HAL
open science

# Stockage géologique du CO2 : capacité de stockage et surveillance des sites

Delphine Charriere, Zbigniew Pokryszka

## To cite this version:

Delphine Charriere, Zbigniew Pokryszka. Stockage géologique du CO2 : capacité de stockage et surveillance des sites. Rapport Scientifique INERIS, 2008, 2007-2008, pp.109-112. ineris-01869210

**HAL Id: ineris-01869210**

**https://ineris.hal.science/ineris-01869210**

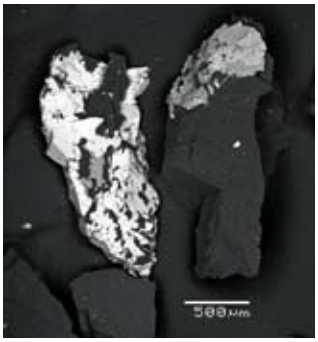
Submitted on 6 Sep 2018

**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.

# Stockage géologique du $CO_2$ : capacité de stockage et surveillance des sites

> DELPHINE CHARRIÈRE, ZBIGNIEW POKRYSZKA




> Image MEB des grains du charbon broyé du bassin de Lorraine.

#1

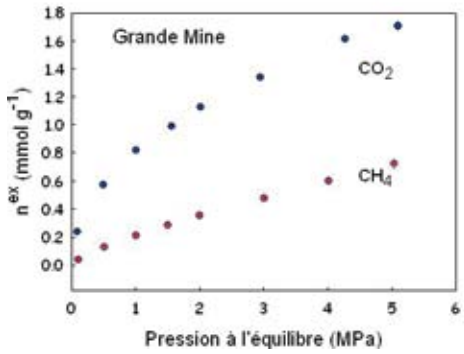
Pour faire face à la problématique du réchauffement climatique résultant, pour grande partie, de l'augmentation de la teneur de gaz à effet de serre dans l'atmosphère, plusieurs solutions de mitigation sont à l'étude. En complément de la réduction des consommations d'énergie et de l'utilisation des énergies renouvelables, l'une d'entre elles consiste à analyser la possibilité de stocker le $CO_2$ produit par certaines activités industrielles au sein de sites géologiques.
Trois possibilités de stockage géologique dans le sous-sol sont envisagées : au sein de réservoirs de gaz/pétrole déplétés, dans les aquifères profonds non valorisables et au sein des gisements de charbon non exploités.
Les équipes de l'INERIS sont fortement engagées dans l'étude de cette dernière technique de stockage. Le stockage dans les gisements de charbon permet, en effet, un piégeage difficilement réversible du gaz, ce qui limite la probabilité de fuite. Il peut aussi présenter, dans certains contextes, un intérêt économique, compte tenu d'une possibilité de récupération associée du gaz combustible naturel (méthane) souvent contenu dans les gisements houillers.
Les objectifs des travaux de recherche visent notamment à évaluer les capacités potentielles de stockage d'environnements houillers en étudiant particulièrement les phénomènes d'adsorption des molécules de $CO_2$ dans le charbon mais également les conditions de transport du gaz jusqu'aux sites d'adsorption. Une thèse à connotation fortement expérimentale est actuellement en cours sur cette problématique qui s'appuie notamment sur plusieurs programmes de recherche collaborative (programme METSTOR financé par l'ADEME, programme CHARCO financé par l'ANR).
Plus transversale, la thématique de surveillance des potentiels futurs sites de stockage (détection de fuite éventuelle vers la surface et en profondeur) couvre l'ensemble des types de stockage géologique les plus étudiés. Bénéficiant d'un retour d'expérience unique de plusieurs décennies dans le cadre de la surveillance des émissions gazeuses d'origine géologique (thématique de la sécurité des mines de charbon assurée par le CERCHAR), l'INERIS développe des outils de surveillance et de mesure du flux gazeux, en surface et en profondeur, qui permettront à terme d'alerter sur un dysfonctionnement éventuel du stockage. Là encore, ces développements s'appuient sur un partenariat fort avec le BRGM, l'IFP, Total, l'INPL, Gaz de France, Schlumberger et Géostock, qui se matérialise au travers de divers projets ANR.

## PARAMÈTRES INFLUANT SUR L'ADSORPTION DU $CO_2$ SUR LE CHARBON

Le travail de recherche est principalement orienté sur les caractéristiques d'adsorption du $CO_2$ et du $CH_4$ d'échantillons de charbon de deux bassins représentatifs des gisements houillers français : le bassin de Lorraine et le bassin de Gardanne. Ces deux gisements présentent, par ailleurs, un fort potentiel pour le stockage du $CO_2$ [1].
Les mesures expérimentales mises en œuvre dans les laboratoires de l'INERIS sont les premières réalisées sur ces charbons dans le but d'étudier la faisabilité du stockage du $CO_2$ au sein de terrains houillers français. Les expériences d'adsorption sont principalement mises en œuvre à l'aide d'une balance à suspension magnétique, qui permet de mesurer, avec une très grande précision, la masse de gaz adsorbée au cours du temps. Différentes isothermes d'adsorption ont ainsi pu être déterminées pour des pressions allant jusqu'à 5 MPa et, ce, à des teneurs hygrométriques différentes et pour des échantillons de charbon broyés selon différentes tailles de grains (figure 1).
Au vu des résultats, la capacité et la cinétique de sorption de gaz sur le charbon dépendent de plusieurs paramètres, notamment [2, 3] :

- la température : l'augmentation de la température permet d'atteindre l'équilibre de sorption plus rapidement, en revanche, elle influe négativement sur la capacité d'adsorption ;
- la nature du gaz : dans les conditions expérimentales étudiées, l'équilibre est atteint plus rapidement pour la sorption de $CO_2$ que pour celle de $CH_4$. Par ailleurs, la capacité d'adsorption

#2



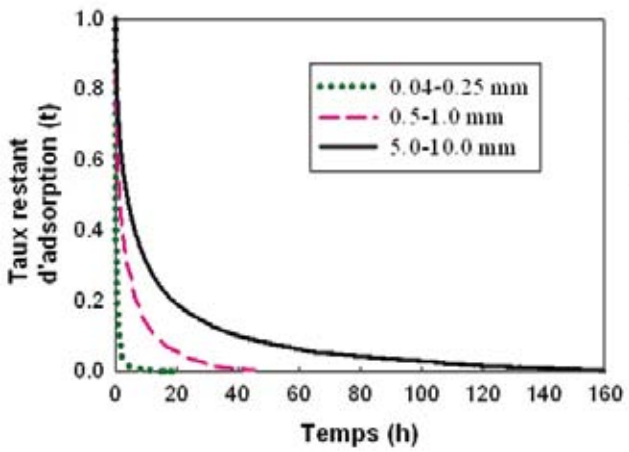

> Isothermes d'adsorption du $CO_2$ et du $CH_4$ sur le charbon du bassin de Gardanne séché à 298 K.

du $CO_2$ sur le charbon apparaît nettement plus importante que celle du $CH_4$ (figure 2) ;

- l'humidité : pour les échantillons de charbons humides, la vitesse de sorption des deux gaz étudiés est réduite d'un facteur 2 à 3 selon le taux d'humidité initial en comparaison aux essais sur les charbons séchés. De même, l'humidité est un paramètre qui influence négativement la capacité d'adsorption de gaz. Elle peut aussi modifier les conditions de récupération de méthane en ralentissant fortement sa désorption [5].

Dans la pratique, de nombreux autres paramètres sont à prendre en compte comme la nature du charbon, la teneur et la composition de la phase minérale et la granulométrie du charbon, cette dernière n'influant que sur la cinétique de sorption (figure 3).

#3




> Influence de la granulométrie sur la cinétique de sorption du $CO_2$ à 298 K sur le charbon du bassin de Lorraine séché.

## LA MODÉLISATION POUR UNE MEILLEURE COMPRÉHENSION DE LA STRUCTURE DU CHARBON

La structure du charbon naturel est microporeuse et hétérogène. Le gaz, avant de se fixer sur le charbon, circule dans cette structure. L'étude du transport du gaz dans le charbon est importante pour connaître son cheminement entre son point d'injection au niveau du puits et le site d'adsorption au sein de l'horizon houiller.

En partenariat avec l'Institut National Polytechnique de Toulouse, les données cinétiques obtenues expérimentalement sont utilisées :

- pour décrire la diffusion du gaz dans les charbons étudiés,
- pour mieux comprendre la structure du charbon,
- pour comparer l'interaction de $CO_2$ et du $CH_4$ vis-à-vis des charbons aussi bien du point de vue cinétique que thermodynamique.

Pour ce faire, un modèle unipore (grains sphériques monodisperses) a été utilisé [3]. Il permet d'obtenir une première estimation des paramètres de diffusion de gaz dans un terrain houiller particulier, même s'il ne permet pas un bon ajustement des données.

Les paramètres obtenus (coefficients de diffusion et énergie d'activation), par l'interprétation de ce modèle, pour l'adsorption du $CO_2$ à 0,1 MPa montrent que la quantité d'énergie nécessaire pour l'adsorption du $CO_2$ sur le charbon apparaît relativement faible (20 kJ $mol^{-1}$ $CO_2$) mais que la diffusion dans la matrice s'avère lente ($10^{-12}$ $m^2$ $s^{-1}$). Dans une prochaine étape, une modélisation des données expérimentales à l'aide d'un modèle bidisperse permettra d'aller plus avant dans la caractérisation et la modélisation de la diffusion pour des conditions expérimentales plus variées avec notamment des compétitions $CO_2/CH_4$ en présence ou non d'eau.

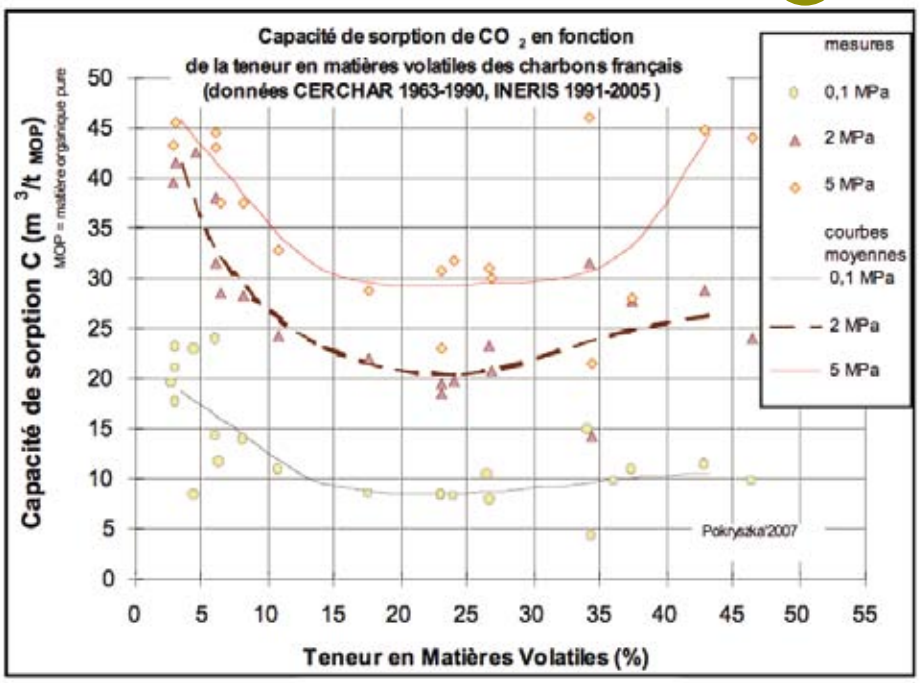
Ces résultats prometteurs serviront de base lors de l'élaboration de modèles de transport de gaz en milieu houiller. Ils visent à prédire à moyen terme la capacité d'adsorption des veines de charbons étudiées et la possibilité de récupération de méthane si celui-ci est présent dans le gisement.

## L'ÉVALUATION DE LA CAPACITÉ DU STOCKAGE

En parallèle, les isothermes d'adsorption de $CO_2$ sont établies sur les différents charbons disponibles. Ce travail permet d'étoffer progressivement la première base restreinte de données issues des résultats acquis dans les années 1960-70 au CERCHAR. Une partie des échantillons traités est acquise dans le cadre des échanges entre les partenaires du programme ANR CHARCO.

Un premier bilan des résultats a permis d'établir une relation très intéressante présentée sur la figure 4.

#4



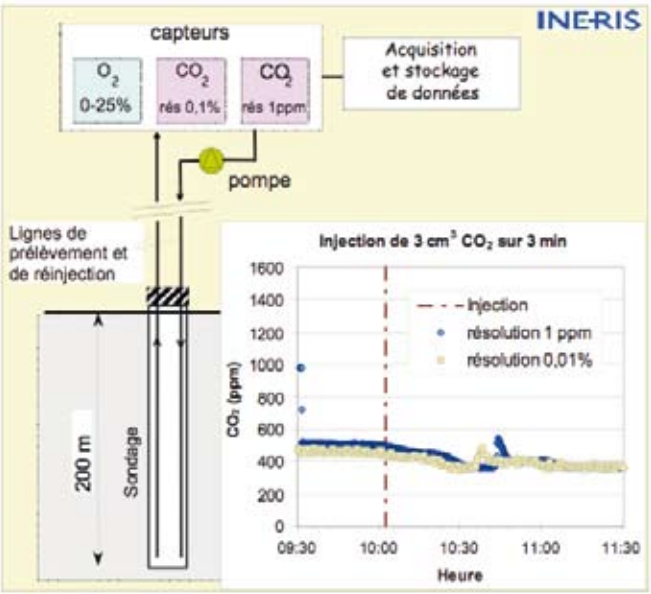

> Capacité d'adsorption du $CO_2$ pour certains charbons français, en fonction de leur teneur en matières volatiles, à différents niveaux de la pression d'équilibre.

Elle montre la capacité d'adsorption du $CO_2$ en fonction de la teneur en matières volatiles, le paramètre français a priori le plus représentatif de la nature des charbons français et de ses propriétés d'adsorption. Cette relation peut être utilisée pour évaluer, en une première approche, les capacités de stockage du $CO_2$ dans les gisements houillers à partir de la connaissance de la teneur en matières volatiles, paramètre relativement bien connu pour les charbons français.

## SURVEILLANCE DE SITES DE STOCKAGE

Après l'injection de grandes quantités de $CO_2$, les futurs sites de stockage seront surveillés pour détecter et quantifier les fuites éventuelles de gaz, du réservoir vers l'atmosphère. Pour ce faire, il est nécessaire de développer et valider des méthodes de détection de ces fuites afin d'élaborer des démarches méthodologiques et protocoles expérimentaux qui s'avèreront essentiels à l'exploitation des futurs sites de stockage [4]. Compte tenu de

#5




> Principes du système de prélèvement et d'analyse de gaz en profondeur et exemple de simulation et de détection d'une fuite de $CO_2$.

sa grande expérience dans les domaines de la mesure et du contrôle des émissions gazeuses, l'INERIS a développé un appareillage innovant (chambre d'accumulation), capable d'identifier et de quantifier le flux de $CO_2$ à l'interface sol/atmosphère, sans perturber les conditions de prélèvement [6]. Cette méthode permet de mesurer des flux sur une large gamme allant de 0,1 à 4000 $cm^3$ $min^{-1}$ $m^{-2}$.
Par ailleurs, les travaux de développement portent sur la mise en œuvre de mesure de gaz au sein de couches intermédiaires, voire profondes, du recouvrement. Dans cette perspective, un dispositif de prélèvement et d'analyse de gaz en souterrain a été développé et est mis en œuvre sur divers sites expérimentaux exploités dans le cadre de différents projets ANR (GéoCarbone Monitoring, Sentinelle, etc.). Ce système a d'ores et déjà montré sa capacité à détecter et à mesurer des fuites très faibles de $CO_2$ (quelques $mm^3$/min à quelques $cm^3$/min) lors d'expérimentations de simulation de fuite *in situ* (figure 5).

## [ RÉFÉRENCES


**[1]** Bonijoly D., Pokryszka Z., Brunello J.-M., 2006. *Storage-capacity assessment for $CO_2$ captured from FCB power plants in France - Aquifer storage vs ECBM recovery.* Proceedings. International symposium on site characterization for $CO_2$.

**[2]** Charrière D., Pokryszka Z., Behra P., Didier C., 2007. *Gas sorption on the coal characterisation: research of French coal basin to $CO_2$ sequestration.* 1st French-German Symposium on Geological Storage of $CO_2$, 21-22 juin 2007, Potsdam.

**[3]** Charrière D., Behra P., Pokryszka Z., 2008. *Thermodynamic and kinetic processes at coal interface for $CO_2$ geological storage.* 5th International Conference « Interfaces Against Pollution ». 1-4 juin 2008, Kyoto.

**[4]** Fabriol H., Becquey M., Huguet F., Lescanne M., Pironon J., Pokryszka Z., Vu Hoang D., 2007. *On going investigations to design the monitoring program for a $CO_2$ storage project in the Parisian basin (France).* 6th Annual conference on carbon capture and sequestration, 7-10 mai 2007, Pittsburgh.

**[5]** Pokryszka Z., Krause E., 2007. *Émissions de méthane à partir des couches de charbon ennoyées, dans les mines arrêtées.* Mining and Environment N° IV/2007, ISSN 1643-7608, Central Mining Institute eds., Katowice 2007.

**[6]** Pokryszka Z., Charmoille A., Bentivegna G., 2007. *Développement des méthodes du suivi géochimique en phase gazeuse à la surface et dans la couverture intermédiaire des sites de stockage géologique du $CO_2$.* Séminaire ANR « Captage et stockage du $CO_2$ », 12-13 décembre 2007, Pau.



## SUMMARY

Currently, the geological storage of $CO_2$ is heavily studied around the world in order to limit global warming due to the greenhouse effect. The atmospheric $CO_2$, which has been steadily increasing for more than a century, is assumed to be in a large part responsible of this warming. Nowadays, various options have been considering to store $CO_2$ in an underground environment for periods covering several centuries. Among the options, one is to inject it in unexploited coal seams. INERIS are involved in studying this possibility of $CO_2$ geological storage. It may also present in some contexts, an economic interest, if fuel natural gas (methane) is present in coal seams (ECBM: Enhanced CoalBed Methane).
The objectives of researches aim at assessing the capacity of storage of coal seams with the characterisation of $CO_2$ sorption onto French coals: sorption capacity and gas transport in coal structure. To determinate this parameters, an experimental work is currently underway in INERIS laboratories. To study the feasibility of $CO_2$ storage in coal seams, experiments of adsorption were performed using gravimetric technique for monitoring the kinetics and capacity of sorption. From our results, equilibrium is reached faster for $CO_2$ sorption than for methane sorption, while the adsorption capacity of $CO_2$ is higher than for the one of methane. During this experimental study, we showed that the gas sorption at coal interfaces is due to a set of complex mechanisms involving a diffusion transfer through macropores and micropores followed by adsorption onto the sites at coal surfaces.
Simultaneously, INERIS has developed methods for gaseous phase geochemical monitoring on surface as well as within the cap rock of geological $CO_2$ storage sites. The work undertaken was targeted at two specific approaches:
- Early detection (pre-alert), using analysis of gas samples taken from the base of the dedicated boreholes drilled from the surface into the intermediate cap rock strata.
- Detecting and quantifying the gaseous flux of $CO_2$ from the ground to the atmosphere.

These two approaches were successively developed in the laboratory and then applied and tested *in-situ*, under conditions that are as close as possible to those of the future storage sites.
The tests undertaken on a 200 meter deep borehole have shown that the detection of $CO_2$ leaks passing through the intermediate overburden strata was possible by sampling and continuous analyzing of the gas accumulating at the bottom of the borehole. Good results have especially been obtained when detecting small releases of gas that may represent an early warning sign prior to the appearance of a larger leak.
Directly measuring the gaseous flux from the ground is one of the most effective ways to monitor a storage site. The INERIS accumulation chamber method has been improved to measure low and very low fluxes of $CO_2$. It can now be used to measure a wide range of $CO_2$ flux, from very low emissions levels of 0,1 $cm^3.min^{-1}.m^{-2}$ up until extremely high flux rates of some 4,000 $cm^3.min^{-1}.m^{-2}$. These metrological and operational characteristics have been checked and validated by laboratory tests, on a test rig, as well as using in the field measurements at sites that naturally release $CO_2$. The two methods experimented are now operational and available, ready for integration into the surveillance strategy applied to future storage sites. They can be used throughout all of the steps in the life of a storage site: site reconnaissance, establishing the initial state, injection, post-injection phase, and residual monitoring after abandoning the site.