



**HAL**  
open science

## Faisabilité du stockage du CO<sub>2</sub> en gisement houiller et étude de l'adsorption du CO<sub>2</sub> sur le charbon

Zbigniew Pokryszka, Delphine Charriere, Jean-Marc Brignon

► **To cite this version:**

Zbigniew Pokryszka, Delphine Charriere, Jean-Marc Brignon. Faisabilité du stockage du CO<sub>2</sub> en gisement houiller et étude de l'adsorption du CO<sub>2</sub> sur le charbon. Rapport Scientifique INERIS, 2009, 2008-2009, pp.104-106. ineris-01869259

**HAL Id: ineris-01869259**

**<https://ineris.hal.science/ineris-01869259>**

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.

# Faisabilité du stockage du CO<sub>2</sub> en gisement houiller et étude de l'adsorption du CO<sub>2</sub> sur le charbon

{ Z. Pokryszka, D. Charrière, J.M. Brignon }

## RÉFÉRENCES

Pokryszka Z., Krause E. Dégagement de méthane des couches de charbon ennoyées dans les mines arrêtées. Mining & Environment. Research Reports of Central Mining Institute. Quarterly, n°IV/2007 ISSN 1643-7608.

Charrière D., Pokryszka Z., Behra P. Thermodynamics and kinetic processes at coal interface for CO<sub>2</sub> geological storage 5<sup>th</sup> International conference *Interfaces against pollution*, 1-4 June 2008, Kyoto, Japan, Abstracts book p. 106.

Charrière D., Pokryszka Z., Behra P. Cinétique de sorption du CO<sub>2</sub> dans le cadre du stockage géologique du CO<sub>2</sub> dans le charbon. Insertion des grands ouvrages dans leur environnement : actes des journées nationales de géotechnique et de géologie de l'ingénieur (JNGG 2008), 18-20 juin 2008, Nantes. Paris : LCPC, 2008, p. 297-304.

Van Hemert P., Bruining J., Susanne E., Rudolph J., Wolf K.H., Billefont P., De Weireld G., Gensterblum Y., Krooss B., Prinz D., Li D., Charrière D., Busch A. Preliminary results of european interlab comparison. 2008 Asia pacific coalbed methane symposium, 22-24 september 2008, Brisbane, Australia. [communication orale].

Fort de son expérience unique dans le domaine du charbon et de son interaction avec les gaz, l'INERIS joue un rôle central dans l'étude de la faisabilité de stockage de CO<sub>2</sub> dans les gisements houillers, notamment français. Cette implication s'est notamment traduite par le développement du programme de recherche VELCO<sub>2</sub>, qui contenait une très forte composante expérimentale et a contribué à constituer un laboratoire dédié à l'étude de l'adsorption « gaz-solide », mais qui s'est également attaché à intégrer à la réflexion les aspects économiques de la problématique. Une campagne ambitieuse d'essais de laboratoire a ainsi été menée pour différents environnements houillers français, permettant l'établissement d'isothermes caractéristiques de la nature des charbons et d'étudier le rôle de différents paramètres environnementaux sur le processus d'adsorption. Ce travail s'est notamment appuyé sur la thèse de Delphine Charrière soutenue en octobre 2009.

Parallèlement, a démarré depuis 2007, une recherche impliquant d'autres partenaires, intitulée CHARCO « Expérimentation et modélisation de l'échange de gaz dans les Charbons en vue d'un stockage du CO<sub>2</sub> - CharCO ». Financée par l'ANR, elle associe l'INERIS, le BRGM, l'INPL-LAEGO, l'Université d'Orléans, l'Université de Metz et TOTAL pour une durée de 4 ans.

## Identification de sites potentiels de stockage en France

Il s'est agi de pré-identifier les sites potentiels français dans lesquels un stockage de CO<sub>2</sub> pour-

rait être techniquement envisageable, compte tenu d'exigences requises : volume suffisant, confinement satisfaisant, etc. L'analyse des données géologiques et hydrogéologiques de nombreux gisements houillers français a permis de retenir deux zones :

- le secteur ouest du bassin houiller lorrain correspondant aux trois champs de réserve inexploités (Carling-Saint-Avold, Faulquemont-Sud et La Houve-Ouest) ;
- le secteur Gardanne-Aix-Velaux-Vitrolles dans le bassin de l'Arc (Provence).

Les secteurs identifiés se caractérisent par la présence d'importants secteurs de gisement non exploités qui se situent à proximité d'un ou plusieurs émetteurs importants de CO<sub>2</sub> : la centrale thermique Huchet pour le bassin lorrain, le complexe pétrochimique de Berre et la centrale de Gardanne pour le bassin de Provence.

## Développement des connaissances relatives au mécanisme d'adsorption de CO<sub>2</sub> sur le charbon

La part essentielle des travaux de laboratoire a consisté à estimer à l'aide d'une balance gravimétrique les capacités d'adsorption de certains charbons français et d'évaluer l'influence des paramètres affectant la liaison gaz-charbon – notamment pour les deux bassins houillers sélectionnés. Ainsi :

- la capacité d'adsorption de CO<sub>2</sub> varie très significativement selon les caractéristiques intrinsèques du charbon. La « maturité géologique » du charbon joue un rôle important dans la capacité d'adsorption de gaz. Pour les deux charbons sélectionnés, la capacité d'adsorption de CO<sub>2</sub> en phase gazeuse s'est

révélée importante : à une pression d'équilibre 5 MPa, elle est voisine de 2 mmol/g environ. La surface spécifique estimée pour ces deux charbons vis-à-vis du CO<sub>2</sub>, est de l'ordre de 200 à 400 m<sup>2</sup> g<sup>-1</sup>, valeurs également élevées ;

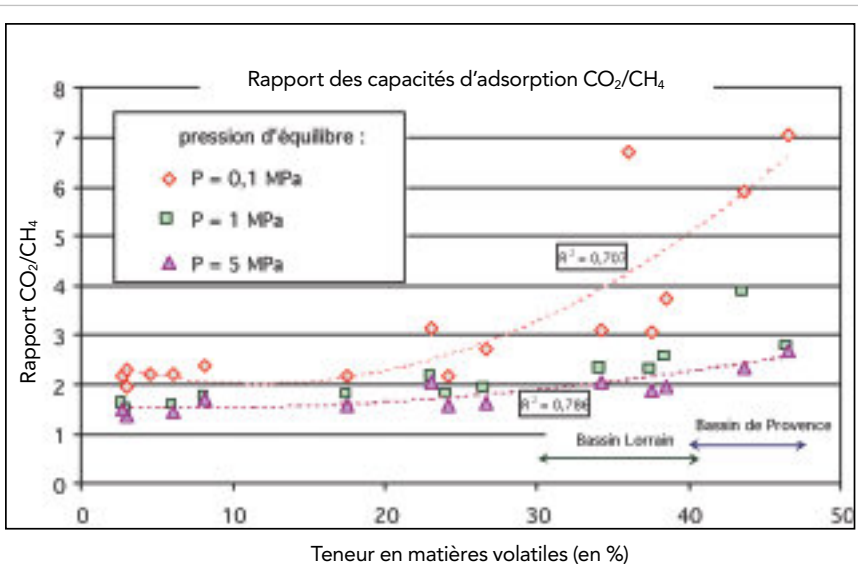
- la capacité d'adsorption du CO<sub>2</sub> en phase gazeuse à forte pression est en moyenne deux fois plus grande que celle du méthane (figure 1). De même, sa cinétique d'adsorption est bien plus rapide. Ceci confirme l'intérêt d'étudier la récupération assistée de CH<sub>4</sub> par injection de CO<sub>2</sub> dans les terrains houillers ;

- la teneur en eau des charbons réduit leur capacité d'adsorption de gaz, cependant cette influence est bien moindre pour le CO<sub>2</sub>, comparativement au méthane. Des expériences avec des charbons à plus forte teneur en eau sont actuellement réalisées dans le cadre du programme ANR CHARCO ;

- la température est un paramètre qui joue un rôle ambivalent. La liaison gaz-charbon repose sur l'adsorption physique, il s'agit essentiellement de condensation de molécules de gaz sur la surface du solide : ce processus est donc favorisé par une diminution de température. D'un autre côté, une température plus faible réduit l'agitation thermique, et donc augmente le temps d'équilibre de sorption ;

- en ce qui concerne l'étude des isothermes d'adsorption pour la liaison CO<sub>2</sub>-charbon, plusieurs modèles classiques ont été étudiés, et le modèle le plus simple de Langmuir s'ajuste aux données expérimentales avec un très bon coefficient de corrélation. La chaleur d'adsorption évaluée pour le CO<sub>2</sub> est comprise entre 20 et 30 kJ mol<sup>-1</sup>, ce qui confirme que la liaison CO<sub>2</sub>-charbon est une liaison physique ;

- la modélisation de cinétique de sorption à partir d'un modèle unipore a permis d'estimer un coefficient de diffusion de CO<sub>2</sub> dans le charbon de l'ordre de 10<sup>-12</sup> m<sup>2</sup> s<sup>-1</sup>, qui peut servir de référence dans les modèles numériques de stockage de gaz dans le charbon. Cette faible valeur montre le besoin de résoudre le problème d'accessibilité des veines de charbon au gaz injecté. Par ailleurs, l'énergie d'activation du CO<sub>2</sub> à 25 °C a été estimée à 18 kJ mol<sup>-1</sup>, montrant que peu d'énergie est nécessaire pour son adsorption, dès lors que le gaz se trouve en contact avec la structure interne du charbon.



Relation entre la capacité d'adsorption du CO<sub>2</sub> et du méthane pour certains charbons français en fonction de leur teneur en matières volatiles.

#1

### Faisabilité technique et économique

Afin d'évaluer sur le plan technique la capacité de stockage du CO<sub>2</sub>, plusieurs scénarios ont été étudiés, permettant d'estimer des capacités de stockage de l'ordre de plusieurs dizaines de millions de tonnes de CO<sub>2</sub> dans chacun des deux secteurs étudiés.

Les résultats obtenus sont très encourageants. Par exemple, ils montrent, selon les hypothèses retenues (extension de la zone concernées, nombre de veines concernées, accessibilité du charbon), une capacité théorique pour stocker pendant une à plusieurs décennies les émissions de CO<sub>2</sub> des centrales thermiques situées à proximité des sites étudiés.

Diverses simulations économiques ont été mises en œuvre sur cette même centrale thermique qui produit environ 3 000 GWh et émet près de 3 Mt<sub>CO<sub>2</sub>/an</sub>. Une revue bibliographique a permis d'établir un coût global du système de l'ordre de 85 €<sub>2007</sub>/t CO<sub>2</sub>, incluant l'ensemble de la chaîne, depuis le captage du CO<sub>2</sub> (qui constitue l'essentiel des coûts) jusqu'au stockage et à la surveillance, avec une hypothèse de captage par absorption sur les amines (MEA).

### RÉFÉRENCES

Charrière D., Pokryszka Z., Behra P. *Study of coal surface characteristics for CO<sub>2</sub> geological storage*, International conference on coal and organic petrology, 22-27 september 2008, Oviedo.

Bonijoly D., Ha Duong M., Leynet A., Bonneville A., Broseta D., Fradet A., Le Gallo Y., Munier G., Lagny C., Lagneau V., Nedelec B., Pokryszka Z. *et al.* : METSTOR: a GIS to look for potential CO<sub>2</sub> storage zones in France 9<sup>th</sup> International conference on greenhouse gas technologies (GHGT 9), 20 novembre 2008, Washington, USA.

Charrière D., Pokryszka Z., Behra Ph., Effect of pressure and temperature on diffusion of CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> into coal from the Lorraine basin (France). Article soumis à la revue *International Journal of Coal Geology* en décembre 2008.

Il s'agit plutôt d'une estimation haute, et le coût pourrait être réduit jusqu'à des valeurs proches de 35 €<sub>2007</sub>/t CO<sub>2</sub> avec des hypothèses moins prudentes et en utilisant des techniques de captage plus innovantes au lieu de l'adsorption sur les amines (MEA).

### Conclusions et perspectives

Les principaux résultats obtenus encouragent à la poursuite des recherches pour la mise en œuvre de stockage au sein d'horizons houillers. Les éléments scientifiques et économiques tendent à confirmer la faisabilité du processus, tout en identifiant que le

principal verrou technologique à lever sera vraisemblablement la diffusion du CO<sub>2</sub> au sein du massif.

Il reste donc à mieux quantifier ce dernier aspect, ainsi que la cinétique du phénomène, par des démarches menées parallèlement en laboratoire et *in situ*. Un intérêt tout particulier est à porter à la configuration d'une injection de CO<sub>2</sub> au sein d'un gisement déjà riche en CH<sub>4</sub> (phénomène d'adsorption-désorption). L'objectif est de valoriser le méthane comme une ressource énergétique (Enhanced Coal Bed Methane- ECBM).

### ABSTRACT

Since 2006, the VELCO<sub>2</sub> project initiated by INERIS studied the geological storage of CO<sub>2</sub> in unminable coal seams. Two coal basins have been identified for a possible storage in France: Lorraine basin and Arc basin in Provence. Coal samples originated from these basins were selected to perform CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> sorption experiments with a suspension magnetic balance at INERIS.

Several conclusions may be made: (i) CO<sub>2</sub> is twice more adsorbed than CH<sub>4</sub>, (ii) the moisture of coal is a parameter that negatively influences the adsorption capacity of gases, (iii) the sorption capacity of CO<sub>2</sub> on coal decreases with increasing temperature, but the sorption kinetics is accelerated. Experiments have shown that the interaction between coal and CO<sub>2</sub> is essentially a physical sorption and that the diffusion coefficient of CO<sub>2</sub> is about 10<sup>-12</sup> m<sup>2</sup> s<sup>-1</sup>.

From laboratory results, CO<sub>2</sub> capacity storage has been evaluated for the two areas studied. These estimations are promising and show that the storage of CO<sub>2</sub> emitted by nearby energy facilities would be feasible for one to several decades. The feasibility was also studied from the economic point of view. All elements investigated show the interest of studying further this way of storing CO<sub>2</sub> - provided we success in enhancing the diffusivity of CO<sub>2</sub> within coal. High sorption potential of CO<sub>2</sub> also suggests that it will be possible to recover methane that is initially adsorbed in coal (Enhanced Coal Bed Methane ECBM).