

Étude de la réactivité des surfaces des phases argileuses par échange isotopique

Suzuki-Muresan T., David K., Perrigaud K., Landesman C., Abdelouas A., Grambow B.
SUBATECH, Unité Mixte de Recherche 6457, Ecole des Mines de Nantes, CNRS/IN2P3, Université de Nantes, 4 rue Alfred Kastler, BP 20722, 44307 Nantes cedex 03, France
Corresponding author: tomo.suzuki@subatech.in2p3.fr

L'argilite du Callovo-Oxfordien a été choisie comme roche hôte potentielle pour accueillir les futurs déchets de MAVL et de HAVL. L'argilite a été retenue pour ses propriétés adaptées au stockage de ces colis de déchets en termes de forts coefficients de rétention des radionucléides, de la faible perméabilité de l'eau, d'une grande surface spécifique^[1; 2]. L'argilite est composée majoritairement d'argile (illite, interstratifié illite/smectite 45-55%), de carbonates 30-40%, de tectosilicates 20-30% et de pyrite 1-2%^[3]. L'objectif de nos études visait à mieux comprendre la réactivité des phases minérales argileuses, en particulier dans les conditions proches de l'équilibre attendues lorsque l'eau porale saturera la formation géologique plusieurs milliers d'années après la fermeture du site.

Dans ce travail, nous avons étudié individuellement les composants majoritaires de l'argilite du Callovo-Oxfordien à savoir l'illite, l'illite/smectite et la calcite. L'argilite a été traitée afin d'extraire la fraction fine d'argile (< 2µm). La réactivité de surfaces de ces phases a été évaluée en suivant le rapport isotopique (RI) en solution de l'élément constitutif de ces matrices tel que le silicium (²⁹Si/²⁸Si) pour les phases argileuses et le calcium (⁴²Ca/⁴⁴Ca) pour la calcite. Le traceur isotopique a été ajouté lorsque l'équilibre solide/solution est atteint. Dans ces conditions, le RI naturel est modifié de sorte à obtenir un RI mélange différent dont les variations puissent être analysées de manière significatives. Différentes conditions expérimentales ont été imposées : pH, température, composition de la solution, rapport m/V. La mesure isotopique du silicium et du calcium est effectuée par spectrométrie de masse à source plasma à double focalisation et monocollection (ICP-MS-HR).

Les résultats montrent que la réactivité des phases argileuses dépend fortement de la température. Dans les conditions proches de l'équilibre, nous avons identifié et confirmé^[4] qu'un mécanisme de dissolution/précipitation contrôle l'équilibre: (i) à 90°C la variation du RI mélange est accentuée et le rapport mélange tend vers le RI naturel (R = 0.0508) après 100 jours de contact ; (ii) à 35° et 50°C l'évolution et les variations du RI mélange sont similaires et le domaine de température influence peu la réactivité de surface. L'étude menée sur la calcite montre que la réactivité de surface est dépendante de la surface spécifique. Le mécanisme contrôlant l'équilibre est (i) de type dissolution/précipitation en présence d'une surface spécifique faible (0.5 m²/g) et (ii) de type échange isotopique en présence d'une surface spécifique élevée (10 m²/g). Dans le dernier cas, le RI mélange correspond au RI naturel (R = 0.310) après 100 jours de contact.

L'étude des différents composants de l'argilite a permis de mieux comprendre et d'appréhender la réactivité de l'argilite du Callovo-Oxfordien dans les conditions proches de l'équilibre. Nous avons montré que l'argilite est un système complexe et dynamique où des mécanismes de dissolution/précipitation ou des mécanismes d'échange isotopique peuvent contrôler l'équilibre à l'interface surface/solution.

¹ ANDRA, *Dossier ANDRA argile: Evaluation de la faisabilité du stockage géologique en formation argileuse*, (2005), 239.

² F. Bergaya, et al., *Handbook of Clay Science, Developments in Clay Science*. Amsterdam Elsevier, (2006), 1246.

³ E. Gaucher, et al., *Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C*, 29, (2004), 55-77.

⁴ T. Suzuki-Muresan, et al., *Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C*, 36, (2011), 1648-1660.