COLLEGE DOCTORAL PAYS DE LA LOIRE | ED MATIERE, MOLECULES MATERIAUX ET GEOSCIENCES

Nantes Université

THESE DE DOCTORAT

NANTES UNIVERSITE

ECOLE DOCTORALE N° 596
Matière, Molécules, Matériaux et Géosciences
Spécialité : Radiochimie

Par
Tingting GENG

Origin and migration processes of radionuclides downstream of a former uranium mining site: Isotopic fingerprinting, ^{238}U-series disequilibrium, and geostatistical tools

Thèse présentée et soutenue à Nantes, le 21 Décembre 2023
Unité de recherche : SUBATECH – UMR 6457 et IRSN

Rapporteurs avant soutenance :

Olivier EVRARD Directeur de recherche, CEA
François CHABAUX Professeur, Université de Strasbourg

Composition du Jury :

Président : Fonction et établissement d'exercice (8)*(à préciser après la soutenance)*

Examinateurs : Gael Le Roux CNRS ECOLAB
Yann Sivry Université Paris cité

Dir. de thèse : Gilles MONTAVON Directeur de recherche, CNRS, SUBATECH

Co-dir. de thèse : Alkiviadis GOURGIOTIS Chercheur, IRSN

Co-encadrant : Olivier PERON Maître de conférence, Nantes Université

Invité(s)
Arnaud MANGERET Chercheur, IRSN
Olivier RADAKOVITCH Chercheur, IRSN
Mathieu LE COZ Chercheur, IRSN

COLLEGE DOCTORAL PAYS DE LA LOIRE

ED MATIERE, MOLECULES MATERIAUX ET GEOSCIENCES

Nantes Université

Titre : Origine et processus de migration des radionucléides en aval d'un ancien site minier d'uranium : traçage isotopique, déséquilibres de la chaîne de l'^{238}U et outils géostatistiques

Mots clés : L'isotopie du Pb, Spectrométrie gamma mobile/in situ, distribution spatiale

Résumé : Les activités minières d'uranium (U) potentiellement libèrent des radionucléides et vers les zones en aval, en particulier les zones humides qui agissent comme un réservoir de radionucléides. Cependant, une forte teneur en U peut également peut aussi être attribuée à l'altération et de l'érosion des roches uranifères, comparable à celle provenant des activités minières. En tenant compte de ces deux sources potentielles de contamination, cette étude envisage d'utiliser diverses approches, notamment les isotopes stables du Pb, l'analyse élémentaire, le déséquilibre de la série ^{238}U, et des méthodes géostatistiques pour mettre en évidence les sources, le transport des radionucléides et leurs distributions spatiales. La première partie de cette recherche identifie trois sources principales de contamination radioactive : i) pechblende (UO_2), ii) torbernite $Cu(UO_2)_2(PO_4)_2$, et iii) parsonsite $Pb_2(UO_2)_2(PO_4)_2$. Les limitations de Pb isotopique traçage sont également mises en évidence. De plus, les rapports d'activité (^{230}Th/^{238}U) et (^{226}Ra/^{230}Th) suggèrent une mobilité de l'U et du Ra, qui peut être influencée par le traitement des minerais, la dissolution lors du transport et la fluctuation de la nappe phréatique. La seconde partie de recherche présente les premières analyses des données radiométriques collectées à l'aide de la spectrométrie gamma portable et in situ et aborde de la co-contribution des radionucléides, la structure spatiale et la cartographie de la distrubtion des radionucliéides et des radionucléides par la Variograommme et Kriging.

Title : Origin and migration processes of radionuclides downstream of a former uranium mining site: Isotopic fingerprinting, ^{238}U-series disequilibrium, and geostatistical tools

Keywords : Pb stable isotopes, Portable/fixed gamma spectrometry, spatial distribution

Abstract : Uranium (U) mining activities potentially release radionuclides into downstream areas, particularly wetlands, which could act as sinks for these substances. However, high U content can also result from natural weathering and erosion of uraniferous rocks, comparable to that originating from mining activities. Considering these two potential sources of U-contamination, this study aims to use various approaches including stable Pb isotopes, elemental analysis, U238-series disequilibrium, and geostatistical methods to highlight the sources, transport of radionuclides and their spatial distribution.

In our study, soils, and sediments collected from a wetland downstream of the former U mine site Rophin, in France, exhibited notably high U concentrations of up to 16,000 mg.kg^{-1} in the surface organic layer. The first part of this research focuses on the soil profiles. Three primary U-ore sources of the radioactive contaminants: i) pitchblende (UO_2), ii) torbernite $Cu(UO_2)_2(PO_4)_2$, and iii) parsonsite $Pb_2(UO_2)(PO_4)_2$. The limitations of Pb source tracing are further revealed, resulting from its high natural Pb content in parsonsite. Moreover, (^{230}Th/^{238}U) and (^{226}Ra/^{230}Th) activity ratios suggest the potential mobility of both U and radium (Ra) within the soil profiles. These mobility patterns may be influenced by various factors, including U-ore processing, dissolution during transport, and fluctuations in the water table. In the second part of our research, we present our preliminary findings based on radiometric data collected using portable and in-situ gamma spectrometry. This section addresses the co-contribution of radionuclides, spatial structure analysis through variograms, and the spatial distribution mapping of radionuclides by Kriging.