

RÉSUMÉ

Titre: Détermination des propriétés de sorption des roches sédimentaires exposées à des conditions salines et réductrices – Principaux radionucléides

Rapport n°: NWMO-TR-2016-08

Auteur: F. Paul Bertetti

Société: Center for Nuclear Waste Regulatory Analyses, Southwest Research Institute

Date: Juin 2016

Résumé

Ce rapport résume les résultats d'un projet expérimental visant à mesurer les valeurs de sorption des principaux radioéléments pouvant être affectés par l'oxydoréduction, soit l'uranium (U), le sélénium (Se), l'arsenic (As), le technétium (Tc), le neptunium (Np) et le plutonium (Pu). Des expériences ont été menées pour mesurer la sorption de ces éléments par trois substrats – deux échantillons de roche sédimentaire canadienne (un de schiste de la formation Queenston et un de calcaire de la formation de Cobourg) et un échantillon de bentonite – plongés dans des solutions de saumure synthétique (SR-270-PW) et des solutions diluées dans des conditions de faible concentration d'O₂ et d'oxydo-réduction.

Des protocoles ont été élaborés pour (i) pouvoir générer de manière répétée des solutions de saumure répondant aux compositions ciblées; (ii) mesurer de manière précise le pH et l'Eh des saumures; et (iii) établir un environnement réducteur approprié pour les expériences. Des essais cinétiques et par lots ont été réalisés.

Les résultats des expériences de sorption indiquent que les coefficients de répartition les plus élevés (K_{as}) dans les solutions de saumure et les solutions diluées étaient associés au Pu et à l'U. La sorption du Se et de l'As était modérée dans les solutions de saumure et les solutions diluées. Le Tc et le Np ont présenté des comportements de sorption variables. Au cours d'un essai par lots de longue durée, on a observé une sorption élevée du Tc par les échantillons de calcaire et de MX-80, mais une faible sorption par le schiste. La sorption du Np était faible dans les solutions de saumure, mais forte (équivalente à celle de l'U) dans les solutions diluées. Il a été confirmé que les conditions de solution expérimentales étaient considérablement réductrices et que les valeurs d'Eh ciblées étaient atteintes dans la plupart des cas. Dans les cas où les valeurs d'Eh étaient plus élevées que celles souhaitées, les résultats expérimentaux n'ont pas révélé de changements de comportement des éléments évalués.

De multiples expériences ont démontré que les propriétés de sorption de certains éléments, tels que le Np, le Pu et l'U, demeurent constantes dans diverses conditions. La sorption dans les saumures était plus faible pour le Np, le Pu et l'U que dans les solutions diluées. La sorption de l'As, du Se et du Tc était semblable dans les solutions saumurées et les solutions diluées. Aucune différence substantielle n'a généralement été observée

dans les propriétés de sorption des différents substrats examinés dans ces essais. À l'exception du Np, il est probable que les expériences ont permis d'évaluer adéquatement l'état de valence ciblée des radioéléments examinés [As(III), Pu(III/IV), Se(-II), Tc(IV), and U(IV)]. Bien que cela n'ait pas été directement confirmé par des mesures, ces états de valence ont été relativement corroborés par la préparation des solutions de base dans la forme souhaitée (As), préparation basée sur des techniques capables de générer un état de valence réduite (Pu, Se et U), les preuves comparatives de sorption des formes oxydées et réduites (Tc, U et Pu) et la comparaison des résultats aux valeurs de sorption présentées dans la littérature scientifique.

Les résultats de ces expériences de sorption seront utilisés pour mettre à jour la base de données de la SGDN sur les taux de sorption pour les roches sédimentaires canadiennes et la bentonite. Cette base de données sera utilisée pour évaluer les sites potentiels de dépôt géologique en profondeur (DGP).