

RÉSUMÉ

Titre : Étude des méthodes de quantification des processus de transport par diffusion dans la roche sédimentaire
Rapport n° : NWMO TR-2013-18
Auteurs : Diana Loomer, Yan Xiang et Tom Al
Société : Université du Nouveau-Brunswick
Date : Décembre 2013

Résumé

Des progrès dans les techniques de mesure de la diffusion dans les roches sédimentaires à faible perméabilité ont été réalisés grâce à la création de nouvelles méthodes ou à la modification des méthodes existantes dans plusieurs domaines : i) la mesure des coefficients de diffusion effective (D_e) sous pression de confinement (PC); ii) l'amélioration de la méthode de radiographie aux rayons X; iii) l'élaboration d'une méthode pour créer des conditions de saturation gaz/saumure partielle dans la roche pour les études sur la diffusion; et iv) l'imagerie des chemins de diffusion par microscopie électronique à balayage (MEB).

La méthode *through-diffusion* a été modifiée pour mesurer les valeurs normales de D_e au litage avant et après l'application d'une pression de confinement (PC) à l'échantillon rocheux. Alors que la pression augmentait de la pression ambiante du laboratoire (PA) à une PC de 12,0 MPa, une diminution de 14 % de la D_e de l'eau tritiée (D_{eHTO}) et une diminution de 17 % de la D_e de l'iode (D_{ei}) ont été observées dans la carotte de schiste forée dans la formation Queenston du bassin Michigan. Les diminutions de la D_e ont été beaucoup plus importantes dans les échantillons de schiste de la formation Georgian Bay (PC de 15,1 MPa) : 32 % de la D_{eHTO} et 44 % de la D_{ei} . Pour le calcaire et les échantillons de calcaire argileux de la formation Cobourg (PC de 17,4 MPa), la diminution de la D_e pour les deux traceurs variait de 31 % à 35 %. La méthode d'étalonnage de la radiographie a été révisée. Du grès naturel a été utilisé comme matrice d'étalonnage pour quantifier la corrélation entre le changement dans l'atténuation des rayons X et la concentration d'un traceur d'I⁻ dans un échantillon. Le grès naturel ne constituait pas une matrice d'étalonnage appropriée pour le césium (Cs^+), un traceur non conservateur. Comme solution de rechange, les relations entre les fonctions d'étalonnage pour les fioles de verre, le grès et les céramiques observées dans l'étalonnage de l'I⁻ ont été exploitées et une nouvelle fonction d'étalonnage pour le Cs^+ a été déterminée. La méthode révisée d'étalonnage sera utilisée à l'avenir pour toute radiographie aux rayons X.

La D_{ei} et les valeurs de porosité accessible de l'I⁻ mesurées dans les échantillons d'argile à Opalinus du Laboratoire sur la roche dure de Mont Terri, en Suisse, par radiographie dans des conditions non confinées étaient supérieures aux valeurs publiées, en raison du gonflement de l'argile à Opalinus dans la cellule de radiographie. La cellule de radiographie a ensuite été redessinée pour pouvoir contenir des échantillons gonflants. La seule valeur de D_{ei} ($4,7 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$) mesurée à l'aide de la cellule de radiographie avec confinement est conforme aux valeurs publiées. Pour les mesures de diffusion du césium (Cs^+), le code de modélisation du transport réactif à composants multiples MIN3P a été utilisé pour calculer les profils de concentration du Cs^+ . Les valeurs estimées des coefficients de diffusion poreuse (cD_p) et de coefficients de sélectivité ($\log K_{Cs^+/Na^+}$) ont été obtenues à l'aide du code d'estimation des paramètres non dépendant du modèle, PEST. La moyenne des cD_p parallèles au litage était de

$1,7 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ et la moyenne des cD_p normaux du litage était de $8,1 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$. La gamme de valeurs $\log K_{\text{Cs}^+/\text{Na}^+}$ mesurées (1,4 à 2,1) est conforme aux valeurs publiées. Le $\log K_{\text{Cs}^+/\text{Na}^+}$ diminue à mesure que la concentration de traceur Cs^+ augmente.

Une nouvelle méthode pour créer et réguler les conditions de saturation gaz/saumure partielle dans les échantillons rocheux est en train d'être mise au point. Les études préliminaires réalisées à l'aide de la méthode à rayons X sont prometteuses. D'autres travaux de mise au point visant à mettre au point une nouvelle technique radiographique aux rayons gamma Am-241 sont en cours.

Les chemins de diffusion dans les échantillons rocheux du bassin Michigan ont été visualisés par MEB. Le traceur I^- a été fixé aux pores de la roche en précipitant l'échantillon dans de l'iode d'argent (AgI) soluble. À l'échelle micrométrique (μm), les chemins caractéristiques ont été différenciés.