 65 de l'arrêté du 23 février 2017 relatif aux prescriptions du Plan national de gestion des matières et déchets radioactifs (PNGMDR) 2016 - 2018 et au premier point de la recommandation de l'ASN dans son avis n°2021-AV-0374 du 4 février 2021.

anthropique de radionucléides (le site minier dont les eaux collectées sont traitées avant rejet), un seul vecteur de transport (la rivière Besbre) et une seule retenue d'eau réceptrice (retenue hydroélectrique constituant le lac de Saint Clément dont l'embouchure est située 20 km en aval du site des BNL).

Le rapport de 2014 étudie le lien entre les rejets d'uranium et de radium par le site, les formes (particulaire, colloïdale et dissoute) sous lesquelles ils sont transportés dans l'eau de la Besbre et les caractéristiques radiologiques des sédiments en divers endroits et différentes profondeurs du lac. Orano conclut que (i) les radionucléides sont transportés essentiellement sous forme dissoute, (ii) les marquages radiologiques observés à une profondeur de 50-60 cm en certains points du lac situés dans les zones amont et intermédiaire (cf. Figure en Annexe 3)² sont des marquages historiques résultant des travaux de réaménagement du site réalisés dans les années 1980 et (iii) les rejets actuels ne génèrent aucun marquage de l'eau et des sédiments récents (couches superficielles) du lac (cf. liminaire au chapitre 2). Ce rapport étudie également la mobilité des radionucléides constitutifs des marquages historiques. Orano indique que les résultats acquis concernant l'identification des phases des sédiments sur lesquelles se fixent les radionucléides (dites phases porteuses) et les conditions d'oxydo-réduction (appelées conditions redox par la suite) régnant au sein des sédiments doivent être complétés par les résultats des caractérisations de populations microbiennes et des eaux porales des sédiments du lac afin de confirmer la faible mobilité de l'uranium et du radium constitutifs des marquages historiques. Le rapport de 2017 s'intéresse à l'origine du marquage en métaux (notamment cuivre et étain) mis en évidence dans les niveaux superficiels des sédiments (entre 0 et 50 cm) dans les parties amont et intermédiaire du lac (cf. figure en annexe 2) (appelé marquage polymétallique par la suite) et conclut à l'absence de lien entre ce marquage et les activités du site des BNL. Ces deux rapports ont fait l'objet d'une expertise de l'IRSN en 2018 (Avis IRSN n°2018-00218). De son analyse, l'Institut considérait que la démonstration par Orano de l'origine naturelle de l'uranium et du radium, mesurés à faible teneur dans les sédiments récents, n'était pas probante et confirmait la nécessité relevée par Orano de compléter les investigations pour conclure quant à la mobilité de l'uranium et du radium constitutifs des marquages historiques.

Le besoin de finaliser l'étude des relations entre les flux d'uranium et de radium rejetés par le site des BNL et leur accumulation dans les sédiments du lac de Saint-Clément a été prescrit dans le PNGMDR [2016-2018] et repris dans l'avis ASN n°2021-AV-0374 du 4 février 2021. En réponse, Orano a transmis en janvier 2022 un rapport dans lequel il présente les résultats des caractérisations des populations microbiennes et des mesures des concentrations en uranium et en radium 226 dans l'eau porale des sédiments du lac et réaffirme les conclusions de ses précédents rapports. Orano rappelle également l'analyse présentée dans son rapport de 2014 du risque de remobilisation des radionucléides présents sur les phases porteuses des sédiments pour différents scénarios de perturbation de ces sédiments résultant d'une évolution naturelle ou d'opérations anthropiques.

2. MOBILITE ET ORIGINE DE L'URANIUM ET DU RADIUM DES SEDIMENTS

Dans les rapports d'Orano ainsi que dans le présent avis, les termes « sédiments récents » ou « couches sédimentaires superficielles » font référence aux sédiments déposés durant les quelques années précédant les campagnes d'échantillonnage dans le lac et dans la Besbre. Par extension, le terme « situation actuelle » correspond à la configuration du site des BNL et du dispositif de traitement des eaux contemporaine de la période de réalisation de ces campagnes soit le début des années 2010.

² pouvant aller jusqu'à 8 000 Bq/kg sec en uranium 238 et 3 000 Bq/kg sec en radium 226, soit plus de six fois le fond géochimique estimé par l'IRSN à partir de sédiments prélevés dans des affluents de la Besbre, hors influence du site des Bois Noirs. Orano n'a pas mis en évidence de marquage dans la zone aval.

Mobilité de l'uranium et du radium constitutifs des marquages historiques

Dans son rapport de 2022, Orano précise que la caractérisation des populations microbiennes et des eaux porales des sédiments s'inscrit dans l'étude de la mobilité de l'uranium et du radium constitutifs des marquages historiques mis en évidence dans les sédiments au-delà de 50 cm de profondeur. En effet, Orano a abordé cette étude au travers de deux approches complémentaires. La première s'intéresse aux phases porteuses de l'uranium et du radium et à leur stabilité en fonction des conditions redox. Elle nécessite l'identification des phases porteuses et la caractérisation des conditions redox régnant au sein des sédiments renfermant les marquages historiques. Orano a étudié les conditions redox au travers de la caractérisation de l'état d'oxydo-réduction et des populations microbiennes des sédiments. La seconde s'intéresse au potentiel de remobilisation de l'uranium et du radium depuis les phases porteuses vers les eaux porales des sédiments. Elle s'appuie sur la mesure de la concentration de l'uranium et du radium dans les eaux porales des sédiments au niveau des marquages historiques.

S'agissant des phases porteuses de l'uranium et du radium, Orano a indiqué dans son rapport de 2014 avoir mis en évidence pour l'uranium, principalement des minéraux détritiques (monazite et zircon) et, dans certains échantillons, quelques phases néoformées (uraninite et méta-torbernite). Pour le radium, Orano s'est appuyé sur la littérature et a retenu notamment les monazites, les xénotimes, la barytine, la matière organique, les oxyhydroxydes de fer et de manganèse. Considérant que l'ensemble des phases porteuses de l'uranium et du radium sont stables quelles que soient les conditions d'oxydo-réduction régnant dans les sédiments, Orano conclut que ces radionucléides présents au sein des marquages sédimentaires historiques ne sont pas mobiles en l'absence de perturbation d'origine naturelle ou anthropique des sédiments. Dans son avis de 2018, l'IRSN estimait que les phases porteuses du radium retenues par Orano étaient en accord avec la littérature scientifique. En revanche concernant l'uranium, l'IRSN soulignait que d'après les analyses spectroscopiques sur rayonnement synchrotron qu'il a réalisées dans le cadre de ses propres études, 60 à 80% de l'uranium était adsorbé sur des surfaces minérales ou organiques, beaucoup plus sensibles à la remobilisation/dissolution en conditions oxydantes que les minéraux détritiques.

S'agissant des conditions redox régnant au sein des sédiments, le rapport de 2014 présente les résultats de la caractérisation de l'état d'oxydo-réduction du sédiment. Ainsi, à partir de l'étude des teneurs en soufre et des phases minérales sulfurées, Orano a mis en évidence l'apparition de conditions réductrices à des profondeurs variables entre 0 et 54 cm. Ces résultats n'ont pas permis de conclure définitivement sur les conditions redox régnant sous 50 cm de profondeur et devaient être complétés par les résultats de caractérisation des populations microbiennes. Ces compléments ont été apportés dans le rapport de 2022. Orano a ainsi identifié dans les sédiments, entre 0 et 100 cm de profondeur, la présence de populations se développant en milieu anoxique, suggérant ainsi la prévalence de conditions réductrices. Toutefois Orano a indiqué que les populations identifiées ne permettent pas de démontrer la prévalence de conditions réductrices dans la couche sédimentaire comprise entre 0 et 50 cm de profondeur du fait de la présence concomitante du marquage polymétallique³ dans cette couche mais confirment l'occurrence de conditions réductrices dès 50 cm de profondeur, c'est-à-dire dans la couche renfermant les marquages historiques, ce dont l'IRSN convient.

S'agissant du potentiel de remobilisation de l'uranium et du radium, les résultats acquis par Orano concernant la caractérisation des eaux porales des sédiments sont discutés dans son rapport de 2022. Orano considère que les concentrations en uranium et en radium dissous sont régies par les équilibres géochimiques et que de faibles concentrations dans les eaux porales traduisent un faible potentiel de remobilisation des radionucléides fixés sur les phases solides porteuses du sédiment. Il indique que, pour ne pas perturber les équilibres géochimiques en place, il a privilégié la réalisation de mesures *in situ* par le biais de capteurs passifs de type DGT⁴ pour déterminer les concentrations en uranium et en radium dissous dans les eaux interstitielles des sédiments. Dans son rapport

³ Découvert après avoir initié les caractérisations

⁴ Diffusive Gradient in Thin-films

de 2022, Orano a toutefois indiqué que les capteurs ayant été mis en place avant de connaître les teneurs en métaux de la couche sédimentaire comprise entre 0 et 50 cm de profondeur, les résultats obtenus sont inexploitable pour apprécier le potentiel de remobilisation des radionucléides fixés sur les phases porteuses des sédiments dans cette couche. L'IRSN convient de la difficulté d'exploiter les résultats obtenus par le biais des DGT et cela indépendamment de la présence de métaux. Cette difficulté avait déjà été soulevée dans son avis de 2018 dans lequel l'IRSN estimait que « *les dispositifs DGT choisis par Orano n'étaient à l'heure actuelle pas applicables à l'étude de la mobilité des radionucléides dans les eaux poreuses d'un sédiment dans la mesure où ils ont été validés pour des eaux naturelles en conditions généralement oxydantes* ».

L'IRSN considère que les éléments apportés par Orano permettent de conclure à la faible mobilité de l'uranium et du radium constitutifs des marquages historiques du fait de la stabilité des phases porteuses dans les conditions réductrices prévalant dans les sédiments concernés par ces marquages. Cette conclusion est cohérente avec les résultats des mesures effectuées dans le cadre de ses propres études sur des échantillons de sédiments du lac de Saint-Clément. Ainsi, les mesures d'uranium dissous (par ICP-MS⁵) et de radium dissous (par spectrométrie gamma à bas bruit) dans des échantillons d'eaux poreuses prélevés à l'aide de Rhizons⁶ montrent des concentrations faibles, ce qui suggère un faible risque de mobilisation depuis les sédiments. En outre, les extractions chimiques sur des échantillons de sédiments ont révélé que le radium était peu extractible, ce qui confirme la stabilité des phases porteuses du radium rapportée dans la littérature. Enfin les mesures d'oxygène dissous ont confirmé l'apparition de conditions anoxiques dans les sédiments dès 3 mm de profondeur favorables à la prédominance de l'uranium sous forme réduite, peu mobile. Si l'ensemble de ces résultats confirme la faible mobilité de l'uranium et du radium constitutifs des marquages historiques, l'IRSN souligne cependant que dans le cas de l'apparition de conditions oxydantes, suite par exemple à une baisse significative du niveau d'eau du lac, l'uranium présent sur les phases porteuses des sédiments, et en particulier les surfaces minérales ou organiques, est susceptible d'être remobilisé.

Origine des radionucléides dans les sédiments récents

Dans son rapport de 2014, Orano a présenté sa démonstration de l'origine naturelle de l'uranium et du radium mesurés dans des sédiments récents prélevés dans les zones amont et intermédiaire du lac (cf. figure en annexe 2) fondée sur l'étude du rapport d'activité ($^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$). Ainsi, Orano considère que l'équilibre mesuré entre l'activité de l'uranium 238 et celle du radium 226 (soit $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ proche de 1) dans les couches superficielles des sédiments traduit un apport naturel détritique provenant de l'érosion du bassin versant, alors qu'un déséquilibre de ce rapport aurait signifié un apport d'uranium sous forme dissoute d'origine anthropique. Bien que l'IRSN relevait dans son avis de 2018 l'insuffisance de cette approche du fait de l'existence de déséquilibres radioactifs dans les sols et les sédiments non anthropisés, Orano n'a pas apporté de nouveaux éléments de démonstration dans son rapport de 2022. Dans le cadre de ses propres études visant notamment à déterminer l'origine naturelle et/ou anthropique de l'uranium des sédiments récents, l'IRSN a considéré que deux rapports d'activité complémentaires, issus de la chaîne de décroissance de l'uranium 238, étaient particulièrement intéressants à interpréter :

- le rapport d'activité ($^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$) permet d'apprécier si l'uranium présent dans les sédiments récents provient d'un rejet sous forme particulaire ou dissoute. Un rejet sous forme dissoute génèrera, lors de son transport jusqu'à une zone de dépôt sédimentaire en aval hydraulique, un déséquilibre entre ^{230}Th et ^{238}U dans les sédiments compte tenu de l'absence de ^{230}Th sous forme dissoute dans le rejet ;
- le rapport d'activité ($^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$) est connu pour être à l'équilibre dans des eaux au contact de matériaux d'origine minière (minerais, stériles) tandis qu'il tend vers 1,14 dans des eaux traversant des roches granitiques.

⁵ Spectrométrie de masse à plasma à couplage inductif

⁶ Micro-préleveurs constitués d'un fil en fibre de verre associé à une partie poreuse

Les résultats des mesures effectuées par l'IRSN dans les sédiments récents montrent, un rapport d'activité ($^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$) significativement inférieur à 1 et un rapport d'activité ($^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$) proche de 1. Le rapport d'activité ($^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$) déterminé pour des sédiments situés à environ 140 cm de profondeur vaut, quant à lui, 1,14.

Pour l'IRSN, ces résultats indiquent que la présence d'uranium d'origine minière dans les sédiments récents ne peut pas être totalement exclue. Pour autant, il reconnaît que, quelle qu'en soit l'origine, les teneurs de l'uranium et du radium des sédiments récents, proches des valeurs caractéristiques du fonds géochimique⁷ ne présentent pas d'enjeu radiologique particulier. Bien entendu, cette conclusion ne restera valide que si les conditions de rejet du site des BNL ayant prévalu depuis le début des années 2010 sont maintenues à l'avenir.

3. SCENARIOS DE PERTURBATION DES SEDIMENTS

Dans son rapport de 2022, Orano présente son analyse du risque de remobilisation de l'uranium et du radium fixés sur les phases porteuses des sédiments du lac en fonction de quatre scénarios.

Le scénario 1 considère l'absence de perturbation des sédiments. Ceci se traduit par le maintien des conditions réductrices, notamment dans les sédiments renfermant les marquages historiques. Compte tenu de la stabilité des phases porteuses de l'uranium et du radium constitutifs de ces marquages historiques en conditions réductrices, Orano considère que les radionucléides ne seront pas mobilisés vers les eaux du lac. Le scénario 2 prévoit des opérations d'évacuation de sédiments en distinguant ceux de la zone située en aval du plan d'eau, à proximité du barrage hydroélectrique, de ceux des zones amont et intermédiaire. S'agissant de la zone en aval, ces opérations consistent en des purges de courte durée par des vannes situées au niveau du barrage. Pour Orano, ces purges sont sans conséquence sur la remobilisation de l'uranium et du radium constitutifs des marquages historiques observés dans les sédiments situés en zones amont et intermédiaire du lac. En revanche, Orano estime que le dragage des sédiments des zones amont et intermédiaire est susceptible de remobiliser certains contaminants radiologiques et chimiques présents dans les marquages historiques qui pourraient ensuite migrer plus en aval. Orano suggère par conséquent d'éviter ce type d'opération. Le scénario 3 considère une baisse du niveau d'eau du lac résultant soit d'opérations anthropiques (vidange), soit d'événements climatiques naturels (sécheresse). Pour Orano, une baisse entraînant la mise à l'air des sédiments comporte un risque important d'oxydation des sédiments et donc de remobilisation de l'uranium au moment de la remontée du niveau d'eau. Orano souligne que la présence de teneurs en fer particulièrement élevées induira la précipitation d'hydroxydes de fer sur lesquels l'uranium peut s'adsorber, et précise que les colloïdes ainsi formés sont susceptibles de migrer. Enfin le scénario 4 considère une augmentation du niveau d'eau du lac résultant des crues subites de forte intensité du bassin versant de la Besbre. Orano précise que les observations réalisées au niveau des sédiments situés à l'embouchure du lac ne révèlent aucun impact de ces crues sur la stabilité des marquages historiques.

L'IRSN estime que les scénarios identifiés par Orano sont pertinents et permettent d'appréhender les risques de remobilisation des radionucléides constitutifs des marquages historiques. L'IRSN confirme en particulier que :

- la persistance de conditions réductrices au sein des sédiments (dès quelques millimètres de profondeur) est propice au maintien en place des marquages historiques, et par conséquent, au maintien de faibles concentrations en uranium et en radium dans les eaux du lac ;
- la survenue d'alternances de périodes de sécheresse prolongées et de crue, envisageables dans le contexte du changement climatique, est de nature à modifier sensiblement les conditions redox dans lesquelles se trouvent les sédiments et à provoquer une remobilisation des radionucléides qu'ils contiennent lors de la remontée de l'eau. Sur la base des données disponibles, il est difficile de prévoir l'ampleur de telles remobilisations ;

⁷ Uranium 238 de l'ordre de 1000 Bq/kg sec et radium 226 de l'ordre de 500 Bq/kg sec soit environ 2 fois et 1 fois respectivement le fond géochimique estimé par l'IRSN à partir de sédiments prélevés dans des affluents de la Besbre, hors influence du site des Bois Noirs

- les opérations de dragage du lac sont de nature :
 - à perturber les milieux et potentiellement à remettre en cause les conditions de leur usage, notamment parce qu'il peut être difficile de garantir que de telles opérations ne remobilisent pas les marquages historiques ou ne mettent à nu des sédiments ;
 - à générer des volumes de sédiments dont la composition (radiologique ou chimique) pourrait appeler des modalités de gestion spécifiques.

L'IRSN reconnaît également que le risque de remobilisation de l'uranium et du radium présents dans les marquages historiques des zones amont et intermédiaire du lac résultant d'actions de régulation ordinaires du niveau du lac ou d'évacuation de sédiments à proximité du barrage (purges) est faible. Pour autant, l'IRSN ne peut exclure que de telles purges puissent entraîner une partie des sédiments de la zone aval du lac, sédiments dont l'évaluation de la faible teneur en uranium et en radium mesurée par Orano repose sur un nombre limité de prélèvements. Dans le cadre de ses propres travaux, l'IRSN a réalisé des prélèvements dans la zone aval montrant la présence de marquages historiques en radium et en uranium en profondeur, à proximité du barrage. En conséquence, l'enjeu associé à ce type d'opérations reste à évaluer.

Sur la base de ces éléments, l'IRSN considère que la présence des marquages historiques (qu'ils soient radiologiques ou chimiques) requerrait la mise en place d'actions de conservation de la mémoire, notamment pour ne pas engager d'opérations de dragage sans analyse préalable de leur impact sanitaire ou environnemental, de la nécessité de mettre en place des dispositions de radioprotection des travailleurs ou encore sans examen préalable du devenir possible des sédiments extraits en fonction de leurs caractéristiques radiologique ou chimiques. Pour s'assurer de l'absence de modification du milieu et du maintien de sa compatibilité avec les usages existants, notamment après la survenue d'épisodes climatiques intenses (alternance de sécheresses et de crues) ou après des opérations de vidange, dragage ou purge du lac, il paraîtrait également utile de procéder à des caractérisations radiologiques ponctuelles de la zone (y compris en aval du lac).

4. CONCLUSION

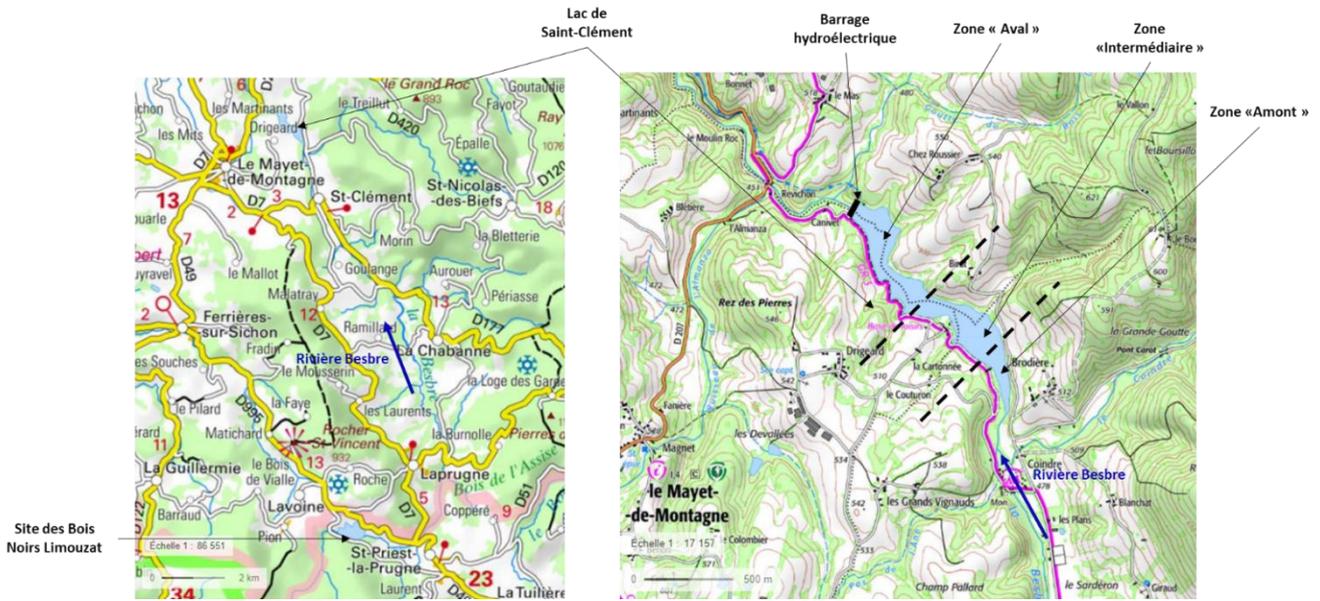
L'étude menée par Orano depuis plusieurs années pour établir la relation entre les flux d'uranium et de radium rejetés par le site des Bois-Noirs et les marquages radiologiques observés dans les sédiments du lac de Saint Clément permet d'appréhender le risque de remobilisation de radionucléides selon les différents scénarios de perturbation des sédiments envisageables. Les derniers éléments apportés par Orano, complétés par les résultats des études menées par l'IRSN, permettent de considérer que la question de radioprotection se pose essentiellement pour les sédiments renfermant les marquages historiques, en cas de modification de leurs conditions d'oxydo-réduction (potentiellement en cas de sécheresse) ou s'ils devaient être remobilisés dans le cadre d'opérations notamment de dragage. Ainsi, il pourrait être utile de mettre en place des outils de conservation de la mémoire, notamment pour encadrer d'éventuelles opérations sur les sédiments du lac susceptibles d'exposer le public ou les travailleurs. En outre, des actions de caractérisation radiologique ponctuelles à l'issue de la survenue d'événements climatiques intenses et d'opérations anthropiques (ex. dragage ou vidange du lac, purge du barrage) pourraient être mises en place.

IRSN

Le Directeur général
Par délégation,
Michel Baudry
Adjoint du Directeur de l'Environnement

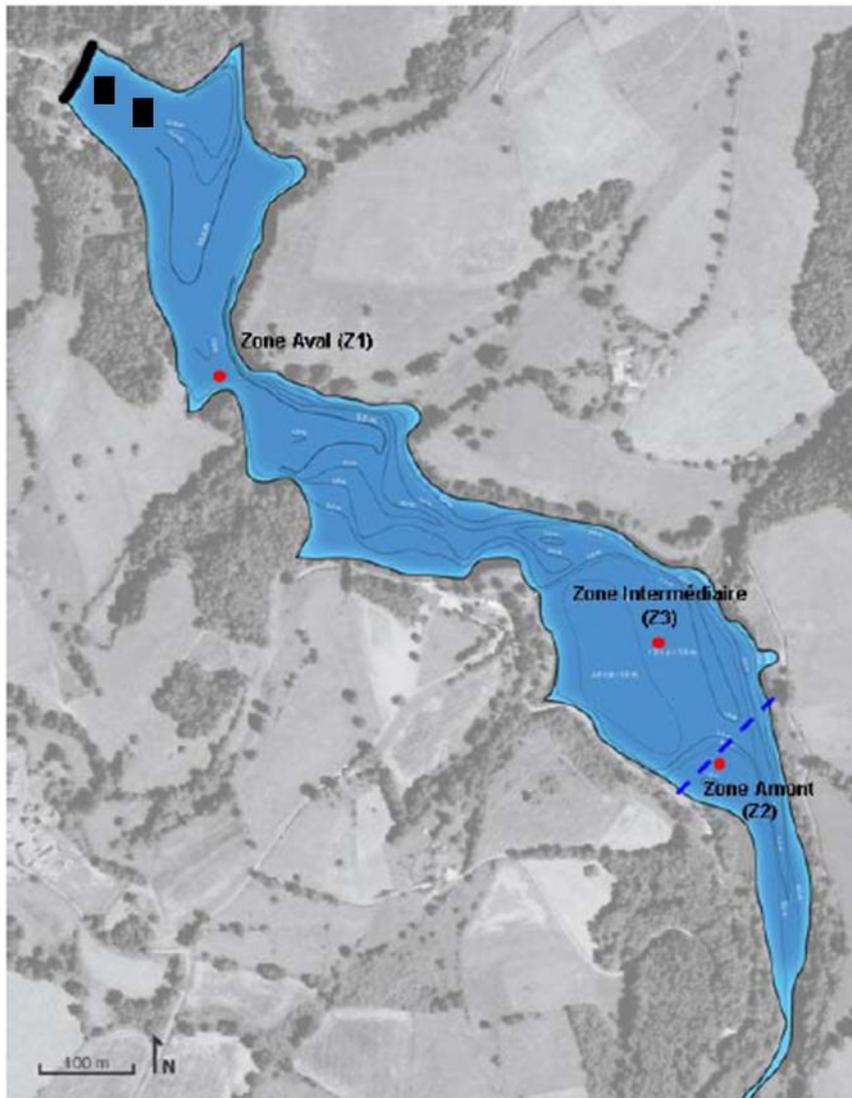
ANNEXE 1 A L'AVIS IRSN N° 2024-00067 DU 26 AVRIL 2024

Localisation du site des BNL, de la rivière Besbre et du lac de Saint-Clément.
Délimitation des zones « Amont, Intermédiaire, Aval » du lac de Saint-Clément.



ANNEXE 2 A L'AVIS IRSN N° 2024-00067 DU 26 AVRIL 2024

Localisation des prélèvements de sédiments dans les études d'Orano (d'après rapport Orano de 2014) et de l'IRSN



- Prélèvements Orano
- Prélèvements IRSN