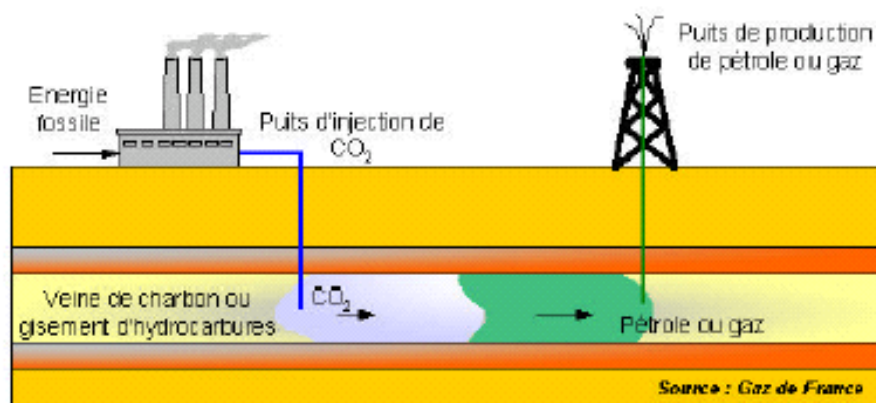


BOUR I.
RENVOISÉ E.

LE DEVENIR DU CO₂ APRES INJECTION DANS LES AQUIFERES PROFONDS



Avril 2003

Université Claude Bernard Lyon1

LE DEVENIR DU CO2 APRES INJECTION DANS LES AQUIFERES PROFONDS

Pourquoi stocker le CO2 dans les roches ?

Le dioxyde de carbone, un des gaz à effet de serre, s'accumule dans l'atmosphère, depuis le début de l'ère industrielle. On note une augmentation du taux de CO2 de 31 % depuis les quarante dernières années. La croissance de la teneur en CO2, lié à l'activité anthropique, a des conséquences notables sur le réchauffement climatique. Les conférences de Rio (1992), de Berlin (1995) et de Kyoto (1997), ont évoqués la nécessité de prendre des mesures afin de réguler et réduire cet excédent de gaz carbonique et faire en quelque sorte un « retour à l'envoyeur ». Alors, différents projets mondiaux ont été mis en place, qui sont des défis autant scientifiques qu'économiques.

Parmi eux on compte le projet européen SACS (Saline Aquifer CO2 Storage), qui a mis en place, depuis 1996, un test sur 20 ans d'injection de CO2 dans des couches sableuses sous marines (Site de Sleipner en Mer du Nord) à hauteur d'un million de tonne par an. Ce projet a été initié par la compagnie pétrolière norvégienne Statoil et a été rejointe depuis par Esso, Norsk Hydro, Total, BPMobil, Vattenfall, British Geological Survey, BRGM, GEUS, IFP, NTIG-TNO, SINTEF Petroleum Reserche, Nansen ERS Centre, IEA GHG, Schlumberger et Geco-Prakla.

Où le stocker ?

Certaines structures géologiques présentes des capacité plus ou moins importante pour la séquestration du CO2 en fonction du caractère poreux. Telles que :

- aquifères¹ profond et salin figurent comme réservoirs de plus grande capacité (jusqu'à 10000 Gt)
- réservoirs de pétrole ou de gaz appauvris
- mines de charbon
- basaltes de provinces ignées (Trapps)
- sites géothermiques (Bassin Parisien)

Les réservoirs doivent répondre à certaines caractéristiques primordiales pour être retenus comme réservoirs potentiels. Les paramètres déterminant pour le stockage sont :

- **la profondeur** de piégeage (minimum 800 m) permettant au CO2 injecté d'être à l'état supercritique (état sous lequel le CO2 a des propriétés à la fois d'un gaz et d'un liquide, $T \approx 30^{\circ}\text{C}$, $P \approx 7 \text{ MPa}$),
- **la porosité** qui régit la perméabilité (initiant la bonne circulation des fluides) et le volume de stockage disponible.
- **la lithologie** pourvu d'une couche sommitale imperméable (« shales » ou évaporites) à la fuite des gaz.

¹ Formation géologique, plus ou moins profonde, contenant de l'eau interstitielle mobilisable.

Trois types de roches hôtes peuvent répondre à ces critères : les aquifères gréseux et carbonatés, ainsi que les réservoirs basaltiques.

Les risques de fuites

Il existe différents sites expérimentaux en projet ou en cours dont l'objectif est de surveiller le devenir du CO2 dans les aquifères. Pour cela on utilise des méthodes géophysiques ou géochimiques afin de détecter les fuites par lesquelles le CO2 peut s'échapper et à terme mettre en évidence une évolution temporelle de ces émanations gazeuses.

Trois sites pilotes sont déjà en cours de réalisation :

- le Champ Sleipner en Norvège (nappe aquifère) (figure 1)
- le Projet Weyburn au Canada (gisement de pétrole)
- le Site Nagaoka au Japon

Deux sont encore en projet :

- le Groupe Columbia River Basalt aux Etats-Unis
- le Bassin de Petrel en Australie

Gisement de Sleipner

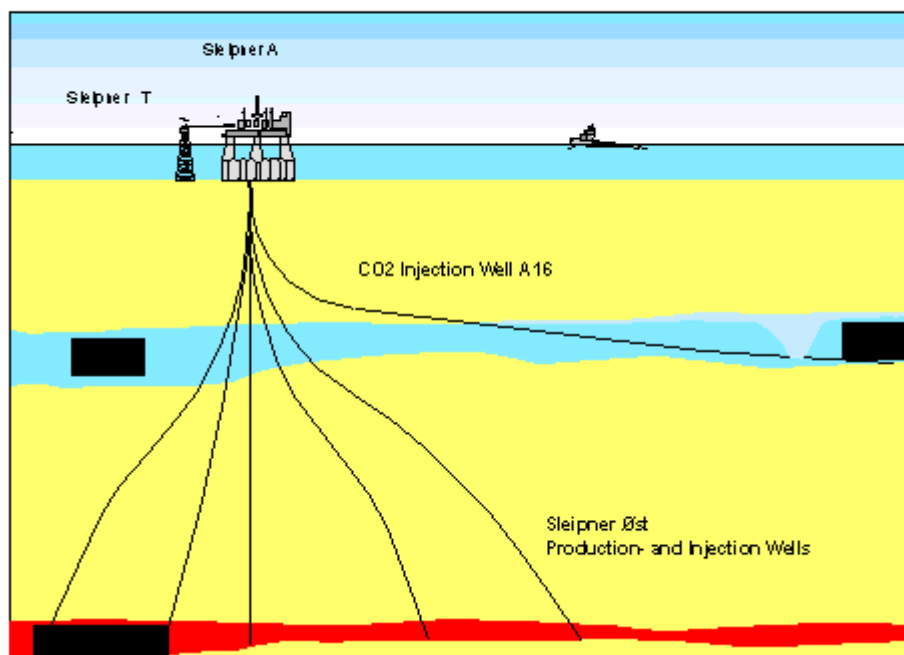


Figure 1 : Illustration du site de Sleipner et de la configuration de l'injection.

On étudie également des cas naturels analogues d'échappement de gaz car les simulations proposées ne sont pas suffisamment précises pour décrire totalement la réalité.

Deux sites sont étudiés actuellement :

- le Massif central, au Sud-est de la France
- le site de Florina en Grèce

Les résultats de ces expériences ont montré qu'il existe plusieurs itinéraires de fuites que le CO₂ supercritique peut emprunter. D'une part, une migration verticale majoritaire et rapide, puis, d'autre part une migration latérale plus lente.

La **diffusion**² sera d'autant plus lente que la couche sus-jacente jouera son rôle de barrière. Cependant elle ne sera pas inévitable. La diffusion n'est pas la voie prédominante de fuite du CO₂ (fig.1).

La **capillarité** est réalisée lorsque la pression de fluides dépasse celle induite par l'effet confinant de l'encaissant (fig.1). Ceci entraîne la remontée des fluides (CO₂ supercritique) vers la surface. Le caractère de confinement relatif aux nano-espaces de la roche se retrouve au niveau des shales et des évaporites.

La **fracturation hydraulique** a lieu lorsque la pression des fluides est telle qu'elle engendre une fracturation de l'encaissant (fig.1). Le CO₂ pourra alors s'échapper par ces voies secondaires.

Les **failles et fracturations préexistantes ou induites (par des forages)**, issues de processus géomécaniques, sont des chemins favorables à l'échappement du gaz vers la surface, sauf si elles sont comblées par des matériaux argileux (caractère confinant) (fig.1). On peut citer l'exemple de Florina en Grèce où les fractures laissent remonter le CO₂, provenant de l'altération de couches à lignite, jusqu'à la surface. Les fracturations induites sont issues de la mise en place d'un puits, qu'il soit de carottage, d'injection ou artésien.

Relations du CO₂ avec son environnement profond

Après injection du CO₂ dans l'aquifère, celui-ci va réagir avec les roches et les fluides qui l'entourent suivant différents mécanismes chimiques et physiques : par dissolution, par précipitation et par l'action hydrodynamique. Les réactions sont dépendantes de la contrainte cinétique. Ces trois intervenant physico-chimiques ont une efficacité plus ou moins importante, se qui induit une variabilité de l'échelle temporelle sur la réalisation de la séquestration du CO₂.

Monitoring et quantification de la proportion de fuite

Notre discussion principale consiste à expliciter différentes méthodes de surveillance et de quantification des pertes de CO₂ au sein des réservoirs souterrains.

Les voies de fuites explicitées précédemment nécessitent différentes méthodes d'analyses plus ou moins adaptées à chacune d'elle. Ces analyses peuvent se faire via des techniques géochimiques et/ou géophysiques.

² Transfert de matière tendant à égaliser le potentiel chimique des différents éléments d'un système (rapide dans les gaz, lentement dans les liquides et très lentement dans les solides).

Les méthodes géophysiques présentent l'avantage de faire des mesures in-situ. Cependant le signal qu'elles n'est pas toujours facile à interpréter.

Le couplage de ces différentes approches permettrait de mieux appréhender l'évolution des fuites de CO2.

Méthode géochimique :

- Traceurs géochimiques

Cette technique traite plus particulièrement de la capacité de piégeage du CO2 et de ses réactions avec les phases minérales dans l'environnement souterrain. Les isotopes légers du ^{12}C et de l' ^{16}O sont utilisés par les réactions avec les minéraux. Les ratios en $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ et $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ seront donc plus élevés dans le CO2 injecté dans un aquifère que dans l'atmosphère terrestre.

Méthodes géophysiques :

- Tomographie sismique

Cet outil présente un intérêt pour l'étude de sections à grande échelle des formations géologiques, mais à faible résolution. La sommation de ces coupes rend compte de la géométrie spatiale de ces ensembles géologiques. On utilise dans notre situation les ondes sismiques (ondes de compression et de cisaillement) enregistrées par les géophones lors de vibrations provoquées (en mer ou sur terre). Les ondes auront une vitesse caractéristique en fonction des lithologies traversées. Les variations de vitesse créent des gradients de niveau de gris visualisables sur un diagramme (figure) permettant de souligner les interfaces sismiques dont la géométrie pourrait refléter la migration verticale du CO2 in-situ. La superposition d'une chronologie rajoute une dimension au diagramme tomographique en 3D (4D).

Les résultats obtenus sur le site de Sleipner (Norvège) après injection de CO2 en 1994, traduisent une déformation vers le bas, dite en « push and down » en-dessous de l'accumulation de CO2, des roches de l'aquifère. Cette déformation précède la migration verticale vers le haut, par diffusion du CO2, à travers la zone de couverture. Le CO2 extrait la matière organique des shales, diminuant ainsi la capacité de confinement de la roche imperméable su-jacente (figure 2).

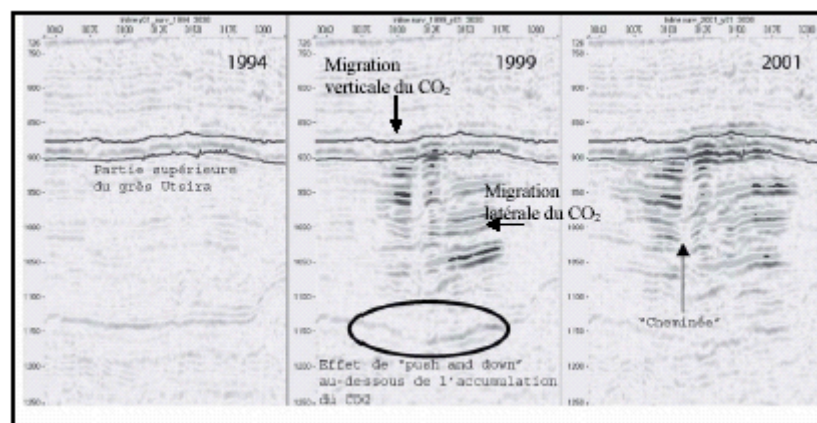


Figure 2 : Monitoring du CO2 dans la formation Utsira, Champ de Sleipner, en 3 dates : 1994, avant le début de l'injection, 1999, après l'injection de 2,3 Mt et en 2001, après l'injection de 4,4 Mt.

- Sismique par réflexion de surface

Par rapport à la tomographie sismique cette technique présente une meilleure résolution spatiale, mais pour des échelles d'étude plus petites. Cependant on ne connaît pas encore assez bien les caractéristiques sismiques propres au CO2. Il est donc difficile de le visualiser sur un diagramme. Il est peut-être possible de le suivre grâce aux déformations qu'il peut engendrer dans son encaissant.

Le couplage des méthodes de tomographie et de sismique réflexion permettrait d'avoir une vision plus représentative de l'évolution spatio-temporelle du CO2 dans l'aquifère. Pour cela il semble nécessaire d'utiliser plusieurs sites d'acquisition de mesures, par sismique réflexion, au sein du réservoir. Mais ces techniques restent encore onéreuses.

- Méthodes électriques

Ces méthodes sont sensibles à la nature des roches et à la formation de fluides, ce qui est bon pour le suivi du CO2 à haute résolution. Les techniques diagraphiques mesurent la résistivité, la porosité (neutron-densité), le gamma ray, etc. Les enregistrements diagraphiques des réservoirs se font ponctuellement.

La multiplication des mesures diagraphiques permet de mieux appréhender la géométrie des réservoirs. En revanche, il est nécessaire de creuser des puits pour effectuer ces mesures, qui seront autant de chemins favorables à la fuite du CO2.

- Imagerie par résonance magnétique

Cette technique d'étude est naissante et doit être mise au point à l'échelle du terrain. Elle est beaucoup utilisée dans des expériences de laboratoire ayant pour rôle d'extrapoler la réalité. Cependant l'outil présente l'avantage d'établir une imagerie en trois dimension d'une grande résolution des structures lithologiques, mais son efficacité n'a été révélée qu'en laboratoire (petite échelle) et reste à être développée et adaptée à l'échelle d'un aquifère.

Toutes ces méthodes relatent le comportement du CO2 en profondeur (son trajet, ses interactions) au cours du temps mais n'exprime pas de manière fiable la quantification des fuites. La mesure de la proportion de CO2 qui migre vers la surface n'est pas au point et sollicite des perfectionnements ainsi que de nouvelles méthodes d'analyses.

Proposition de techniques ou d'amélioration de techniques

Méthodes géophysiques et imagerie satellitaire :

Les mesures géophysiques in-situ ne quantifient pas de façon significative le taux de fuite du CO2. La modélisation permet d'extrapoler ces mesures et ainsi proposer une visualisation plus probable, mais théorique, de la réalité.

Les principes de modélisation nécessitent la prise en compte de nombreux paramètres critiques comme : l'évolution de la porosité au cours de la fuite de CO2, la viscosité, la thermo-barométrie, le taux de précipitation, la salinité, la densité, la solubilité. L'ensemble de ces paramètres, calculés dans le temps, permettent de définir une cinétique de fuite du CO2 et par conséquent, d'appréhender l'intégrité de l'efficacité du stockage.

On peut prendre comme exemple le champ de Sleipner où des travaux ont été fait sur l'évolution d'une bulle de CO2 dans sa roche hôte, pour établir une prévision de ce que deviendra le CO2 dans le temps sur une échelle chronologique large (à l'échelle humaine) d'environ 4000 ans via une modélisation algorithmique quantitative 2D (figure 3). La modélisation de l'évolution d'une bulle se base sur les caractères ponctuels du CO2 et de sa roche environnante.

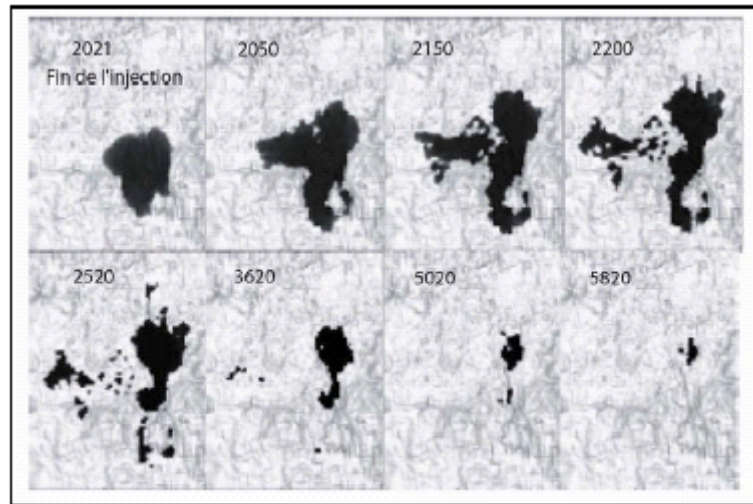
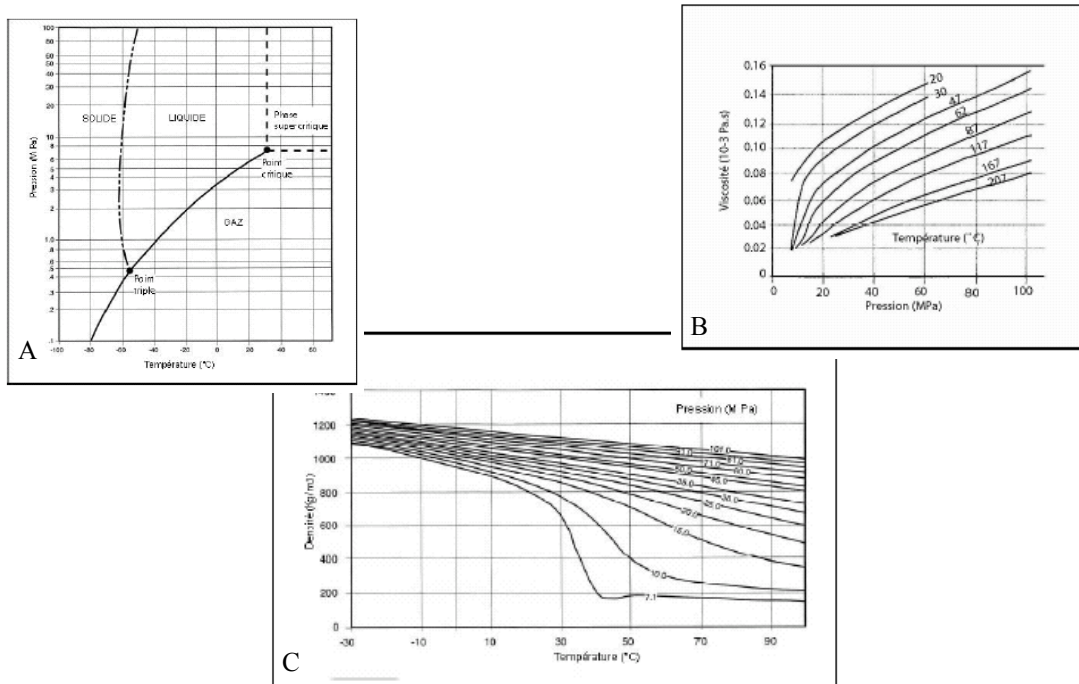


Figure 3 : Modélisation de l'évolution d'une bulle de CO2 après la fin d'injection dans le champ de Sleipner dans l'année 2021, jusqu'à 5820 quand sa dissolution dans l'eau de mer sera presque complète. Modèle 2D, 10 m largeur et 13 m de profondeur.

D'autres modélisations 2D basées sur des paramètres généraux ont mis en évidence l'évolution de la densité en fonction de la température, la viscosité en fonction de la pression, la pression en fonction de la température qui relate le domaine d'existence de la phase supercritique du CO2, la solubilité du CO2 dans l'eau pure soit en fonction de la température, soit en fonction de la salinité (figure 4).



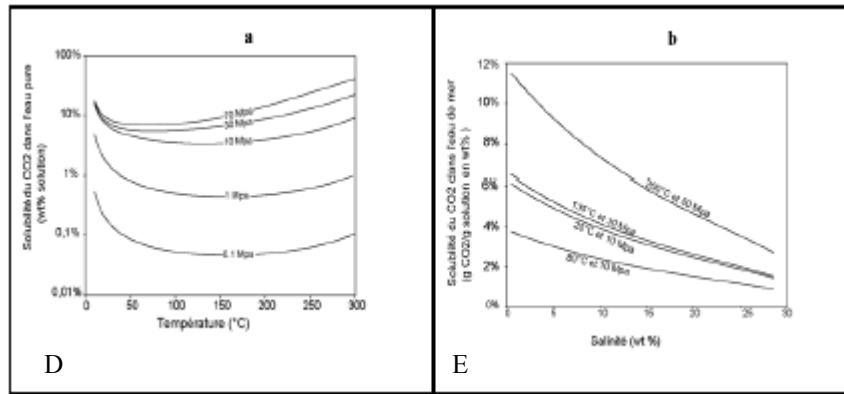


Figure 4 : Diagramme binaires de l'évolution du CO₂ en fonction de paramètres critiques (D'après Bachu, 2002) . A, diagramme de phase du CO₂ ; B, Viscosité du CO₂ et sa variation par rapport à la pression et température ; C, Variation de la densité du CO₂ par rapport à la pression et à la température ; D, Variation de la solubilité du CO₂ dans l'eau pure par rapport à la température et la pression et E, par rapport à la salinité de l'eau de mer (D'après Bachu et Adams, 2003).

Ce qu'il manque vraisemblablement se sont les modélisations 3D à l'échelle de l'aquifère qui pourraient souligner les différences de célérité dans les modes de fuite du CO₂ au sein de la roche encaissante, car le milieu géologique est hétérogène (critères géomécaniques, structuraux et minéralogiques). Cependant la modélisation 3D nécessite des équations plus élaborées (dont les paramètres ne sont pas encore tous définis), donc des temps de calculs plus longs et des nouvelles techniques d'acquisition des données sur le terrain. Par exemple, mesurer à l'aide des satellites passifs, dont les capteurs sont calés sur le spectre de l'infrarouge émis par la Terre, pour mesurer le taux des raies absorbées par le CO₂. Le CO₂ est un gaz qui absorbe certaines raies lumineuses qui émettent dans l'infrarouge. Ainsi on peut aisément, non seulement suivre le CO₂ horizontalement au sein de l'aquifère, mais aussi quantifier sa cinétique de diffusion.

Cette technique est utilisée par les archéologues pour souligner la présence de chambres souterraines, donc remplies d'une masse de gaz qui absorbent l'infrarouge.

Il reste à connaître le pouvoir de résolution des capteurs du satellite ainsi que la profondeur de détection que l'on peut atteindre.

Méthodes géochimiques

Les techniques géochimiques permettent de mesurer les ratios isotopiques qui mettent en évidence la proportion de fuite du CO₂. Cependant les techniques de mesure demeurent encore floues.

Conclusion :

Il résulte des différentes techniques géochimiques et géophysiques abordées dans cette étude que le CO₂ anthropique semble possible à stocker. Il existe quelques candidats adéquats quant à leur capacité de confinement (ex : aquifère profond ou gisement pétrolier abandonnés). Cependant il reste difficile de suivre le trajet du CO₂ au sein de l'encaissant et de quantifier son taux de fuite.

Les techniques de capture du CO2 et de sa surveillance sont au carrefour de plusieurs disciplines chimiques et physiques (figure 5) :

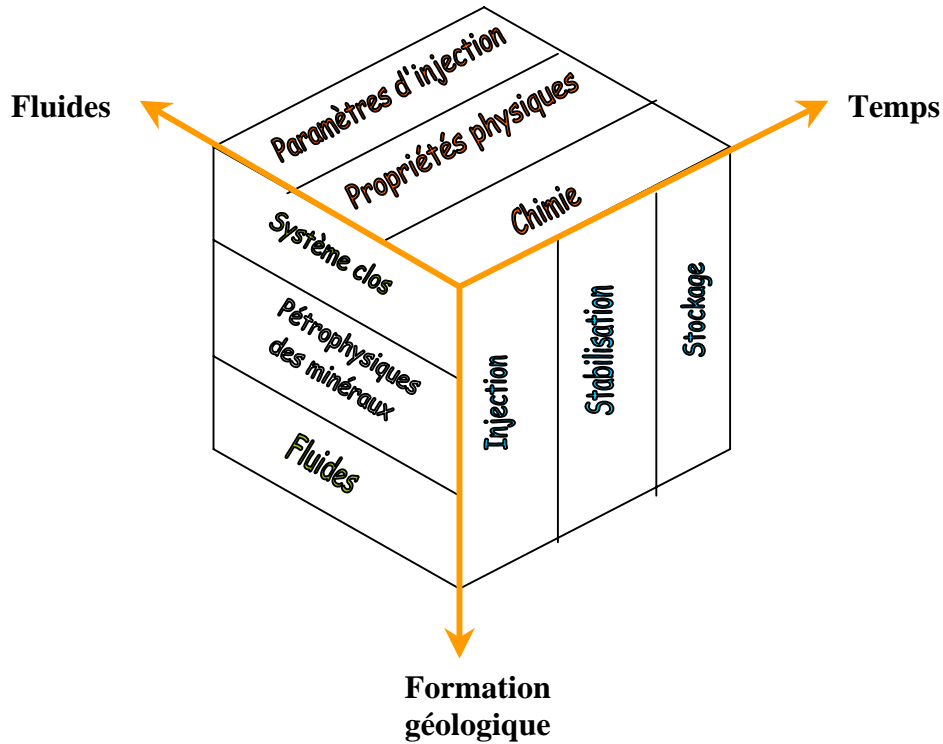


Figure 5 : Principes de stockage du CO2

Les différents gîtes de séquestration géologiques (ex : aquifère, gisement pétrolifère, etc.) ne sont pas seuls à être en mesure de piéger le CO2. Il existe aussi une séquestration de type biologique du CO2, où les végétaux absorbent le CO2 atmosphérique nécessaire au fonctionnement de leur métabolisme. Un autre état de séquestration très peu étudié actuellement serait la séquestration océanique, par l'injection, non pas de CO2 gazeux, mais plutôt de blocs de CO2 dans les fonds océaniques (figure 6).

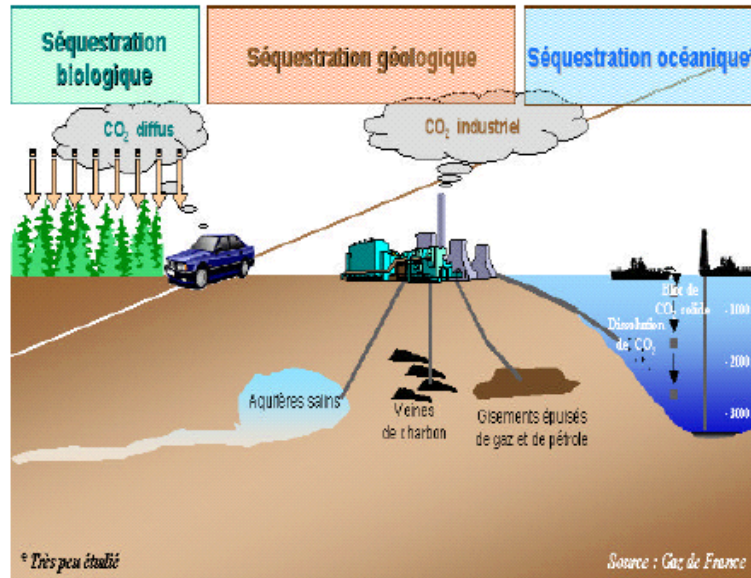


Figure 6 : Les différentes voies de stockage du CO₂

Combien de temps pourrions-nous utiliser ce type de stockage, s'il est potentiellement fiable, afin de réduire de façon durable la quantité de CO₂ émis dans l'atmosphère lié à l'activité humaine, responsable de l'exagération de l'effet de serre ?

Références bibliographiques :

- Bouchard, R., Delaytermoz, A., 2003. Integrated path towards geological storage : Totalfinal approach. In : Greenhouse Gas Control Technologies, J. Gale and Y. Kaya, 2003. Elsevier Science Ltd.
- Feugier, A.. Une réponse à l'effet de serre : la séquestration du CO₂. Extrait de la lettre énergies et matières premières n°20. IFP.
- Huet, S., 2001. Carbone : retour à l'expéditeur, le sous-sol de la mer du Nord.
- Miranda-Barbosa, E., Bonneville, A., Agrinier, P., Bourdon, B., Zuddas, P.P., 2004. Etude des risques de fuite vers la surface ou vers un aquifère du CO₂ stocké dans un aquifère profond. IPGP, 1-37.

Sites Internet consultés :

- <http://www.nrsc.no/New/coto.htm>
- <http://www.gdf.fr>
- <http://www.industrie.gouv.fr/energie/prospect/textes/sequestration.htm>