



HAL
open science

Analyses de spéciation de l'uranium en contexte minier par spectrofluorimétrie laser à résolution temporelle : Comparaisons aux calculs de spéciation

Pascal E. Reiller, Pierre L'Hermitte, Chengming Shang, Valérie Plagnes, Anne Jost, Michael Descostes

► To cite this version:

Pascal E. Reiller, Pierre L'Hermitte, Chengming Shang, Valérie Plagnes, Anne Jost, et al.. Analyses de spéciation de l'uranium en contexte minier par spectrofluorimétrie laser à résolution temporelle : Comparaisons aux calculs de spéciation. Journées Uranium d'Orsay, Jan 2024, Orsay, France. cea-04448926

HAL Id: cea-04448926

<https://cea.hal.science/cea-04448926>

Submitted on 9 Feb 2024

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



Distributed under a Creative Commons Attribution - NonCommercial - NoDerivatives 4.0 International License

Analyses de Spéciation de l'Uranium en Contexte Minier par Spectrofluorimétrie Laser à Résolution Temporelle : Comparaisons aux Calculs de Spéciation

**Pascal E. Reiller¹, Pierre L'Hermite², Chengming Shang¹, Valérie Plagnes²,
Anne Jost², Michaël Descostes³**

¹ Université Paris-Saclay, CEA, Service de Physico-Chimie (SPC), F-91191 Gif-sur-Yvette CEDEX, France ; ² Sorbonne Université, CNRS, EPHE, METIS, F-75005 Paris, France ; ³ ORANO Mining, Environmental R&D Dpt, France

La connaissance de la spéciation aqueuse de l'uranium en contexte minier est une donnée importante pour les calculs d'impact basés sur des modélisations de type transport réactif. L'utilisation de base de données thermodynamiques permet d'avoir accès à cette spéciation de manière théorique lorsque les compositions d'eaux sont connues. Néanmoins, il est possible d'y avoir accès de manière expérimentale par spectrofluorimétrie laser à résolution temporelle,¹ pour peu que l'uranium soit au degré d'oxydation +VI. Dans ce travail, nous avons mesuré les spectres de fluorescence de l'uranium dans des prélèvements issus de différents environnements : des sites historiques français du Bosc (Lodève) et du Cellier en fonction du traitement des eaux ; et un site issu d'un site sub-saharien (Teloua, Niger). Les différences de spéciation attendues à partir des compositions d'eaux sont bien retrouvées dans les échantillons où la concentration en uranium est suffisante pour obtenir un signal de fluorescence. Les échantillons du site du Bosc et de Teloua présentent les caractéristiques des spectres de fluorescence des complexes $\text{Ca}_n\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{(4-2n)-}$.^{1,2} Pour le site du Cellier, les échantillons prélevés avant et après traitement des eaux montrent l'évolution de l'uranium sous forme $\text{UO}_2(\text{SO}_4)_n^{2-2n}$ vers les complexes $\text{Ca}_n\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{(4-2n)-}$. Les calculs thermodynamiques en utilisant PHREEQC³ et la base de données PRODATA^{4,5} sont en bon accord avec les attributions spectroscopiques pour le site du Bosc, Teloua et les échantillons attribués du Cellier ; un échantillon atypique du Cellier semble être composé majoritairement des complexes $\text{UO}_2(\text{CO}_3)$ et $(\text{UO}_2)_2\text{CO}_3(\text{OH})_3^-$.

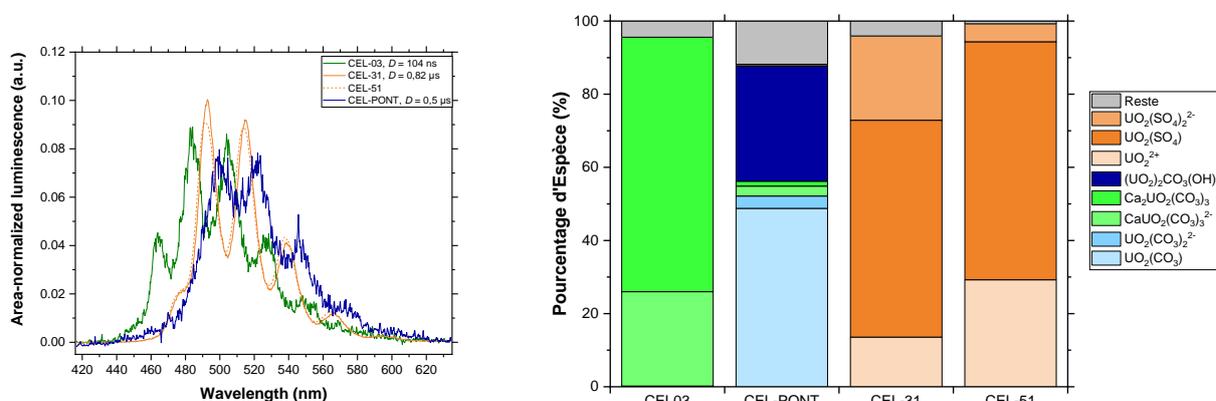


Figure 1. Exemples de spectres de fluorescence normalisés à la même aire, caractéristiques des échantillons du site du Cellier, représentant les espèces $\text{Ca}_n\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{(4-2n)-}$ (vert), $\text{UO}_2(\text{SO}_4)_n^{2-2n}$ (orange) et atypiques (bleu) ; et spéciations calculées avec la base Prodata 1.5.3.1^{4,5} correspondantes.

References

- [1] Shang *et al.*, *Sci. Total Environ.* **858** (2023) 159927.
- [2] De Windt *et al.*, Migration 2023, September 24-29, 2023, Nantes, France, 2023, p 446.
- [3] Parkhurst & Appelo, Report 99-4259, U.S. Geological Survey, Lakewood, Colorado, USA, 1999.
- [4] Reiller & Descostes, *Chemosphere* **251** (2020) 126301.
- [5] Reiller, Report CEA-R 6573 (ISSN 0429-3460) Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives, Gif-sur-Yvette, France, 2022.