

RÉSUMÉ

Titre : Expériences de sorption par des roches sédimentaires des éléments Sn, Zr, Cs, Th et Pd dans des conditions salines

Rapport n° : NWMO-TR-2018-16

Auteurs : Peter Vilks et Neil H. Miller

Société : Laboratoires nucléaires canadiens, Laboratoire de Whiteshell

Date : Décembre 2018

Résumé

Ces travaux avaient pour objectif de mesurer le coefficient de partage (K_d) des éléments Cs, Pd, Zr, Sn et Th entre une saumure synthétique (saumure de référence SR-270-PW, de type Na-Ca-Cl, MDT de 275 g/L) et des roches sédimentaires canadiennes (schiste et calcaire) ainsi que la bentonite. Ces mesures expérimentales ont été effectuées à l'aide (1) d'essais de sorption par lots d'une durée maximale de 6 mois pour un ou plusieurs éléments; et (2) d'essais de diffusion de longue durée (un an) pour de multiples éléments (Li, Ni, Cs, Pd, Zr, Sn et Th) réalisés avec du schiste et du calcaire. Des essais de sorption par lots ont aussi été réalisés avec une solution diluée de référence (type Na-Ca-Cl, MDT de 0,49 g/L) pour fournir un cas de référence permettant d'étudier l'effet de la salinité sur la sorption.

Les résultats des essais par lots indiquent que la sorption dans la saumure était plus faible pour les éléments Cs, Pd, Sn et Th que dans la solution diluée. Les valeurs K_d ont été divisées par un facteur allant de 100 à 900 pour le Pd, de 3 à 30 pour le Th, de 10 à 20 pour le Zr, de 4 à 7 pour le Sn et de 3 à 7 pour le Cs. Une forte sorption sur la bentonite et une sorption modérée sur le schiste et le calcaire ont été enregistrée pour le Cs dans la saumure. Aucune tendance évidente n'a été observée concernant la variation des valeurs de K_d avec le pH pour la plupart des éléments et aucune limite de sorption nette n'a été observée pour aucun élément sur l'ensemble de la gamme de valeurs de pH. Un essai de désorption a permis de constater que la sorption des éléments Pd, Zr, Sn et Th était réversible pour la plupart des substrats. La sorption du Cs n'était pas réversible, possiblement parce qu'il se fixait aux structures minérales de l'argile.

Une modélisation par complexation de surface a été réalisée pour la bentonite (montmorillonite) et le schiste (60 % d'illite) dans la saumure de référence et des solutions diluées à l'aide d'un modèle de protolyse de deux sites sans terme électrostatique (2SPNE SC). Les constantes de complexation de surface pour le Pd, le Zr et le Sn (sorption sur l'illite) ont été obtenues à partir des relations linéaires d'énergie libre (LFER), alors que les constantes de complexation pour les autres éléments ont été obtenues en consultant la littérature. Dans une saumure au pH variant de 6 à 7, les valeurs K_d de simulation pour le Zr étaient inférieures d'un facteur de 3 à 13 aux valeurs mesurées; les valeurs K_d de simulation pour le Sn et le Th étaient supérieures d'un facteur de 3 à 220 et de 7 à 26 respectivement aux valeurs mesurées. Dans une solution diluée au pH variant de 7 à 8, les valeurs K_d de simulation pour le Zr étaient inférieures d'un facteur de 6 à 41 aux valeurs mesurées; et les simulations ont fourni des approximations pour le Sn (à l'intérieur d'un facteur de 9 pour la bentonite et de 4 pour le schiste) et le Th (à l'intérieur d'un facteur de 2 pour la benonite et de 7 pour le schiste).

Le modèle 2SPNE SC n'a pas donné de résultats pour le Pd, ce qui indique que les mécanismes de sorption (p. ex., la sorption des complexes de chlorure de Pd) doivent aussi être pris en considération.

Au cours de la période de diffusion de 368 jours, le Li s'est diffusé dans les échantillons de calcaire et de schiste, mais aucune pénétration n'a été observée pour le Ni, le Zr, le Sn et le Cs. La profondeur de diffusion du Zr et du Pd dans le calcaire et le schiste a été inférieure à 0,1 mm, démontrant que le Zr et le Pd ont été fortement sorbés, ce qui est conforme aux résultats des essais par lots. Le Sn s'est diffusé à ~0,3 mm de profondeur dans le calcaire et à 2 mm dans le schiste. Le Cs s'est diffusé à ~1.5 mm de profondeur dans le calcaire et à ~4 mm dans le schiste. Le Ni s'est diffusé à ~2 mm de profondeur dans le calcaire et à 9 mm dans le schiste. Aucun profil de diffusion du Th n'a été obtenu en raison de la concentration naturelle de Th dans les échantillons de calcaire et de schiste utilisés.

Les données sur la sorption obtenues dans le cadre de cette étude seront utilisées pour mettre à jour la base de données de la SGDN sur les taux de sorption des roches sédimentaires canadiennes dans des solutions hautement salines.