



Stockage géologique du CO₂ : l'étanchéité des puits

Anne-Catherine DIEUDONNÉ

Travail de fin d'études en vue de l'obtention du grade d'**Ingénieur Civil des Mines et Géologue**

Promoteur : **Professeur Robert Charlier**

Année académique 2010 - 2011

Remerciements

Je tiens à remercier mon promoteur, le Professeur Robert Charlier, pour son encadrement, ses conseils et sa disponibilité tout au long de ce mémoire.

Je remercie également l'ensemble des membres du jury, Messieurs Dassargues et Courard, professeurs à l'Université de Liège, ainsi que Monsieur Giot, maître de conférences à l'Ecole Nationale Supérieure de Géologie de Nancy, qui ont accepté d'examiner ce travail.

Mes remerciements vont ensuite à l'ensemble de l'équipe de géomécanique. Tous, par leurs conseils, leur soutien et leur aide, ont contribué de près ou de loin à l'élaboration de ce mémoire. Je tiens à les en remercier très chaleureusement. Je remercie en particulier Messieurs Frédéric Collin et Jean-Pol Radu pour leur aide dans l'utilisation du code de calcul LAGAMINE. Un grand merci également à Pierre Gerard de m'avoir fait profiter de son expérience et de ses connaissances dans le domaine des transferts de gaz.

Enfin, mes derniers remerciements vont à mes amis et mes proches qui m'ont aidée, soutenue et bien souvent supportée pendant ce dernier semestre. Un grand merci à Thomas pour ses encouragements et sa relecture.

Résumé

Titre du travail : Stockage géologique du CO₂ : l'étanchéité des puits

La filière du captage et du stockage géologique de CO₂ est une approche innovatrice pour combattre le changement climatique en réduisant les émissions de gaz à effet de serre. Actuellement peu étudiées, certaines anciennes mines de charbon pourraient servir de réservoir pour la séquestration du dioxyde de carbone. Le problème de l'étanchéité des anciens puits de mine apparaît cependant comme central lorsqu'il s'agit d'assurer les enjeux de sécurité, économiques, écologiques et sanitaires liés au stockage de CO₂. L'objectif de ce travail est ainsi d'étudier l'étanchéité des puits dans le cadre de projets de séquestration géologique de CO₂. Plus précisément, le problème consiste en l'étude numérique, à l'aide du code aux éléments finis LAGAMINE, des transferts de gaz autour du système de scellement d'un puits. Un modèle hydromécanique de matériaux poreux partiellement saturés est présenté. La réponse du modèle d'écoulement est d'abord étudiée au travers d'un cas synthétique simple simulant l'injection de gaz dans une colonne de béton. Il ressort de cette première modélisation que l'advection de la phase gazeuse représente le principal mode de transport du CO₂ dans un milieu faiblement saturé. En outre, la mise en place d'une barrière d'étanchéité de bentonite permet de limiter considérablement les flux de gaz vers la biosphère. Une modélisation hydromécanique 2D axisymétrique inspirée de l'ancien site de stockage de gaz naturel d'Anderlues est ensuite réalisée. L'architecture du système de scellement utilisé apparaît comme un élément déterminant pour l'évaluation du risque de fuite de CO₂.

Abstract

Title : CO₂ geological storage : shaft sealing

Carbon capture and storage is an innovator approach to fight climate changes through the reduction of greenhouse gas emissions. Abandoned coal mines are currently less studied than other reservoirs but could also be used for the storage of carbon dioxide. However the problem of shaft sealing appears to be central as far as the safety, economic, ecologic and health stakes of geological storage are concerned. The purpose of the present work is the study of shaft sealing in the framework of CO₂ storage projects. More precisely the problem consists in the numerical study, with the LAGAMINE finite elements code, of gas transfers around a shaft seal system. A coupled hydro-mechanical model of unsaturated geomaterials is presented. The response of the flow model is first studied through a simple synthetic problem simulating the injection of gas in a concrete-made column. It stands out of this first modeling that the advection of the gas phase represents the main transfer mechanism of CO₂ in highly unsaturated materials. Furthermore the setting of a bentonite barrier seal allows limiting considerably gas influx to the biosphere. A 2D axisymmetric hydromechanical modeling of the Anderlues natural gas storage site is then performed. The design of the shaft seal system appears to be a determinant element to evaluate the risks of CO₂ leakage.

Table des matières

Résumé	ii
Abstract	ii
Table des notations	vi
1 Introduction	1
1.1 Introduction générale	1
1.2 Plan du travail	2
2 Le stockage géologique de CO₂ dans d'anciennes mines de charbon	4
2.1 La filière du captage et du stockage de CO ₂	4
2.2 Du stockage de gaz naturel au stockage de CO ₂	6
2.3 Mécanismes de stockage du CO ₂	7
2.3.1 Piégeage structural ou stratigraphique	7
2.3.2 Piégeage par dissolution dans l'eau	8
2.3.3 Piégeage par adsorption	9
2.4 Conditions pour la transformation d'un charbonnage en réservoir	10
2.5 Pression dans la mine	11
2.6 Système de scellement des puits	12
2.6.1 Rôles du système	12
2.6.2 Système développé par Fluxys	13
2.6.3 Choix des matériaux	14
2.7 Résumé	17
3 Modélisation hydromécanique des géomatériaux partiellement saturés	19
3.1 Introduction	19
3.2 Notion de capillarité	20
3.3 Courbes de rétention	22
3.4 Equations de conservation des masses de fluides	24
3.5 Equations de transfert des fluides	25
3.5.1 Advection de la phase liquide	25
3.5.2 Advection de la phase gazeuse	26
3.5.3 Diffusion au sein de la phase liquide	27
3.5.4 Diffusion au sein de la phase gazeuse	27

3.5.5	Courbes de perméabilité à l'eau et au gaz	27
3.6	Propriétés des fluides	28
3.7	Equations d'équilibre	29
3.7.1	Loi de Kelvin	30
3.7.2	Loi de Henry	30
3.8	Couplage hydromécanique	30
3.8.1	Notion de contraintes effectives	30
3.8.2	Variation de l'emmagasinement des fluides	31
3.9	Loi mécanique : modèle élastoplastique à frottement interne	31
4	Cas synthétique : étude 1D des transferts de CO₂ dans un milieu poreux partiellement saturé	33
4.1	Introduction	33
4.2	Définition du problème	34
4.3	Analyse des résultats	35
4.4	Etude de sensibilité	36
4.4.1	Etat de saturation	37
4.4.2	Perméabilité intrinsèque	39
4.4.3	Courbe de perméabilité relative au gaz	41
4.4.4	Pression d'entrée d'air	42
4.4.5	Présence d'un bouchon de bentonite	44
4.4.6	Gravité	47
4.5	Conclusions	48
5	Application : l'ancienne mine de charbon d'Anderlues	49
5.1	Introduction	49
5.2	Contextes géologique et hydrogéologique	50
5.2.1	Géologie régionale	50
5.2.2	Géologie locale	53
5.2.3	Hydrogéologie	55
5.3	Exploitation de la mine d'Anderlues	55
5.4	Définition du problème	57
5.4.1	Géométrie	57
5.4.2	Conditions initiales	60
5.4.3	Conditions aux frontières	61
5.4.4	Modèle hydro-mécanique	64
5.4.5	Propriétés mécaniques des matériaux	64
5.4.6	Propriétés hydrauliques des matériaux	65
5.5	Analyse des résultats	67
5.5.1	Phase I : Creusement du puits	67
5.5.2	Phase II : Phase d'attente	73
5.5.3	Phase III : Mise en place du système de scellement	75
5.5.4	Synthèse des trois premières phases	77
5.5.5	Phase IV : Injection	77
5.6	Etude de l'influence du couplage hydro-mécanique	81

5.7	Etude de sensibilité	81
5.8	Conclusions	86
6	Conclusions et perspectives	87
	Références	90

Table des notations

1. Lettres grecques

Symbol	Unité	Signification
ϵ_v	-	Déformation volumique
μ_{CO_2}	$kg \cdot m^{-1} \cdot s^{-1}$	Viscosité dynamique du CO ₂ sec
μ_g	$kg \cdot m^{-1} \cdot s^{-1}$	Viscosité dynamique du mélange gazeux
μ_v	$kg \cdot m^{-1} \cdot s^{-1}$	Viscosité dynamique de la vapeur d'eau
ν	-	Coefficient de Poisson
θ	°	Angle de contact à l'interface
ρ_{CO_2}	kg/m^3	Masse volumique du CO ₂ sec
ρ_{CO_2-d}	kg/m^3	Masse volumique du CO ₂ dissous
ρ_s	kg/m^3	Masse volumique des grains solides
ρ_v	kg/m^3	Masse volumique de la vapeur d'eau
$\rho_{v,0}$	kg/m^3	Masse volumique de la vapeur d'eau saturante
ρ_w	kg/m^3	Masse volumique de l'eau
$\rho_{w,0}$	kg/m^3	Masse volumique de l'eau à la pression de référence
σ_{GL}	N/m	Tension de surface à une interface gaz - liquide
σ_{ij}	Pa	Tenseur des contraintes totales
σ'_{ij}	Pa	Tenseur des contraintes effectives
σ_0	Pa	Contrainte totale initiale
τ	-	Tortuosité
ϕ	-	Porosité
φ	°	Angle de frottement interne
χ_w	Pa	Compressibilité de l'eau

2. Lettres latines

Symbol	Unité	Signification
a	-	Coefficient empirique dans la relation de Fabre et Gustkiewicz
b	-	Coefficient de Biot
c	Pa	Cohésion
C	-	Quantité massique théorique de gaz adsorbé
C_0	-	Constante de Langmuir
$D_{CO_2-d/w}$	m^2/s	Coefficient de diffusion du CO ₂ dissous dans l'eau
D_{v/CO_2}	m^2/s	Coefficient de diffusion du mélange gazeux vapeur d'eau - CO ₂ sec
E	Pa	Module de Young
f	-	Surface de plasticité
f_{CO_2}	$kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$	Flux massique de CO ₂ sec
f_{CO_2-d}	$kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$	Flux massique de CO ₂ dissous
f_v	$kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$	Flux massique de vapeur d'eau
f_w	$kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$	Flux massique d'eau
g	m/s^2	Accélération de pesanteur
h	m	Hauteur de remontée capillaire
h_r	-	Humidité relative
H_{CO_2}	-	Constante de Henry du CO ₂
i_{CO_2}	$kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$	Flux massique de diffusion du CO ₂ sec au sein de la phase gazeuse
i_{CO_2-d}	$kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$	Flux massique de diffusion du CO ₂ dissous au sein de la phase liquide
i_v	$kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$	Flux massique de diffusion de la vapeur d'eau au sein de la phase gazeuse
I_{ij}	-	Tenseur identité
I_σ	Pa	Premier invariant des contraintes
$II_{\hat{\sigma}}$	Pa	Second invariant des contraintes
$k_{r,g}$	-	Perméabilité relative au gaz
$k_{r,w}$	-	Perméabilité relative à l'eau

$K_{CO_2-d}^{eq}$	-	Constante d'équilibre de la dissolution du CO ₂ dans l'eau
K_g	m ²	Perméabilité au gaz
K_{int}^{sat}	m ²	Perméabilité intrinsèque en conditions saturées
K_w	m ²	Perméabilité à l'eau
m	-	Paramètre de la courbe de rétention de van Genuchten
M	kg	Masse de l'échantillon
M_i	kg/mol	Masse molaire du composant i
M_{sat}	kg	Masse de l'échantillon saturé en eau
M_{sec}	kg	Masse de l'échantillon sec
M_w	kg/mol	Masse molaire de l'eau
n	-	Paramètre de la courbe de rétention de van Genuchten
n_i	-	Nombre de moles du composant i
p	Pa	Pression de fluide
p_c	Pa	Pression capillaire
p_{CO_2}	Pa	Pression partielle de CO ₂
p_g	Pa	Pression de gaz
p_i	Pa	Pression partielle du composant i
$p_{v,0}$	Pa	Pression de vapeur d'eau saturante
p_w	Pa	Pression d'eau
$p_{w,0}$	Pa	Pression d'eau de référence
P	Pa	Pression absolue
P_0	Pa	Constante de Langmuir
P_r	Pa	Pression d'entrée d'air dans la relation de van Genuchten
P_g^{res}	Pa	Pression du réservoir
P_{st}	Pa	Pression standard
\underline{q}_g	m/s	Vitesse d'advection de la phase gazeuse
\underline{q}_l	m/s	Vitesse d'advection de la phase liquide
Q_{CO_2}	kg.m ⁻³ .s ⁻¹	Terme de source de CO ₂
Q_w	kg.m ⁻³ .s ⁻¹	Terme de source d'eau
r	m	Rayon capillaire
R	J.mol ⁻¹ .K ⁻¹	Constante des gaz parfaits
\dot{S}	kg.m ⁻³ .s ⁻¹	Emmagasinement

S_{max}	-	Degré de saturation maximum en eau
S_{res}	-	Degré de saturation résiduel en eau
$S_{r,g}$	-	Degré de saturation en gaz
$S_{r,w}$	-	Degré de saturation en eau
$S_{r,we}$	-	Degré de saturation effectif en eau
T	K	Température
T_{st}	K	Température à l'état standard
V_{mine}	m^3	Volume des cavités minières
V_{sto}	m^3	Volume de gaz stocké
V_v	m^3	Volume des vides
V_w	m^3	Volume d'eau
x_{CO_2-d}	-	Fraction molaire de CO_2 dissous dans l'eau
z	m	Coordonnée verticale

Chapitre 1

Introduction

1.1 Introduction générale

La lutte contre le réchauffement climatique est aujourd’hui devenue un défi planétaire majeur. Depuis 1906, la température moyenne à la surface de la Terre s’est élevée de 0,74°C et le niveau des mers a augmenté d’une vingtaine de centimètres. Plus inquiétante est l’augmentation notable de ces phénomènes depuis les années 90. Ainsi, entre 1995 et 2006, onze années ont été recensées comme étant les plus chaudes jamais observées depuis 1850 (GIEC, 2007).

Selon le Groupe d’experts Intergouvernemental sur l’Evolution du Climat (2007), plus connu sous l’acronyme GIEC, la principale cause du réchauffement climatique serait l’augmentation des concentrations atmosphériques en gaz à effet de serre. En particulier, le dioxyde de carbone, produit de combustion des énergies fossiles, serait responsable de plus de la moitié de l’effet de serre anthropique. Depuis le début de l’ère industrielle, sa concentration atmosphérique est passée de 280 à 370 ppm, soit une augmentation relative de 32 % par rapport à une teneur relativement constante depuis 10 000 ans.

En juillet 2010, 191 pays (dont les Etats membres de l’Union Européenne) avaient signé et ratifié le Protocole de Kyoto afin de limiter le réchauffement climatique. Dans ce cadre, la Belgique s’est engagée à réduire de 5,2% ses émissions de gaz à effet de serre durant la période 2008 - 2012 par rapport à l’année de référence 1990. De son côté, en avril 2009, le Parlement européen votait une décision visant une réduction de 20% des émissions européennes de gaz à effet de serre d’ici 2020 (toujours par rapport aux émissions de 1990).

Afin d’endiguer le réchauffement climatique, un changement de notre paradigme énergétique, une meilleure efficacité énergétique et le développement d’énergies « vertes » font partie des pistes les plus souvent mises en avant. A court terme, ces mesures ne suffiront cependant pas à éliminer les émissions massives de gaz carbonique. Le stockage géologique de CO₂ apparaît donc comme une voie très prometteuse aux enjeux à la fois économiques, industriels et sociaux. Il peut contribuer à l’effort de diminution des émissions de dioxyde de carbone et constituer une solution de transition vers la production d’énergie renouvelable (GIEC, 2007 ; Piessens *et al.*, 2008).

Les aquifères salins profonds, les réservoirs déplétés d'hydrocarbures et les veines de charbon inexploitables sont les réservoirs les plus couramment étudiés pour le stockage de CO₂. Certaines anciennes mines de charbon, nombreuses et souvent proches des points importants d'émission de CO₂, pourraient également servir de réservoir pour le stockage du dioxyde de carbone (Piessens & Dusar, 2003 & 2004 ; Van Tongeren & Dreesen, 2004 ; Kempka *et al.*, 2006 ; Romanov *et al.*, 2009 ; Lutynski, 2010 ; Jalili *et al.*, 2011). Le stockage de CO₂ dans d'anciennes mines de charbon permettrait en effet de bénéficier de l'importante capacité d'adsorption du charbon sans poser les problèmes d'injectivité rencontrés dans les veines profondes inexploitables. En outre, la récupération du méthane initialement adsorbé à la surface du charbon contribuerait à la diminution des coûts de stockage.

La conversion d'anciennes concessions minières en sites de stockage requiert toutefois une bonne caractérisation de la roche de couverture. Cette dernière est en effet sensée assurer l'étanchéité du réservoir pendant plusieurs milliers d'années. En particulier, les éventuelles failles, les fractures engendrées par l'exploitation et les anciens puits de mine constituent autant de vecteurs préférentiels de fuite du CO₂ stocké vers la biosphère (Piessens & Dusar, 2003). Alors que la communauté scientifique s'accorde à dire que l'étanchéité des puits représente un enjeu majeur pour garantir la faisabilité du stockage de CO₂ dans d'anciennes mines, à ce jour, aucune étude ne semble avoir été réalisée afin d'étudier l'efficacité du scellement des puits.

1.2 Plan du travail

L'objectif de ce mémoire est d'aborder la question de l'étanchéité des puits dans le cadre d'éventuels projets de stockage de CO₂ dans d'anciennes mines de charbon. Plus précisément, le problème consiste en l'étude numérique des transferts de gaz autour du système de scellement d'un puits. En effet, l'outil numérique permet non seulement de modéliser des phénomènes à grande échelle mais également sur de longues périodes de temps, caractéristiques essentielles du stockage de CO₂.

Après un premier chapitre à caractère bibliographique, décrivant les fondements du stockage géologique de CO₂ dans d'anciennes mines de charbon, un modèle hydro-mécanique de milieux poreux partiellement saturés est présenté au chapitre 3. Ce modèle, implanté dans le code de calcul aux éléments finis LAGAMINE, sera utilisé afin de simuler les écoulements biphasiques d'eau et de CO₂ autour du système de scellement d'un puits.

La modélisation hydro-mécanique de phénomènes aussi complexes que les transferts de gaz dans des milieux poreux partiellement saturés n'est pas chose aisée. Elle nécessite en effet une bonne maîtrise et une bonne compréhension tant de l'outil numérique que des concepts physiques décrits par les équations mathématiques du modèle. Dans notre exposé, la problématique de l'étanchéité des puits sera donc abordée de manière progressive.

Au chapitre 4, la réponse du modèle d’écoulement en saturation partielle développé au chapitre 3 est testée au travers d’un cas synthétique simple. Une modélisation 1D de l’injection de gaz à pression imposée dans une colonne de béton est réalisée. Une étude de sensibilité est effectuée afin de mettre en évidence l’influence des différents paramètres d’écoulement sur les prédictions du modèle. Les paramètres les plus sensibles seront ceux qu’il importera de déterminer expérimentalement de la façon la plus précise que possible.

Une modélisation hydromécanique 2D axisymétrique inspirée de l’ancien site de stockage de gaz naturel d’Anderlues est ensuite réalisée au chapitre 5. Les contextes géologique et hydrogéologique du site sont décrits et serviront de base à la définition du problème, tant du point de vue des conditions initiales et aux limites que des propriétés des matériaux. Afin de reproduire les états de contrainte et de saturation en eau du schiste au moment de l’injection de CO₂ dans la mine, différentes phases correspondant au creusement du puits, à l’exploitation de la mine et la mise en place du système de scellement sont modélisées. Les transferts de CO₂ dans et autour du système de scellement sont alors analysés afin d’évaluer les performances globales du système de scellement vis-à-vis de l’étanchéité du réservoir.

Chapitre 2

Le stockage géologique de CO₂ dans d'anciennes mines de charbon

2.1 La filière du captage et du stockage de CO₂

La filière du captage et du stockage géologique de CO₂ (appelée *Carbon Capture and Storage* dans les pays anglo-saxons) est une approche innovatrice pour combattre le changement climatique en réduisant les émissions de gaz à effet de serre. Elle comprend plusieurs étapes menant au stockage de CO₂ dans des formations géologiques adéquates : le captage, le transport et finalement l'injection du dioxyde de carbone dans le réservoir (figure 2.1).

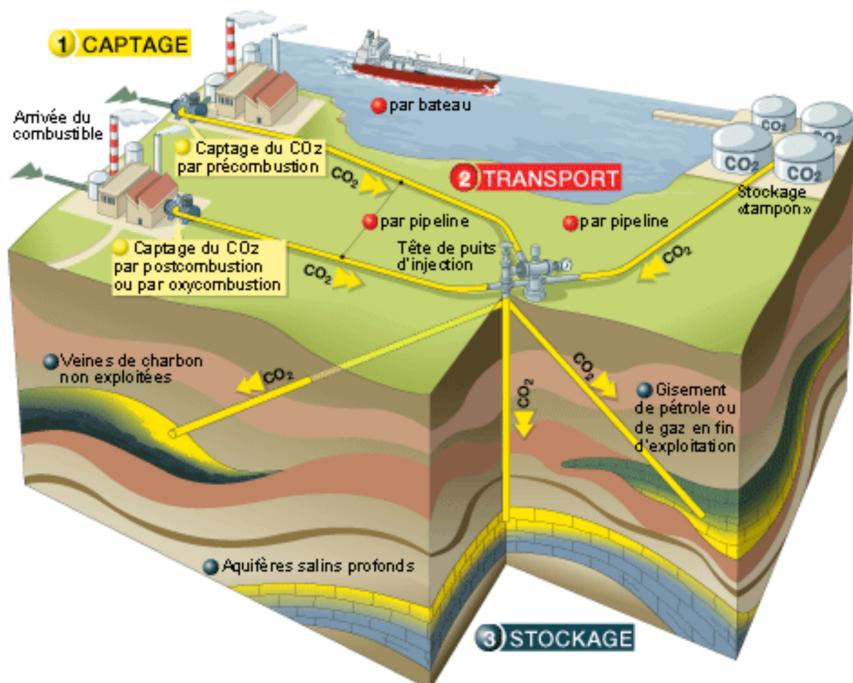


FIGURE 2.1 – Représentation schématique de la filière CCS (Total, 2011)

La première étape du processus est ainsi la capture du CO₂ au départ d'industries fortement émettrices : centrales électriques, cimenteries, raffineries, aciéries, etc. Le dioxyde de carbone s'y retrouve dans les fumées de combustion, accompagné d'autres gaz parmi lesquels l'oxygène, la vapeur d'eau et l'azote. La teneur en CO₂ des effluents varie selon l'industrie concernée mais peut atteindre 20%¹. Le captage du CO₂ consiste à extraire le dioxyde de carbone des autres gaz afin d'obtenir un flux concentré, facilement transportable jusqu'au site de stockage. Pour des raisons tant économiques que d'espace de stockage, il est en effet impensable de vouloir comprimer, transporter et stocker l'ensemble des gaz de combustion (Thambimuthu *et al.*, 2005 ; Gombert, 2010).

Le dioxyde de carbone est ensuite transporté par pipelines ou par navires jusqu'à un site de stockage. Pendant le transport, le CO₂ est sous une phase dense, c'est-à-dire à l'état supercritique² ou liquide (à basse température). Dans les deux cas, la technologie et les risques associés sont connus et bénéficient d'un retour d'expérience important dans le domaine du transport de gaz naturel (Gombert, 2010).

Le dioxyde de carbone est alors injecté dans un réservoir géologique. Les réservoirs géologiques sont des roches suffisamment poreuses et perméables pour pouvoir emmagasiner des fluides, que ce soit de l'eau, du pétrole ou du gaz (Foucault & Raoult, 1988). Le débit, la pression d'injection et, éventuellement, le nombre de puits d'injection sont fonction du réservoir considéré. Plusieurs types de réservoirs sont actuellement envisagés pour le stockage de CO₂, les plus courants étant les aquifères salins profonds (inexploitables pour l'alimentation en eau potable), les gisements épuisés de pétrole ou de gaz et les veines inexploitables (et inexploitables) de charbon. Dans tous les cas, le stockage de CO₂ est basé sur différents mécanismes de piégeage qui sont mis en jeu de manière plus ou moins importante en fonction du réservoir et de l'échelle de temps considérés. On reconnaît ainsi les piégeages structural, hydrodynamique, résiduel, en phase aqueuse, en phase minérale et par adsorption sur le charbon (Benson & Cook, 2005 ; Gombert, 2010).

Les piégeages structural, en phase aqueuse et par adsorption sur le charbon sont décrits à la section 2.3 de ce chapitre. Le piégeage hydrodynamique consiste en le piégeage de « bulles » de CO₂ à l'état supercritique au sein d'une phase liquide. Le piégeage résiduel apparaît quant à lui lorsque, grâce aux forces capillaires, le dioxyde de carbone est piégé comme phase résiduelle immobile dans la structure poreuse de la roche. Finalement, le piégeage en phase minérale résulte de la précipitation de minéraux de carbonates formés suite à des réactions entre le CO₂ et les roches du réservoir (CO2CRC, 2008). Pour une description détaillée des différents mécanismes de piégeage du dioxyde de carbone dans les réservoirs géologiques, nous recommandons au lecteur l'excellente synthèse proposée dans un rapport du Centre de Recherche Coopérative pour les Technologies des Gaz à Effet de Serre (CO2CRC, 2008).

1. A titre de comparaison, la teneur moyenne en CO₂ dans l'atmosphère est de 0,037% (GIEC, 2007).

2. Un fluide supercritique est caractérisé par des propriétés physiques intermédiaires entre celles d'un liquide et celles d'un gaz. Il possède une densité proche de l'état liquide et une viscosité voisine de l'état gazeux, ce qui permet un transport efficace en grandes quantités. L'état supercritique du CO₂ est atteint à une température de 31°C et une pression de 7,4 MPa (Gombert, 2010).

2.2 Du stockage de gaz naturel au stockage de CO₂

Le stockage de CO₂ dans les veines de charbon inexploitées repose sur l'importante capacité d'adsorption du charbon. A la surface des grains de charbon, le CO₂ est fixé de manière forte et stable, ce qui assure un stockage *a priori* durable. Cependant, d'importants problèmes techniques sont liés à l'injection du CO₂ dans les veines de charbon. En effet, lorsqu'il adsorbe du CO₂ à la surface de ses grains, le charbon gonfle, réduisant ainsi une perméabilité déjà faible (Shi & Durucan, 2005 ; Karacan, 2007 ; Pan & Connell, 2007 ; Zhang *et al.*, 2008).

Afin de contrer cette difficulté d'injectivité tout en profitant des avantages offerts par le stockage en veines de charbon, certains scientifiques ont alors suggéré de stocker le dioxyde de carbone dans d'anciennes mines de charbon (Piessens & Dusar, 2003 & 2004 ; Van Tongeren & Dreesen, 2004 ; Romanov *et al.*, 2009 ; Lutynski, 2010 ; Jalili *et al.*, 2011).

De par le monde, trois anciennes mines de charbon ont déjà été exploitées pour le stockage saisonnier de gaz naturel (principalement du méthane). Deux de ces mines sont situées en Belgique, à Péronnes et Anderlues, et ont été exploitées entre 1980 et 2000 par Fluxys (Houtrelle, 1999 ; Piessens & Dusar, 2004 ; Van Tongeren & Dreesen, 2004). La troisième mine est celle de Leyden, près de Denver, dans le Colorado (Etats-Unis). Elle a servi de site pour le stockage de gaz naturel à partir des années soixante, avant d'être fermée en 2001 suite à des fuites de gaz trop importantes au travers des puits (EPA, 1998 ; Schultz, 1998 ; BGS, 2008).

Le stockage saisonnier de gaz naturel consiste à stocker le gaz dans des réservoirs lorsque la demande est faible (particulièrement en été) et à l'en extraire quand la demande devient plus importante (en hiver). Cela permet ainsi de maintenir un approvisionnement continu tout au long de l'année, d'éviter d'importantes fluctuations de prix et de répondre à d'éventuels pics de consommations. Les aquifères salins peuvent également servir de site pour le stockage de gaz naturel. Contrairement à ces derniers, les mines ont une faible inertie vis-à-vis de l'injection ou l'extraction du gaz, ce qui permet d'obtenir des cycles de remplissage et vidange du réservoir assez courts (Schultz, 1998).

Bien que le stockage géologique de CO₂ soit assez similaire à celui du gaz naturel, il pose plusieurs questions supplémentaires (Piessens & Dusar, 2003) :

- **Durée du stockage** : le stockage du gaz naturel concerne des périodes de temps limitées alors que le stockage géologique de CO₂ doit être garanti sur plusieurs milliers d'années.
- **Propriétés physiques et chimiques des gaz** : le dioxyde de carbone et le gaz naturel ont des propriétés différentes. Dans des mines profondes, le dioxyde de carbone pourrait se retrouver proche de l'état supercritique alors que dans les mêmes conditions, le méthane est à l'état gazeux. De plus, le CO₂ est mieux adsorbé sur le charbon que le méthane et est également beaucoup plus soluble dans l'eau que ce

dernier. En solution, il forme un acide faible, le H_2CO_3 , susceptible de réagir avec les minéraux des roches réservoir.

On distingue actuellement deux tendances parmi les auteurs qui abordent le stockage de CO_2 dans les anciennes mines de charbon. Un premier groupe de scientifiques propose de stocker le dioxyde de carbone directement dans la mine, une partie se retrouvant adsorbée à la surface du charbon résiduel et des matériaux argileux (Piessens & Dusar, 2003 ; Van Tongeren & Dreesen, 2004 ; Lutynski, 2010 ; Jalili, Saydam & Cinar, 2011). D'autres chercheurs prônent quant à eux de remplir les vides laissés par l'exploitation de matériaux possédant une forte capacité d'adsorption, par exemple des taillings ou des boues de flottation (Kühn, 2006 ; Kempka *et al.*, 2006 ; Romanov *et al.* 2009). Cette dernière solution assure une plus grande capacité de stockage (puisque la capacité d'adsorption du CO_2 sur les matériaux de remplissage est plus grande que la capacité de stockage en phase gazeuse) et un piégeage plus sûr du dioxyde de carbone. Par ailleurs, elle permet la prise en charge des déchets miniers et pourrait contribuer à diminuer les risques de subsidence liés aux cavités minières (Kühn, 2006).

Outre techniques, les enjeux du stockage de CO_2 dans les anciennes mines sont sociaux et économiques. Le stockage du dioxyde de carbone dans ce type de réservoir pourrait constituer une alternative aux méthodes conventionnelles de fermeture des exploitations minières. S'inspirant de la récupération assistée de méthane dans les veines de charbon (processus connu sous l'abréviation ECBM pour *Enhanced Coalbed Methane Recovery*) et du captage de grisou dans les mines de charbon, le stockage de CO_2 pourrait être couplé à la récupération du méthane adsorbé à la surface du charbon ce qui contribuerait à diminuer les coûts de stockage et améliorerait l'acceptabilité du stockage de gaz carbonique auprès de l'opinion publique (Lutynski, 2010).

2.3 Mécanismes de stockage du CO_2

Le dioxyde de carbone injecté dans une ancienne mine de charbon s'y retrouve piégé essentiellement sous trois états : à l'état gazeux dans l'espace libre (piégeage structural ou stratigraphique), dissous dans les eaux de la mine et finalement, adsorbé à la surface des grains de charbon, d'argile ou d'éventuels matériaux remplissant les cavités laissées par l'exploitation minière (Piessens & Dusar, 2003).

2.3.1 Piégeage structural ou stratigraphique

Les piégeages structural et stratigraphique se rapportent au dioxyde de carbone piégé en phase gazeuse dans tous les vides de la mine de charbon qui lui sont accessibles (cavités minières, porosité de la roche, d'éventuels matériaux de remplissage, etc.). Ils sont conditionnés par la géométrie du réservoir et la présence d'une couverture très peu perméable qui empêche le CO_2 de s'échapper vers la biosphère. L'isolement latéral de la mine est également une condition importante afin d'éviter la migration du dioxyde de carbone hors du réservoir (Piessens & Dusar, 2003 ; CO2CRC, 2008).

Les pièges structuraux sont typiquement des plis anticlinaux ou des blocs faillés inclinés. Les pièges stratigraphiques résultent eux le plus souvent de changements latéraux de faciès ou de biseaux stratigraphiques. La figure 2.2 illustre deux exemples de pièges structural et stratigraphique dans le cas d'un stockage en aquifère salin profond (CO2CRC, 2008). Une analogie peut toutefois être réalisée avec le stockage de CO₂ dans les anciennes mines de charbon où la mine constitue le réservoir.

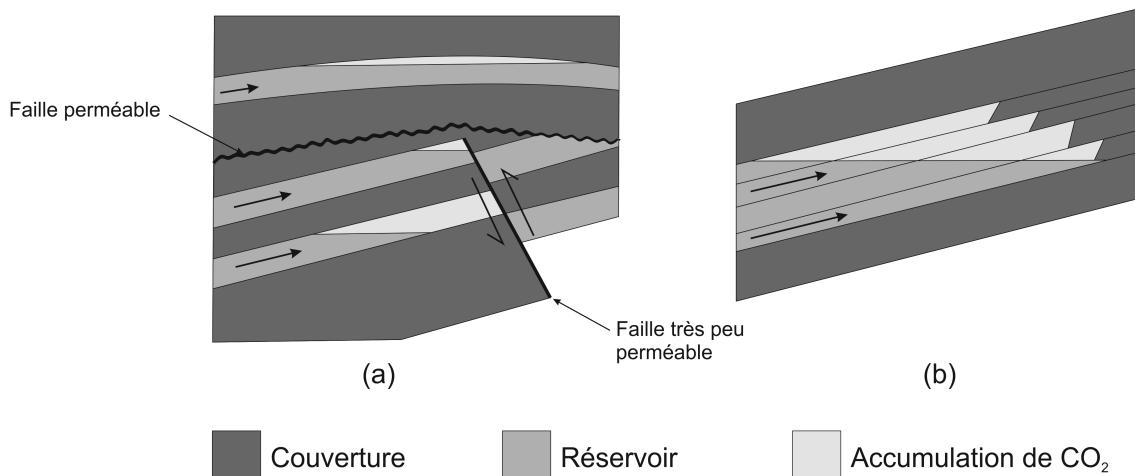


FIGURE 2.2 – Exemples de pièges (a) structural et (b) stratigraphique dans le cas d'un stockage en aquifère salin profond (d'après CO2CRC, 2008)

Enfin, notons que l'évaluation du volume des cavités d'une ancienne mine n'est pas simple. Dans de rares cas, le volume peut être directement estimé à partir de données détaillées concernant l'exploitation minière ou à partir de tests de pression effectués dans les mines exploitées pour le stockage de gaz naturel. Toutefois, dans la plupart des cas, ce type de données n'est pas disponible. Les estimations doivent alors être réalisées sur base des volumes de matériaux extraits de la mine lors de son exploitation (Piessens & Dusar, 2004).

2.3.2 Piégeage par dissolution dans l'eau

Le dioxyde de carbone est caractérisé par une solubilité relativement élevée due à son hydratation dans l'eau. En solution, il forme un acide faible, l'acide carbonique H₂CO₃, selon la réaction chimique :



La solubilité du CO₂ dépend de la salinité de l'eau et des conditions de température et pression. Une augmentation de la pression et une diminution de la température ou de la salinité auront généralement le même effet : une augmentation de la solubilité du CO₂ dans l'eau. Notons que les effets compétiteurs de ces trois facteurs résultent généralement

en une augmentation de la solubilité du CO₂ dans l'eau avec la profondeur (Piessens & Dusar, 2004).

2.3.3 Piégeage par adsorption

Le charbon est une roche sédimentaire caractérisée par une très grande surface spécifique interne, de l'ordre de 20 à 400 m²/g. Cette propriété lui confère un potentiel important de piégeage du gaz, non seulement dans sa structure poreuse mais également par adsorption. Ainsi, si le CO₂ est injecté à une pression de l'ordre de 5 à 6 MPa, on estime qu'une tonne de charbon peut emmagasiner jusqu'à 40, voire 60 m³ de gaz. A titre de comparaison, cela correspond à 5 à 10 fois la capacité de stockage des aquifères salins profonds (Gombert, 2010).

La capacité d'adsorption d'un charbon est fonction d'un grand nombre de facteurs (CO2CRC, 2008 ; METSTOR, 2010) :

- **Type de gaz** : le charbon a une plus grande affinité pour le CO₂ que pour le méthane et le diazote. Pour une molécule de méthane chassée, 2 à 5 molécules de dioxyde de carbone peuvent être stockées.
- **Conditions de température et pression** : à une pression donnée, la quantité de gaz adsorbé à la surface du charbon diminue lorsque la température augmente.
- **Rang du charbon** : le rang d'un charbon traduit son degré de maturation : plus le rang est élevé, plus la teneur en eau du charbon est faible et sa teneur en carbone élevée. Du rang le plus bas au plus élevé, on distingue la tourbe, la lignite, le charbon sub-bitumineux, le charbon bitumineux, la semi-anthracite, l'anthracite et enfin le graphite (Boulvain, 2011a). A une augmentation du rang d'un charbon est également associée une augmentation de sa porosité, et donc de sa capacité d'adsorption.
- **Taux d'humidité** : des études tendent à démontrer que la capacité d'adsorption du CO₂ est approximativement inversement proportionnelle à la teneur en eau du charbon.
- **Fraction minérale** : la capacité d'adsorption diminue lorsque la fraction minérale augmente.

La capacité d'adsorption d'un charbon est mesurée expérimentalement et se traduit par une isotherme d'adsorption du gaz. Cette isotherme est une courbe d'équilibre de la capacité d'adsorption d'un gaz sur un charbon donné en fonction de la pression. L'isotherme de Langmuir (figure 2.3) est la plus utilisée pour le charbon. Son expression est :

$$C = \frac{C_0 P}{P + P_0} \quad (2.1)$$

où C est la quantité massique théorique de gaz adsorbé à la pression P (c'est-à-dire le

rapport entre la masse de gaz adsorbé et la masse de charbon sur laquelle le gaz est adsorbé) et C_0 et P_0 sont les constantes de Langmuir. La constante C_0 représente la quantité maximum de gaz adsorbé lorsque la pression tend vers l'infini. Elle correspond à la saturation de tous les sites d'adsorption du charbon. La pression P_0 correspond quant à elle à une capacité d'adsorption de $C_0/2$ (METSTOR, 2010).

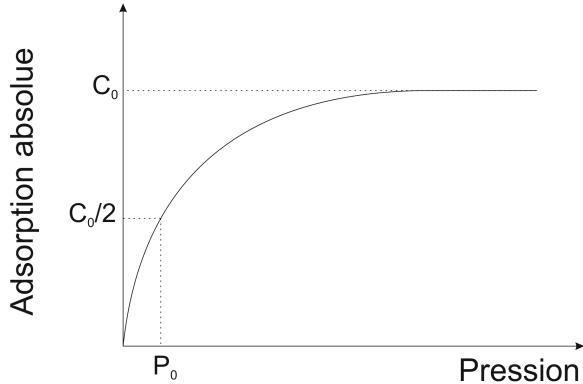


FIGURE 2.3 – Isotherme de Langmuir

Enfin, notons que d'autres roches ou matériaux peuvent servir d'adsorbant pour le dioxyde de carbone. Il s'agit par exemple d'éventuels matériaux de remplissage des cavités minières et des minéraux argileux présents dans les roches réservoir (Kühn, 2006 ; Kempka *et al.*, 2006 ; Romanov *et al.* 2009).

2.4 Conditions pour la transformation d'un charbonnage en réservoir

Toutes les anciennes mines de charbon ne sont bien sûr pas appropriées à être transformées en site de stockage de gaz, *a fortiori* de CO₂. Certains critères doivent en effet être rencontrés (Houtrelle, 1999 ; Piessens & Dusar, 2003 ; Gombert, 2010) :

- 1. Stabilité géologique** : la stabilité géologique et, en particulier, tectonique doit être assurée. Cela signifie que le site de stockage ne doit pas se situer dans une zone sismiquement active, de forte érosion ou où des mouvements de terrain sont observés.
- 2. Couverture** : les couches géologiques susjacentes à la mine doivent constituer une couverture suffisamment étanche du réservoir. Le caractère plus ou moins étanche dépend directement de la pression du réservoir et de la pression de fuite (*leak-off pressure*), définie comme la pression à partir de laquelle on observe des fuites de fluide. La couverture doit donc posséder des propriétés mécaniques suffisantes de sorte qu'elle soit capable de supporter les éventuelles surpressions de fluide sans que des fractures pré-existantes ne s'ouvrent ou que de nouvelles fractures ne se créent.

3. **Isolement latéral** : la mine doit être isolée latéralement de tout autre mine ou aquifère afin d'éviter les fuites vers des aquifères exploités ou l'atmosphère.
4. **Arrivées d'eau** : les arrivées d'eau dans la mine doivent être faibles. En effet, celles-ci entraîneraient une augmentation de la pression dans le réservoir, avec le risque d'atteindre des surpressions que la couverture ne pourrait pas supporter.
5. **Maintenance** : l'intégrité du réservoir doit être assurée sans maintenance ou monitoring (hormis éventuellement pendant son exploitation). En effet, une fois rempli, le site de stockage est voué à être abandonné pendant au moins plusieurs milliers d'années. Sur de telles périodes, la mémoire du réservoir ne peut être garantie.
6. **Coût** : le coût du stockage doit être faible comparativement aux autres solutions envisagées. Cela implique notamment une capacité suffisante du réservoir.

2.5 Pression dans la mine

La pression admissible dans une ancienne mine conditionne le volume de CO₂ qui peut y être stocké (Piessens & Dusar, 2003). Les différents mécanismes de piégeage du dioxyde de carbone dans une ancienne mine ont été présentés à la section 2.3. Pour rappel, il s'agit des piégeages structural, en phase aqueuse et par adsorption sur le charbon résiduel. Pour chacun de ces modes de stockage du CO₂, les quantités de gaz piégé sont des fonctions croissantes de la pression.

Outre économique, l'intérêt de stocker le CO₂ à des pressions élevées concerne la pérennité du stockage. En effet, le stockage du CO₂ est voué à être abandonné et doit être garanti sur plusieurs centaines, voire milliers d'années. Sur cette échelle de temps, la dynamique des nappes aquifères ne peut être prédite. L'évaluation des risques liés aux sites de stockage géologique doit donc prendre en compte tous les scénarios possibles (Gombert, 2010).

En particulier, une remontée des niveaux piézométriques pourrait être critique pour le stockage de CO₂ dans les anciennes mines de charbon. En effet, lors de sa remontée, la nappe comprimerait le gaz stocké et augmenterait ainsi la pression dans la mine. Le principal risque est alors d'atteindre des niveaux de surpression que la couverture ne pourrait supporter. La figure 2.4 représente de manière schématique la pression dans une ancienne mine utilisée comme site de stockage. Dans l'éventuelle zone inondée de la mine, la pression de fluide vue par la roche du réservoir est la pression hydrostatique (BC). Dans la zone sèche, la pression régnant dans la mine est celle du gaz stocké (AB). Une remontée du niveau piézométrique a pour effet le déplacement de la courbe de pression hydrostatique vers le haut et le déplacement vers la droite de la courbe des pressions de gaz (pour conserver la quantité de gaz stocké, la pression doit augmenter si le volume diminue). Ainsi, on remarque que, bien que la pression de gaz soit la plus importante au point B,

c'est au niveau de la couverture (point A) que la plus grande surpression par rapport à la pression hydrostatique est observée. La qualité de la couverture est donc généralement déterminante quant à la pression maximum admissible dans la mine (Piessens & Dusar, 2003).

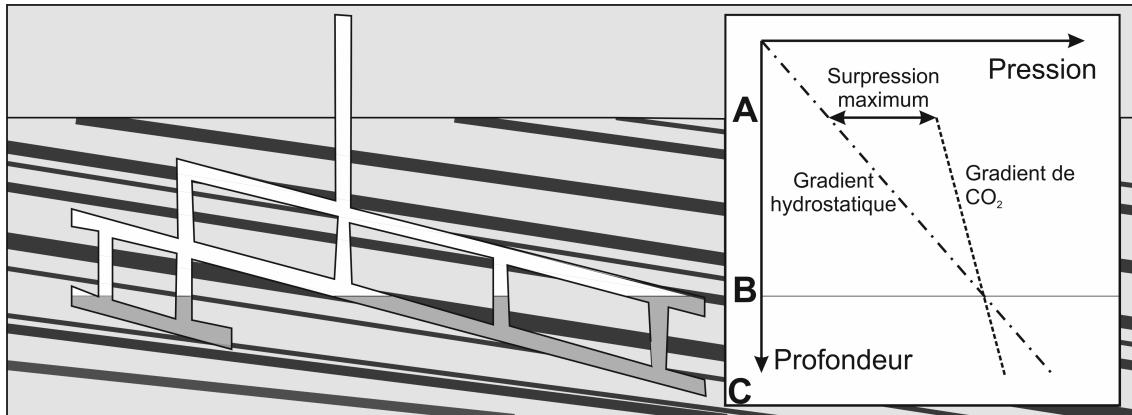


FIGURE 2.4 – Représentation schématique de la pression dans une ancienne mine de charbon exploitée comme site de stockage de CO₂ (d'après Piessens & Dusar, 2003)

Afin d'éviter l'inondation de la mine et garantir le stockage du CO₂, Piessens et Dusar (2003) recommandent de stocker le gaz à une pression initiale au minimum égale à 130% de la pression hydrostatique. Toutefois, il importe bien sûr de s'assurer que la roche de couverture est à même de résister à cette surpression.

2.6 Système de scellement des puits

Les puits d'exploitation ou d'injection d'une ancienne mine de charbon constituent des vecteurs préférentiels de fuite du CO₂ vers la biosphère. Le système de scellement mis en place est donc un élément clé de tout site de stockage de gaz et conditionne directement sa faisabilité (Piessens & Dusar, 2003).

2.6.1 Rôles du système

Le système de scellement des puits poursuit un double objectif. Il doit tout d'abord assurer l'étanchéité du réservoir, c'est-à-dire limiter les transferts de gaz depuis le réservoir vers la biosphère (figure 2.5(a)). Les risques de fuite du gaz à travers un puits dépendent non seulement de l'étanchéité à long terme des matériaux constituant le système de scellement, mais également de l'adéquation de l'architecture de ce dernier (Gombert, 2010). D'autre part, le système de scellement a une fonction mécanique : il doit assurer la reprise du poids des remblais du puits (figure 2.5(b)).

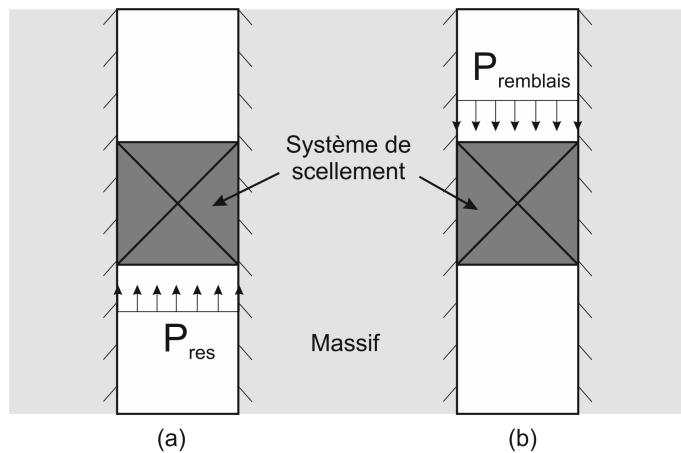


FIGURE 2.5 – Rôles du système de scellement : (a) étanchéité du réservoir et (b) reprise du poids des remblais

2.6.2 Système développé par Fluxys

Entre 1978 et 2000, Fluxys a exploité l'ancienne mine de charbon d'Anderlues comme réservoir pour le stockage saisonnier de gaz naturel. Dans ce cadre, l'entreprise a développé le système de scellement des puits présenté à la figure 2.6. Ce système comprend, de bas en haut, une plate-cuve d'étanchéité, un joint hydraulique et une plate-cuve de résistance (van Massenhove, comm. pers., 2011).

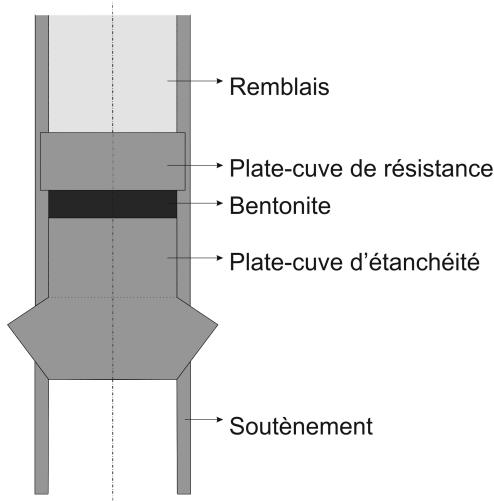


FIGURE 2.6 – Système de scellement des puits utilisé par Fluxys à Anderlues

La plate-cuve d'étanchéité est un élément massif en béton armé ancré dans le massif. Son rôle est, comme son nom l'indique, d'assurer l'étanchéité du réservoir.

Le joint hydraulique doit permettre d'éviter que d'éventuelles fuites de gaz arrivées à son niveau ne se propagent vers la surface. Tel que Fluxys l'a conçu, le joint hydraulique est composé de bentonite en solution colloïdale injectée en continu tout au long du

stockage. Dans le cadre du stockage de CO₂, cette solution n'est pas envisageable car, comme expliqué à la section 2.4, le stockage de CO₂ doit être assuré sans maintenance. Nous nous proposons donc d'utiliser de la bentonite compactée comme il l'est suggéré pour le stockage de déchets radioactifs.

La plate-cuve de résistance est également un élément en béton armé. Son rôle est mécanique puisqu'elle assure la reprise des poids des remblais du puits. En effet, le joint hydraulique de bentonite en solution colloïdale n'a aucune résistance mécanique.

Finalement, l'abandon d'une ancienne mine doit répondre à un certain nombre de critères d'acceptabilité. Les accès aux vides miniers doivent être obstrués et la fermeture des puits doit être garantie à long terme. Ainsi, au-dessus du système de scellement, le puits est remblayé (Nulens *et al.*, 2003).

2.6.3 Choix des matériaux

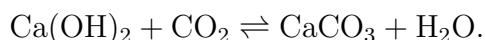
Le choix des matériaux de scellement du puits constitue un point important de la conception du système. En effet, les propriétés hydromécaniques de ces matériaux vont régir les transferts de CO₂ vers la surface. En outre, les matériaux utilisés pour le scellement des puits doivent être compatibles avec l'injection de CO₂ et les conditions de pression et température du réservoir. Leurs qualités doivent être conservées pendant toute la durée du stockage (Gombert, 2010).

➤ Le béton.

Le béton est un matériau composite à matrice cimentaire. Son volume est constitué de 70 à 80% de granulats (gravier et sable), 10 à 15% de ciment, 15 à 20% d'eau et 2 à 5% d'air (Groupement belge du béton, 2006).

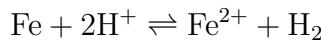
Le ciment est un liant hydraulique, c'est-à-dire qu'il durcit en présence d'eau (dans l'eau ou dans l'air) pour former un produit insoluble dans l'eau. Le durcissement du ciment fait suite à son hydratation, réaction au cours de laquelle est formée de l'hydrate de chaux Ca(OH)₂ (Groupement belge du béton, 2006).

Le dioxyde de carbone réagit avec l'hydrate de chaux pour former du carbonate de calcium CaCO₃; c'est la réaction de carbonatation :



La précipitation du carbonate de calcium conduit à une réduction de la porosité du ciment, le CaCO₃ étant plus volumineux que l'hydroxyde de calcium à partir duquel il est formé. De plus, une augmentation de la résistance et la dureté superficielles est associée à la carbonatation du ciment. Le phénomène de carbonatation a donc un effet *a priori* favorable sur les propriétés mécaniques et de transfert du béton (Groupement belge du béton, 2006).

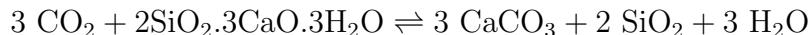
Cependant, le béton possède une résistance à la traction environ dix fois inférieure à sa résistance à la compression. Pour cette raison, il est souvent associé à l'acier et forme alors le « béton armé ». Dans le cas du béton armé, la carbonatation peut conduire à la corrosion des armatures selon la réaction :



En effet, la réaction de carbonatation est accompagnée d'une chute du pH d'environ 13 à 9. Or, à pH = 9, les armatures d'acier classiques ne sont plus passivées et se corrodent (Groupement belge du béton, 2006).

La corrosion des armatures entraîne une diminution de la résistance mécanique du béton armé. Afin de limiter ce phénomène, une solution consiste à utiliser des aciers inoxydables avec des hautes teneurs en chrome et éventuellement en nickel ou molybdène. De tels aciers sont utilisés dans l'industrie pétrolière pour le cuvelage des puits (Gombert, 2010). Le recours à l'utilisation d'armatures en fibres de verre ou en fonte est également possible, ainsi que l'incorporation de fibres dans le béton qui a pour effet de limiter l'ouverture des fissures et donc l'arrivée de CO₂ au niveau des armatures (Courard, comm. pers., 2011).

D'autre part, le dioxyde de carbone peut réagir avec le silicate de calcium hydraté (tobermorite) contenu dans le ciment selon :



Cette réaction produit un gel qui modifie profondément la structure du ciment. Les propriétés mécaniques du béton sont affaiblies puisque les silicates de calcium hydratés assurent une grande partie de la résistance mécanique du béton. En outre, la réaction d'hydratation est accompagnée d'une diminution du volume, provoquant ainsi une augmentation de la porosité. Dans des environnements acides, la calcite néoformée peut ensuite se dissoudre, entraînant un accroissement supplémentaire de la porosité (Gombert, 2010).

Afin de lutter contre cette dégradation du ciment, l'industrie pétrolière a mis au point une série de ciments spéciaux, soit basés sur une modification du ciment de Portland classique, soit des ciments à base de sulfoaluminates de calcium, de geopolymères, d'oxyde de magnésium ou encore d'hydrocarbures (Benge, 2009).

Enfin, notons que la réaction de dissolution de la tobermorite est relativement peu documentée dans les manuels de béton du génie civil. Cela peut être expliqué par le besoin de conditions de pressions partielles de CO₂ et températures particulières, qui ne sont pas rencontrées à la surface de la terre mais bien dans les réservoirs pétroliers, par exemple. C'est en effet dans le domaine pétrolier que l'on trouve le plus de recherches liées à la réactivité du ciment dans des environnements riches en CO₂ (Gombert, 2010).

➤ La bentonite compactée.

La bentonite est une argile gonflante étudiée, entre autres, comme possible barrière ouvragee pour le stockage des déchets radioactifs en couche géologique profonde. Elle est essentiellement composée de montmorillonite, un minéral appartenant à la famille des smectites. D'autres minéraux tels que le quartz, la pyrite, la calcite et les feldspaths complètent la composition minéralogique de la bentonite (Tang, 2005).

Comme toutes les argiles, la montmorillonite est un phyllosilicate résultant d'un empilement de feuillets. Son unité structurale est un feuillet composé d'une couche octaédrique comprise entre deux couches tétraédriques (figure 2.7). Les couches tétraédriques consistent en un ensemble de tétraèdres de SiO_4^4 dont les bases sont dans un même plan. Notons que les ions Si^{4+} peuvent éventuellement être remplacés par des cations Al^{3+} . Les couches octaédriques sont quant à elles composées d'un ensemble d'octaèdres de $\text{Al}_2(\text{OH})_6$, où des substitutions sont possibles entre les Al^{3+} et des ions Mg^{2+} ou Fe^{3+} (Tang, 2005).

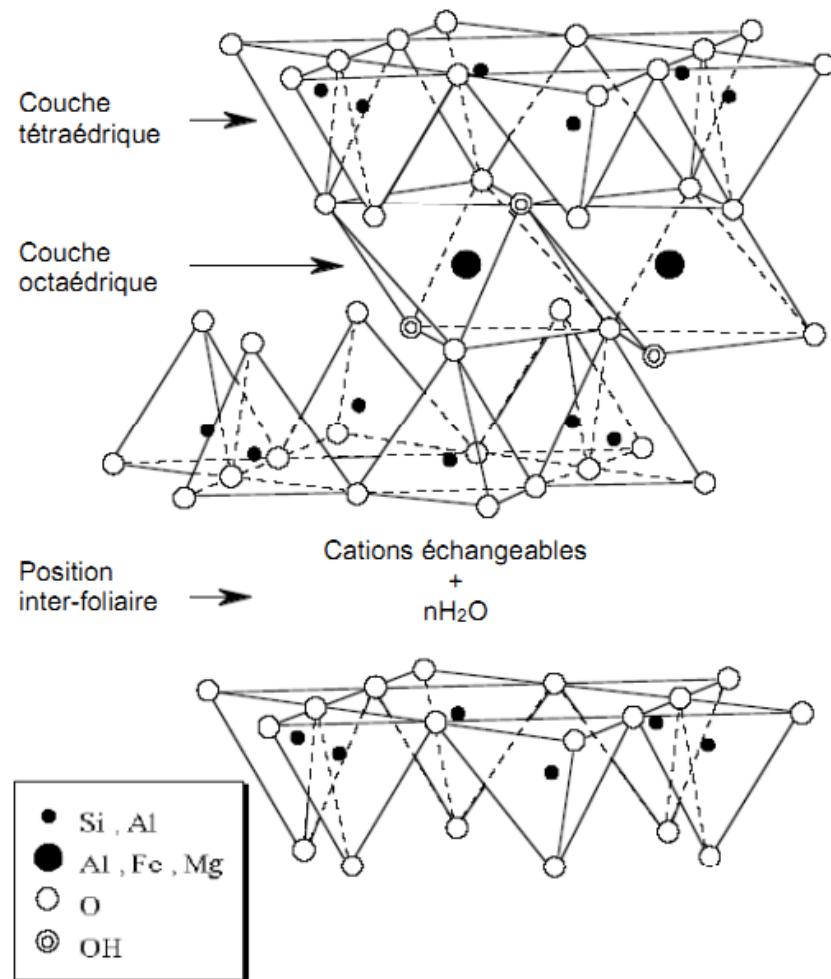


FIGURE 2.7 – Structure cristalline de la montmorillonite (Tang, 2005, modifié d'après Grim, 1968)

L'épaisseur d'un feuillet de montmorillonite est de 1 nm. Deux feuillets successifs sont séparés par un espace inter-foliaire. L'épaisseur de cet espace varie entre 0,95 nm (montmorillonite anhydre) et 1,92 nm selon la quantité d'eau adsorbée. En effet, la liaison entre feuillets est très faible et les molécules d'eau peuvent facilement s'insérer dans l'espace inter-foliaire. De cette manière, l'eau écarte les feuillets et provoque le gonflement de la bentonite (Tang, 2005).

Enfin, notons qu'outre l'eau, des cations échangeables s'insèrent dans l'espace inter-foliaire pour neutraliser les charges négatives des couches tétraédriques. Ces ions sont essentiellement des cations Na^+ (bentonite sodique) ou Mg^{2+} et Ca^{2+} (bentonite calcique). La concentration relative en ions Na^+ et Mg^{2+} - Ca^{2+} est une caractéristique importante car elle détermine le potentiel de gonflement d'une bentonite. Ainsi, lorsque les bentonites sodiques s'hydratent, elles gonflent fortement, contrairement aux bentonites calciques qui sont faiblement gonflantes et présentent une structure flocculée.

2.7 Résumé

Le stockage géologique de CO_2 est une des méthodes envisagées afin de lutter contre les changements climatiques. Il consiste à injecter du dioxyde de carbone dans des formations géologiques servant de réservoir. Les aquifères salins profonds, les gisements d'hydrocarbures déplétés et les veines de charbon inexploitables sont les réservoirs actuellement les plus étudiés (Gombert, 2010).

Le stockage de CO_2 dans les veines de charbon repose sur la grande capacité d'adsorption du dioxyde de carbone à la surface des grains de charbon. Cependant, d'importants problèmes d'injectivité, liés au gonflement du charbon en présence de CO_2 , limitent les possibilités de stockage. S'inspirant de l'expérience du stockage de gaz naturel dans d'anciennes mines de charbon, certains chercheurs ont alors proposé de stocker le CO_2 dans ces cavités créées par l'homme. Dans les mines de charbon, le dioxyde de carbone serait essentiellement piégé sous 3 formes : en phase gazeuse dans l'espace libre (piégeage structural ou stratigraphique), en phase aqueuse dans les eaux de mine et adsorbé à la surface du charbon (Piessens & Dusar, 2003).

Toutes les anciennes mines de charbon ne sont bien sûr pas appropriées à être transformées en site de stockage de CO_2 et certains critères doivent être rencontrés : stabilité géologique du site, présence d'une couverture peu perméable, isolement de la mine et arrivées d'eau limitées. D'autre part, le stockage doit être assuré sans le recours à un monitoring ou autre maintenance (Houtrelle, 1999 ; Piessens & Dusar, 2003 ; Gombert, 2010).

Les mécanismes de fuite du CO_2 stocké dans une ancienne mine de charbon sont liés, d'une part, à la roche de couverture et, d'autre part, aux puits abandonnés ou d'injection du CO_2 . L'étanchéité des puits est un enjeu majeur du stockage de gaz. Elle dépend essentiellement de l'architecture du système de scellement des puits et de l'étanchéité à long terme des matériaux utilisés (Gombert, 2010).

Le scellement d'anciens puits de mine est peu documenté et souffre d'un manque certain de retour d'expérience. Pour son site de stockage de gaz naturel d'Anderlues, Fluxys a développé un système composé de plates-cuves en béton armé et d'un joint hydraulique de bentonite en solution colloïdale continuellement renouvelée (van Massenhove, comm. pers., 2011). Ce système servira de base à notre étude de l'étanchéité des puits et à nos modélisations présentées au chapitre 5. Dans le cadre du stockage géologique de CO₂, nous proposons toutefois d'utiliser de la bentonite compactée comme joint hydraulique puisque celle-ci ne demande pas à être injectée en continu.

Chapitre 3

Modélisation hydromécanique des géomatériaux partiellement saturés

3.1 Introduction

Les questions liées aux écoulements multiphasiques dans les géomatériaux constituent une problématique majeure dans le cadre du stockage géologique de CO₂ : le problème de la migration du dioxyde de carbone dans la roche de couverture et dans les matériaux de scellement du puits est typiquement celui d'écoulements dans des milieux poreux partiellement saturés. La prédiction à long terme et la compréhension des transferts gazeux sont essentielles afin d'assurer les enjeux économiques, écologiques et sanitaires liés au stockage géologique de CO₂. Il importe donc de disposer de modèles capables de reproduire les écoulements qui se produisent au sein des différents matériaux supposés assurer l'étanchéité du réservoir.

En outre, le comportement mécanique des géomatériaux influence les aspects hydrauliques du problème. Les déformations volumiques ont pour conséquence une modification de la porosité et donc du volume de fluide emmagasiné dans la structure poreuse. L'introduction d'autres couplages plus ou moins complexes entre les aspects mécaniques, hydrauliques et même chimiques du problème est un enjeu important dans le domaine du stockage géologique de CO₂ (Abou Akar *et al.*, 2005). Le creusement d'un puits entraîne une redistribution des contraintes autour de la galerie qui peut éventuellement endommager le massif. La zone endommagée alors formée autour du puits correspond au terme d'*Excavated Damage Zone* employé dans le domaine du stockage des déchets radioactifs. Par ailleurs, lors du creusement et de l'exploitation des puits, les roches de couverture, essentiellement composées d'argiles, sont progressivement désaturées. Cette désaturation peut provoquer des phénomènes d'altération physico-chimique, de retrait et de fissuration des roches. Enfin, l'injection de gaz dans le réservoir à une pression trop élevée peut entraîner le développement de chemins préférentiels d'écoulement. Tous ces phénomènes sont de nature à modifier les propriétés de transfert autour du puits et donc perturber les écoulements dans cette zone (Gerard, 2011).

Ce chapitre présente un modèle hydromécanique des géomatériaux partiellement saturés. Ce dernier a été développé dans les thèses de doctorat de Collin (Collin, 2003) et Gerard (Gerard, 2011).

Lorsqu'un milieu poreux est partiellement saturé, la répartition des fluides en présence est gouvernée par des phénomènes d'interface qui se manifestent à une échelle microscopique. Les notions de capillarité et de pression capillaire sont introduites dans la première partie de ce chapitre. La relation entre la pression capillaire et la saturation en eau est appelée courbe de rétention. Le modèle de courbe de rétention de van Genuchten est présenté par la suite.

Ensuite, les équations de conservation et de transfert des fluides, ainsi que les équations d'équilibre du modèle d'écoulement biphasique sont écrites. Le modèle envisagé est développé en conditions isothermes. Il considère la présence d'eau et de CO₂ dissous au sein de la phase liquide et d'un mélange de vapeur d'eau et de dioxyde de carbone « sec » au sein de la phase gazeuse. Les mouvements des différents composants, l'eau et le CO₂, sont liés à l'advection de chaque phase et à leur diffusion au sein de ces phases. Les propriétés des fluides en phases liquide et gazeuse nécessaires à l'utilisation du modèle sont données.

Finalement, des équations de couplage entre les aspects écoulement et mécanique sont introduites. Ces équations font appel aux notions de contrainte effective et de variation d'emmagasinement. Les lois de comportement mécanique utilisées dans le cadre de ce travail de fin d'études sont également rappelées. Il s'agit de modèles de comportement classiques : lois élastique et élastoplastique à frottement interne.

3.2 Notion de capillarité

Lorsque deux fluides non-miscibles se partagent l'espace poreux, l'interface qui se crée entre ceux-ci est soumise à des tensions superficielles σ_{GL} . En effet, à cet endroit, les molécules sont soumises aux actions différentes de chacun des fluides et les forces d'interactions moléculaires ne s'équilibrivent pas, contrairement aux molécules situées au sein du fluide (figure 3.1). Les tensions de surface permettent alors de rétablir l'équilibre (Delage & Cui, 2000).

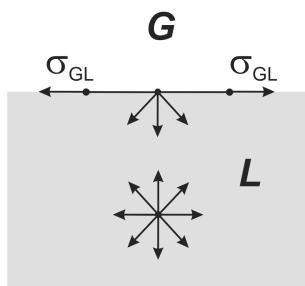


FIGURE 3.1 – Forces intermoléculaires sur une particule de fluide (Collin, 2003)

Le développement des tensions superficielles à l'interface entre deux phases permet d'expliquer la remontée de l'eau dans un tube capillaire plongé dans ce fluide (figure 3.2). Exprimant l'équilibre vertical, la loi de Jurin fournit la hauteur d'ascension h de l'eau dans un capillaire de rayon r :

$$p_c = p_g - p_w = \rho_w \cdot g \cdot h = \frac{2\sigma_{GL} \cos \theta}{r} \quad (3.1)$$

où p_c est la pression capillaire, définie comme la différence entre les pressions de gaz p_g et d'eau p_w , ρ_w désigne la masse volumique de l'eau, g , la constante de gravité et θ , l'angle de contact formé entre l'interface gaz - eau et le tube (Delage & Cui, 2000).

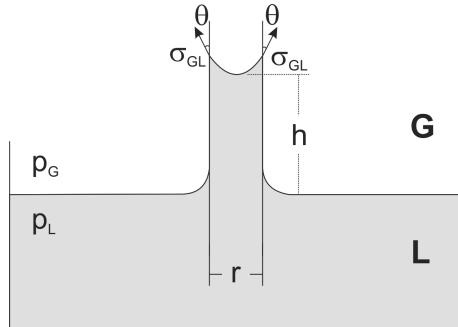


FIGURE 3.2 – Modèle physique du phénomène capillaire (d'après Delage & Cui, 2000)

Les phénomènes se déroulant dans les milieux poreux partiellement saturés peuvent alors être expliqués par analogie avec le concept de tube capillaire. En effet, la structure poreuse des sols granulaires peut être assimilée à un ensemble de fins tubes de différents rayons. Les ménisques capillaires se situent au niveau des plus petits pores du squelette solide (figure 3.3(a)). Lorsque le sol se désature, les ménisques deviennent de plus en plus petits avec un faible rayon de courbure et la pression capillaire augmente (Delage & Cui, 2000).

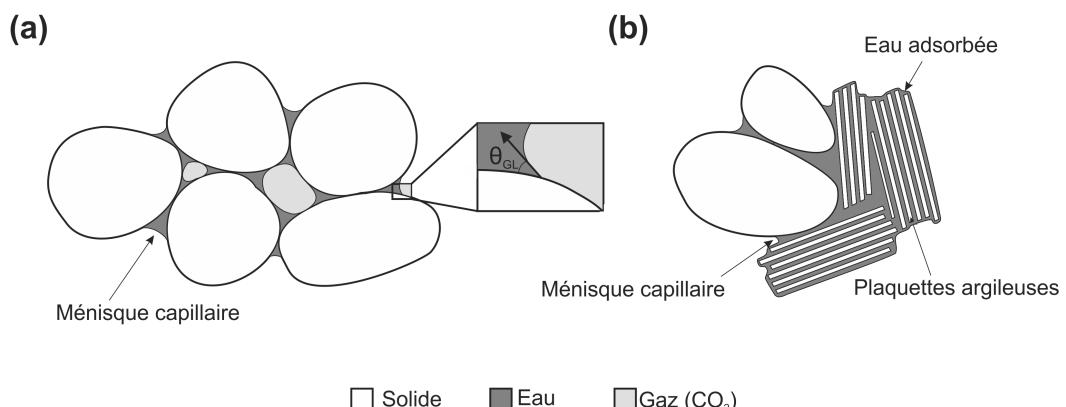


FIGURE 3.3 – Représentation d'un milieu poreux partiellement saturé : (a) sol granulaire et (b) sol fin (d'après Delage & Cui, 2000)

Dans les sols argileux partiellement saturés, les interactions physico-chimiques entre l'eau et les minéraux argileux modifient l'état de l'eau. Une partie de l'eau est adsorbée à la surface des plaquettes d'argile et les ménisques n'y sont plus clairement identifiables (figure 3.3(b)). Dans les matériaux fins, la notion de pression capillaire perd donc de son sens. Cependant, elle est toujours utilisée pour caractériser le comportement hydromécanique de ce type de matériau (Delage & Cui, 2000 ; Gerard, 2011).

3.3 Courbes de rétention

La courbe de rétention exprime la relation entre la pression capillaire et le degré de saturation en eau d'un milieu poreux partiellement saturé.

La courbe de rétention d'un matériau est obtenue de manière expérimentale par pesée d'un échantillon soumis à différentes valeurs d'humidité relative (à température donnée constante). L'humidité relative h_r est définie comme le rapport entre la pression partielle de vapeur d'eau dans l'air p_v et la pression de vapeur saturante p_{v_0} ¹. Elle est reliée à la pression capillaire p_c par la loi de Kelvin :

$$p_c = \frac{-R \cdot T \cdot \rho_w}{M_w} \ln h_r \quad (3.2)$$

où R est la constante des gaz parfaits et vaut $8,314 \text{ J.mol}^{-1}\text{K}^{-1}$, T est la température absolue exprimée en Kelvin et M_w est la masse molaire de l'eau et vaut $0,018 \text{ kg.mol}^{-1}$ (Delage & Cui, 2000).

Ainsi, l'échantillon, soumis à une humidité relative donnée, est pesé à intervalles réguliers jusqu'à ce que sa masse se stabilise. Son degré de saturation en eau $S_{r,w}$ peut alors être déterminé selon :

$$S_{r,w} = \frac{V_w}{V_v} = \frac{M - M_{\text{sec}}}{M_{\text{sat}} - M_{\text{sec}}} \quad (3.3)$$

où V_w est le volume d'eau, V_v le volume des vides, M la masse stabilisée de l'échantillon à l'humidité relative considérée, M_{sec} la masse de l'échantillon sec et M_{sat} désigne la masse de l'échantillon saturé en eau (Gerard, 2011).

Bien que simple dans ses principes, la détermination de la courbe de rétention d'un matériau est très complexe en pratique. Cela explique le peu de données expérimentales relatives au comportement hydromécanique des sols non saturés disponibles. Les difficultés rencontrées lors de l'essai sont essentiellement liées à l'imposition de l'humidité relative. Différentes techniques ont été développées afin de couvrir la large gamme de pressions capillaires rencontrées dans les sols (jusqu'à plusieurs centaines de mégapascals) : utilisation de solutions salines, contrôle par « translation d'axes », osmotique ou par phase vapeur. Une description de ces méthodes est proposée par Delage & Cui (Delage & Cui, 2000).

1. La pression de vapeur saturante est la plus grande pression de vapeur que l'air peut supporter, à une température donnée. A 15°C , elle vaut $p_{v,0} = 1,7 \text{ kPa}$.

Différents modèles de courbe de rétention sont disponibles dans la littérature. Parmi ceux-ci, le modèle de van Genuchten est probablement le plus répandu (figure 3.4). Il est en effet relativement simple et assure la continuité entre les états saturé et partiellement saturé (la dérivée de la saturation s'annule pour une succion nulle). Par ailleurs, des modèles de courbes de perméabilités à l'eau et au gaz qui dépendent des paramètres de van Genuchten existent dans la littérature (voir la section 3.5.5 de ce chapitre). L'expression de l'équation de van Genuchten (1980) est la suivante :

$$S_{r,w} = S_{res} + \frac{S_{max} - S_{res}}{\left[1 + \left(\frac{p_c}{P_r}\right)^n\right]^{1-\frac{1}{n}}} \quad (3.4)$$

où :

- S_{res} est la **saturation résiduelle**, correspondant à la quantité d'eau qu'il est impossible d'extraire, quelle que soit la pression capillaire imposée.
- S_{max} est la **saturation maximale**. Elle est l'équivalent de la saturation résiduelle pour l'air.
- P_r est la **pression d'entrée d'air**. Il s'agit de la pression capillaire à partir de laquelle le sol se désature, c'est-à-dire pour laquelle il existe une phase gazeuse continue².
- n est un paramètre contrôlant la forme de la courbe de rétention.

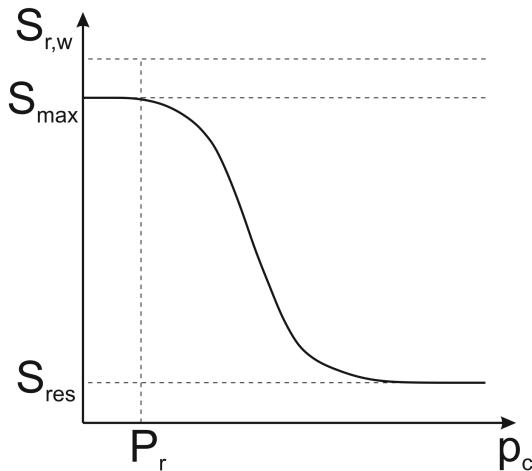


FIGURE 3.4 – Modèle de courbe de rétention proposé par van Genuchten

2. Dans le loi de van Genuchten, le paramètre P_r ne correspond pas en toute rigueur au concept de pression d'entrée d'air. En effet, une désaturation est toujours observée, même pour une très faible succion appliquée.

3.4 Equations de conservation des masses de fluides

Le modèle d'écoulement décrit dans ce chapitre est un modèle d'écoulement biphasique liquide - gaz où la phase liquide est faite d'un mélange d'eau et de CO₂ dissous alors que la phase gazeuse est composée de CO₂ « sec » et de vapeur d'eau (figure 3.5).

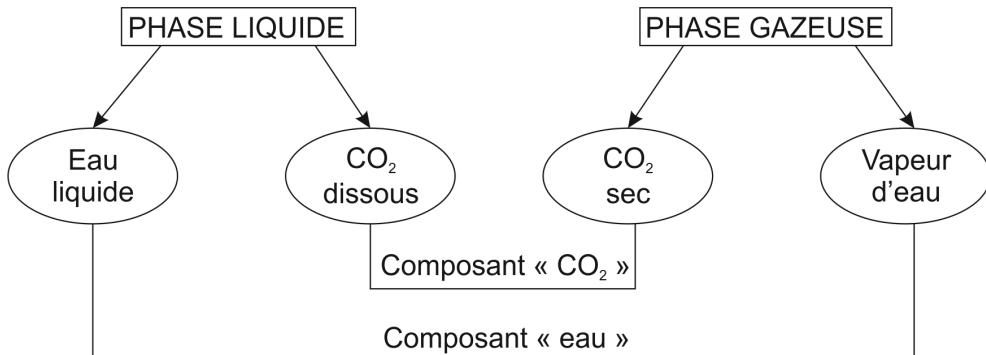


FIGURE 3.5 – Définition des phases et composants

Une équation de conservation de la masse de fluide peut alors être écrite pour chaque espèce chimique (Panday & Corapcioglu, 1989 ; Olivella *et al.*, 1994).

Pour l'eau :

$$\underbrace{\frac{\partial}{\partial t} (\rho_w \cdot \phi \cdot S_{r,w}) + \operatorname{div}(\underline{f}_w)}_{\text{Eau liquide}} + \underbrace{\frac{\partial}{\partial t} (\rho_v \cdot \phi \cdot S_{r,g}) + \operatorname{div}(\underline{f}_v)}_{\text{Vapeur d'eau}} - Q_w = 0 \quad (3.5)$$

où ϕ est la porosité du milieu poreux, ρ_v est la masse volumique de la vapeur d'eau, \underline{f}_w et \underline{f}_v sont les flux massiques respectivement d'eau et de vapeur d'eau, $S_{r,g} = 1 - S_{r,w}$ est la saturation en gaz du milieu poreux et Q_w est un terme de source d'eau.

Pour le CO₂ :

$$\underbrace{\frac{\partial}{\partial t} (\rho_{CO_2} \cdot \phi \cdot S_{r,g}) + \operatorname{div}(\underline{f}_{CO_2})}_{CO_2 \text{ sec}} + \underbrace{\frac{\partial}{\partial t} (\rho_{CO_2-d} \cdot \phi \cdot S_{r,w}) + \operatorname{div}(\underline{f}_{CO_2-d})}_{CO_2 \text{ dissous}} - Q_{CO_2} = 0 \quad (3.6)$$

où ρ_{CO_2} et ρ_{CO_2-d} sont les masses volumiques respectivement du CO₂ sec et du CO₂ dissous, \underline{f}_{CO_2} et \underline{f}_{CO_2-d} sont les flux massiques respectivement de CO₂ et de CO₂ dissous et Q_{CO_2} est un terme de source de dioxyde de carbone.

Dans ces équations, les termes de dérivées partielles temporelles correspondent à la variation de l'emmagasinement des fluides dans la structure poreuse alors que la divergence du flux exprime la différence entre les flux entrant et sortant d'un élément de volume. Les expressions des flux massiques des différentes espèces sont développées dans la section qui suit.

3.5 Equations de transfert des fluides

Les équations de transfert des fluides sont de l'ordre des équations constitutives d'un modèle d'écoulement. Elles décrivent les différentes façons par lesquelles les fluides peuvent circuler dans un milieu poreux. Pour rappel, le modèle décrit dans ce chapitre considère la présence d'eau et de CO₂ dissous au sein de la phase liquide et d'un mélange de vapeur d'eau et de dioxyde de carbone sec au sein de la phase gazeuse. Il prend en compte l'advection de chaque phase (flux darcéen) et la diffusion des composants au sein de chaque phase (flux fickien). Etant donné la faible quantité de gaz dissous, la diffusion de l'eau au sein de la phase liquide est négligée.

Les flux massiques utilisés dans les équations 3.5 et 3.6 s'écrivent alors :

$$\underline{f}_w = \rho_w \cdot \underline{q}_l \quad (3.7)$$

$$\underline{f}_v = \rho_v \cdot \underline{q}_g + \underline{i}_v \quad (3.8)$$

$$\underline{f}_{CO_2} = \rho_{CO_2} \cdot \underline{q}_g + \underline{i}_{CO_2} \quad (3.9)$$

$$\underline{f}_{CO_2-d} = \rho_{CO_2-d} \cdot \underline{q}_l + \underline{i}_{CO_2-d} \quad (3.10)$$

où \underline{q}_l et \underline{q}_g sont les vitesses d'advection des phases liquide et gazeuse et \underline{i}_v , \underline{i}_{CO_2} et \underline{i}_{CO_2-d} sont les flux de diffusion respectivement de la vapeur d'eau, du CO₂ sec et du CO₂ dissous. Les expressions de chacun de ces termes sont explicitées dans les sections 3.5.1 à 3.5.4.

3.5.1 Advection de la phase liquide

En milieu saturé, la loi de Darcy exprime la quantité d'eau qui traverse un milieu poreux par unité de temps. Elle s'écrit :

$$\underline{q}_l = \frac{-\underline{\underline{K}}_w}{\rho_w \cdot g} \cdot [\underline{\underline{\text{grad}}}(p_w) + g \cdot \rho_w \cdot \underline{\underline{\text{grad}}}(z)] \quad (3.11)$$

où $\underline{\underline{K}}_w$ est le tenseur de perméabilité à l'eau du milieu et z , la coordonnée verticale, positive vers le haut.

Lorsque le milieu étudié est partiellement saturé, la loi de Darcy reste valable à condition d'adapter le coefficient de perméabilité. En effet, la section d'écoulement de la phase liquide est réduite suite à la présence de la phase gazeuse. Ainsi, afin de modéliser l'évolution de la perméabilité avec le degré de saturation en eau du milieu, la perméabilité à l'eau est souvent exprimée comme le produit d'une perméabilité intrinsèque K_{int}^{sat} déterminée en conditions saturées et d'une perméabilité relative $k_{r,w}$ qui dépend du degré de saturation :

$$K_w(S_{r,w}) = K_{int}^{sat} \cdot k_{r,w}(S_{r,w}). \quad (3.12)$$

Un modèle de courbe de perméabilité relative à l'eau est présenté à la section 3.5.5.

La loi de Darcy généralisée s'écrit alors :

$$\underline{q}_l = \frac{-\underline{\underline{K}}_{int}^{sat} \cdot k_{r,w}(S_{r,w})}{\mu_w} [\underline{\underline{grad}}(p_w) + g \cdot \rho_w \cdot \underline{\underline{grad}}(z)] \quad (3.13)$$

où $\underline{\underline{K}}_{int}^{sat}$ est le tenseur de perméabilité intrinsèque en conditions saturées, $k_{r,w}$, la perméabilité relative de l'eau liquide et μ_w , la viscosité dynamique de l'eau.

Remarquons qu'en toute rigueur, ce sont les propriétés du mélange eau - CO₂ dissous, et non celles de l'eau, qui devraient apparaître dans l'équation 3.13. Toutefois, étant donnée la faible quantité de dioxyde de carbone dissous, l'influence de ce dernier sur la perméabilité, la viscosité et la masse volumique de la phase liquide est négligeable.

3.5.2 Advection de la phase gazeuse

L'équation d'advection de la phase gazeuse, composée d'un mélange de vapeur d'eau et de CO₂ sec, est obtenue de manière analogue à celle de la phase liquide en adaptant l'équation classique de Darcy (équation 3.11). Ainsi, en vue de reproduire l'évolution de la perméabilité au gaz avec le degré de saturation, celle-ci peut être exprimée comme le produit d'une perméabilité intrinsèque K_{int}^{sat} et d'une perméabilité relative au gaz $k_{r,g}$, fonction du degré de saturation du milieu :

$$K_g(S_{r,w}) = K_{int}^{sat} \cdot k_{r,g}(S_{r,w}). \quad (3.14)$$

Remarquons que la perméabilité intrinsèque correspond à la perméabilité à l'eau du milieu saturé ou à la perméabilité au gaz du milieu sec. Toutefois, il est possible d'écrire des modèles d'écoulement sans faire appel à la notion de perméabilité intrinsèque, en considérant l'existence distincte de perméabilités à l'eau et au gaz.

L'advection de la phase gazeuse dans un milieu poreux partiellement saturé est donnée par la loi de Darcy généralisée :

$$\underline{q}_g = \frac{-\underline{\underline{K}}_{int}^{sat} \cdot k_{r,g}(S_{r,w})}{\mu_g} [\underline{\underline{grad}}(p_g) + g \cdot \rho_g \cdot \underline{\underline{grad}}(z)] \quad (3.15)$$

où $k_{r,g}$, la perméabilité relative du gaz qui exprime l'évolution de la perméabilité en fonction du degré de saturation en eau et μ_g et ρ_g sont les viscosité dynamique et masse volumique de la phase gazeuse. Deux modèles de courbe de perméabilité relative au gaz sont proposés à la section 3.5.5.

Les propriétés de la phase gazeuse sont celles du mélange vapeur d'eau - CO₂. Elles dépendent des propriétés de chacune des espèces du mélange. La viscosité dynamique de la phase gazeuse est donnée par :

$$\mu_g = \left[\frac{\rho_{CO_2}}{\rho_g \cdot \mu_{CO_2}} + \frac{\rho_v}{\rho_g \cdot \mu_v} \right]^{-1} \quad (3.16)$$

où μ_{CO_2} et μ_v désignent les viscosités dynamiques du CO₂ sec et de la vapeur d'eau.

La masse volumique du mélange gazeux est quant à elle obtenue par la relation (Pollock, 1986 ; Gawin et al., 1996) :

$$\rho_g = \rho_{CO_2} + \rho_v. \quad (3.17)$$

3.5.3 Diffusion au sein de la phase liquide

Le flux de diffusion du dioxyde de carbone dissous au sein de la phase liquide est lié au gradient de concentration de CO₂ dans cette phase. Il peut être modélisé par la loi de Fick :

$$\underline{i}_{CO_2-d} = -\phi \cdot S_{r,w} \cdot \tau \cdot D_{CO_2-d/w} \cdot \rho_w \cdot \underline{\text{grad}} \left(\frac{\rho_{CO_2-d}}{\rho_w} \right) \quad (3.18)$$

où τ est la tortuosité du milieu poreux et $D_{CO_2-d/w}$ est le coefficient de diffusion du CO₂ dissous dans l'eau. La tortuosité est définie comme le carré du rapport entre la distance qui serait parcourue en ligne droite par une particule de fluide et la distance réellement parcourue entre deux points. Elle est donc représentative de la plus ou moins grande difficulté avec laquelle une molécule diffuse au sein d'un milieu poreux.

3.5.4 Diffusion au sein de la phase gazeuse

La phase gazeuse est composée de vapeur d'eau et de CO₂ sec. Chaque composant peut diffuser au sein de cette phase, le flux de diffusion d'un composant du mélange étant égal à l'opposé du flux de l'autre composant. Ainsi, les flux diffusifs de vapeur d'eau et de CO₂ dans la phase gazeuse sont donnés par la loi de Fick selon :

$$\underline{i}_v = -\phi \cdot (1 - S_{r,w}) \cdot \tau \cdot D_{v/CO_2} \cdot \rho_{CO_2} \cdot \underline{\text{grad}} \left(\frac{\rho_v}{\rho_{CO_2}} \right) = -\underline{i}_{CO_2} \quad (3.19)$$

où D_{v/CO_2} est le coefficient de diffusion du mélange gazeux vapeur d'eau - CO₂ sec.

3.5.5 Courbes de perméabilité à l'eau et au gaz

Les équations de Darcy généralisées (3.12) et (3.15) ont introduit les notions de perméabilités relatives à l'eau et au gaz, fonctions du degré de saturation en eau du milieu poreux. Ces perméabilités à l'eau et au gaz sont obtenues de manière expérimentale par différentes méthodes : méthodes de Gardner et du profil instantané de Corey pour les perméabilités à l'eau, de Yoshimi et Osterberg pour le gaz ou encore méthode en régime permanent pour les perméabilités à l'eau et au gaz. Dans tous les cas, la détermination des perméabilités est très délicate, ce qui explique le peu de données disponibles (Delage & Cui, 2000).

Différents modèles de perméabilité à l'eau et au gaz sont disponibles dans la littérature. Nous en présentons un pour l'eau et deux pour le gaz.

➤ Perméabilité à l'eau.

Van Genuchten (1980) a proposé un modèle de courbe de perméabilité à l'eau basé sur sa courbe de rétention (équation 3.4). Il s'écrit :

$$k_{r,w} = \sqrt{S_{r,we}} \left(1 - \left(1 - S_{r,we}^{1/m} \right)^m \right)^2 \quad (3.20)$$

où $m = 1 - 1/n$, n étant un paramètre de la courbe de rétention de van Genuchten introduit à la section 3.3 et $S_{r,we}$ est le degré de saturation effectif en eau, défini par :

$$S_{r,we} = \begin{cases} \frac{S_{r,w} - S_{res}}{1 - S_{res}} & \text{si } S_{r,w} > S_{res} \\ 0 & \text{si } S_{r,w} < S_{res} \end{cases} \quad (3.21)$$

➤ Perméabilité au gaz.

La loi polynomiale cubique suivante est couramment utilisée pour modéliser l'évolution de la perméabilité au gaz en fonction de la saturation en eau du milieu :

$$k_{r,g} = (1 - S_{r,we})^3. \quad (3.22)$$

D'autres modèles se basent sur la courbe de rétention de van Genuchten (équation 3.4), interprétée en termes de distribution de tailles de pores. C'est par exemple le cas du modèle de perméabilité au gaz de Mualem (1976) qui s'écrit :

$$k_{r,g} = \sqrt{1 - S_{r,w}} \left(1 - S_{r,we}^{1/m} \right)^{2m} \quad (3.23)$$

3.6 Propriétés des fluides

Les propriétés de l'eau et du dioxyde de carbone utilisées dans le modèle d'écoulement biphasique sont reprises dans le tableau 3.1. L'eau et le gaz sont considérés comme des fluides compressibles dont les masses volumiques dépendent de la pression. L'évolution de la masse volumique de l'eau avec la pression est donnée par :

$$\rho_w = \rho_{w,0} \left[1 + \frac{p_w - p_{w,0}}{\chi_w} \right] \quad (3.24)$$

où $\rho_{w,0}$ est la masse volumique à la pression $p_{w,0}$ de référence et χ_w est la compressibilité de l'eau.

On suppose que la phase gazeuse est quant à elle un mélange idéal de gaz parfaits vérifiant la loi de Dalton :

$$p_g = p_v + p_{CO_2}. \quad (3.25)$$

Les pressions partielles de vapeur d'eau et de dioxyde de carbone s'obtiennent par loi des gaz parfaits :

$$p_i \cdot V = n_i \cdot R \cdot T \quad (3.26)$$

où p_i et n_i sont respectivement la pression partielle et le nombre de moles du composant i contenu dans un volume V .

Sachant que le nombre de mole n_i du composant i est égal au rapport de la masse de gaz m_i et de la masse molaire M_i , la masse volumique de chaque composant gazeux peut être facilement déduite :

$$\rho_i = \frac{M_i \cdot p_i}{R \cdot T}. \quad (3.27)$$

μ_w	Viscosité dynamique de l'eau ($Pa.s$)	0,001
ρ_w	Masse volumique de l'eau ($kg.m^{-3}$)	1000
χ_w	Compressibilité de l'eau (Pa^{-1})	5.10^{-10}
μ_v	Viscosité dynamique de la vapeur d'eau ($Pa.s$)	10^{-5}
μ_{CO_2}	Viscosité dynamique du CO_2 ($Pa.s$)	$1,5.10^{-5}$
ρ_{CO_2}	Masse volumique du CO_2 ($kg.m^{-3}$)	1,87
H_{CO_2}	Coefficient de Henry du CO_2 (-)	0,8317
D_{v/CO_2}	Coefficient de diffusion moléculaire du mélange de CO_2 gazeux et de la vapeur d'eau ($m^2.s^{-1}$)	$1,38.10^{-5}$
$D_{CO_2-d/w}$	Coefficient de diffusion moléculaire du mélange de CO_2 dissous et de l'eau liquide ($m^2.s^{-1}$)	$1,91.10^{-9}$

TABLE 3.1 – Propriétés de l'eau et du CO_2 à 20°C et $p_g = 10^5 Pa$

3.7 Equations d'équilibre

Dans les équations de conservation de la masse des fluides 3.5 et 3.6, nous avons introduit quatre masses volumiques différentes correspondant à l'eau et au CO_2 présents en phases liquide et gazeuse. Or, ces masses volumiques sont *a priori* inconnues puisqu'elles dépendent des pressions partielles des composants dans chacune des phases. Alors que nous avons écrit deux équations d'équilibre (les équations de conservation de la masse), nous avons donc quatre inconnues (les quatre pressions partielles). Afin de compléter le modèle d'écoulement en conditions de saturation partielle, nous devons donc écrire deux relations supplémentaires. Ces relations sont des équations d'équilibre entre les différents états d'un même composant chimique.

3.7.1 Loi de Kelvin

La loi de Kelvin exprime l'équilibre entre la vapeur d'eau et l'eau liquide. Elle a déjà été présentée dans la section 3.3. Pour rappel, elle s'écrit :

$$h_r = \frac{p_v}{p_{v,0}} = \exp\left(\frac{-p_c \cdot M_w}{R \cdot T \cdot \rho_w}\right) \quad (3.28)$$

où h_r est l'humidité relative, p_v , $p_{v,0}$ et p_c sont respectivement les pressions de vapeur, de vapeur saturante et capillaire, R est la constante des gaz parfaits, T , la température absolue exprimée en Kelvin et M_w désigne la masse molaire de l'eau.

3.7.2 Loi de Henry

La loi de Kelvin exprime l'équilibre entre le CO₂ sec de la phase gazeuse et celui dissous dans la phase liquide. Elle s'écrit :

$$p_{CO_2} = K_{CO_2-d}^{eq}(T) \cdot x_{CO_2-d} \quad (3.29)$$

où p_{CO_2} représente la pression partielle du dioxyde de carbone dans la phase gazeuse, $K_{CO_2-d}^{eq}$ est une constante d'équilibre qui ne dépend que de la température et x_{CO_2-d} est la fraction molaire de CO₂ dissous dans l'eau.

Si l'on fait l'hypothèse que le CO₂ vérifie la loi des gaz parfaits, la loi de Henry peut être réécrite pour exprimer l'équilibre des densités de CO₂ sec et CO₂ dissous :

$$\rho_{CO_2-d} = H_{CO_2}(T) \cdot \rho_{CO_2} \quad (3.30)$$

où H_{CO_2} est la constante de Henry du CO₂ dissous, fonction uniquement de la température.

3.8 Couplage hydromécanique

Jusqu'à présent, nous avons présenté un modèle d'écoulement biphasique en conditions de saturation partielle sans introduire de mécanique dans les équations. Les couplages entre les aspects hydrauliques et mécaniques du problème sont pris en compte en introduisant dans le modèle une loi constitutive couplée. Dans le modèle développé, les interactions entre la mécanique et l'écoulement apparaissent à deux endroits : dans le concept de contraintes effectives (section 3.8.1) et dans l'emmagasinement des fluides (section 3.8.2).

3.8.1 Notion de contraintes effectives

Afin de reproduire le comportement mécanique d'un sol saturé, Terzaghi a introduit la notion de contrainte effective. Selon Terzaghi, la contrainte totale $\underline{\sigma}$ peut être décomposée en deux contributions : une première contribution p_w due à la pression de l'eau et une

seconde $\underline{\underline{\sigma}}'$, appelée contrainte effective, due aux contacts supposés ponctuels entre les grains de la matrice solide :

$$\underline{\underline{\sigma}} = \underline{\underline{\sigma}}' + p_w \underline{\underline{I}} \quad (3.31)$$

où $\underline{\underline{I}}$ est le tenseur identité.

Lorsque le milieu poreux est partiellement saturé, le postulat de Terzaghi n'est plus valable. Prenant en compte la compressibilité des grains solides, Bishop a proposé la définition suivante de la contrainte effective :

$$\underline{\underline{\sigma}} = \underline{\underline{\sigma}}' + b \cdot (p_w \cdot S_{r,w} + p_g \cdot (1 - S_{r,w})) \underline{\underline{I}} \quad (3.32)$$

où $\underline{\underline{\sigma}}$ est le tenseur des contraintes totales, $\underline{\underline{\sigma}}'$, le tenseur des contraintes effectives de Bishop et b , le coefficient de Biot.

3.8.2 Variation de l'emmagasinement des fluides

L'emmagasinement d'un fluide correspond à la quantité d'eau liquide dans le volume poreux. La variation de l'emmagasinement \dot{S} est donnée par :

$$\dot{S} = \frac{\partial}{\partial t} (\rho_w \cdot \phi \cdot S_{r,w}) = \left[\frac{\rho_{w,0} \cdot \phi \cdot S_{r,w}}{\chi_w} + \frac{\rho_w \cdot S_{r,w}^2 \cdot (b - \phi)}{k_s} \right] \dot{p} + \rho_w \cdot \phi \cdot \dot{S}_{r,w} + b \cdot \rho_w \cdot S_{r,w} \cdot \dot{\epsilon}_v \quad (3.33)$$

où k_s désigne le module de rigidité des grains solides, p est la pression de fluide (la présence de CO₂ gazeux et de vapeur d'eau est négligée) et $\dot{\epsilon}_v$ est la déformation volumique.

La variation de l'emmagasinement des fluides prend donc en compte différentes contributions : la variation du volume poreux (due aux déformations du squelette solide), la déformation des grains et les variations de pression de fluide et de saturation.

3.9 Loi mécanique : modèle élastoplastique à frottement interne

Les lois de comportement mécanique sont des relations reliant les taux de contrainte aux taux de déformation. Trois types fondamentaux de comportement sont distingués : l'élasticité, la plasticité et la viscosité. Dans les modèles élastiques, l'état de contrainte à un instant donné n'est fonction que de la déformation à cet instant. Les lois plastiques prennent en compte l'histoire du matériau. Finalement, la viscosité introduit une dépendance des déformations vis-à-vis du temps (Charlier, 2010).

Le modèle élastoplastique est classique en mécanique des sols et des roches. Il associe la plasticité à l'élasticité, le passage d'un comportement à l'autre étant déterminé par un critère d'entrée en plasticité (Charlier, 2010).

Le critère de Drucker-Prager est souvent utilisé pour la modélisation du comportement mécanique des géomatériaux. Il prend en compte la cohésion c et l'angle de frottement

interne φ du matériau. Si l'on définit les premier et second invariants des contraintes I_σ et $II_{\hat{\sigma}}$ par :

$$I_\sigma = \sigma_{ii}$$

$$II_{\hat{\sigma}} = \sqrt{\frac{1}{2} \hat{\sigma}_{ij} \hat{\sigma}_{ij}}$$

le critère de Drucker-Prager s'écrit :

$$f = II_{\hat{\sigma}} - m \left(I_\sigma + \frac{3c}{\tan \varphi} \right) = 0 \quad (3.34)$$

où m est donné par :

$$m = \frac{2 \sin \varphi}{\sqrt{3}(3 - \sin \varphi)}.$$

Le critère de Drucker-Prager peut être représenté dans l'espace des premiers et seconds invariants des contraintes (figure 3.6(a)) ou dans l'espace des contraintes principales (figure 3.6(b)). Sur ces figures, le critère d'entrée en plasticité sépare les états de contrainte élastique ($f < 0$) des états plastiques situés sur la droite ou surface de plasticité ($f = 0$). Les états de contraintes situés tels que $f > 0$ sont interdits. Une condition de cohérence permet de prendre en compte cette interdiction : une fois la plasticité atteinte, l'état de contrainte reste sur la surface de plasticité (Charlier, 2010).

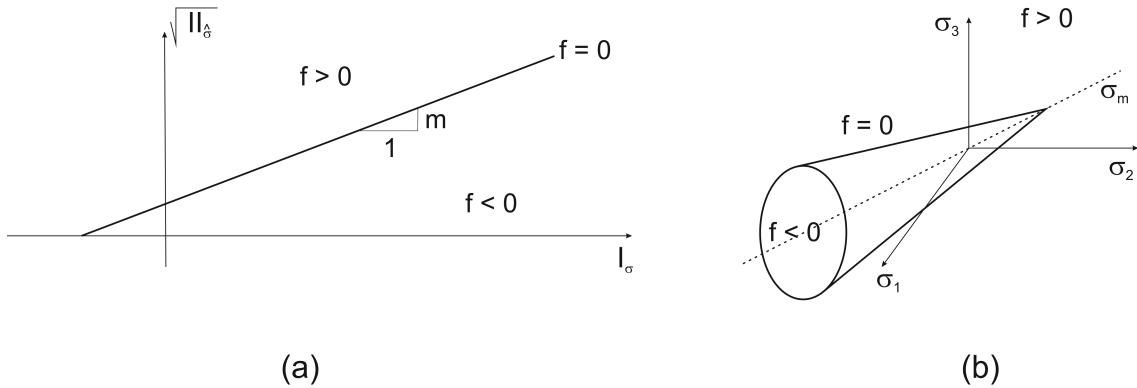


FIGURE 3.6 – Critère de Drucker-Prager (a) dans l'espace des invariants des contraintes et (b) dans l'espace des contraintes principales

Chapitre 4

Cas synthétique : étude 1D des transferts de CO₂ dans un milieu poreux partiellement saturé

4.1 Introduction

Le stockage géologique de CO₂ est une des méthodes envisagées afin de réduire les émissions de gaz à effets de serre. Les aquifères salins profonds, les réservoirs déplétés d'hydrocarbures et les veines de charbon inexploitables sont les réservoirs aujourd'hui les plus couramment étudiés pour stocker le dioxyde de carbone. A coté des ces réservoirs conventionnels, certaines anciennes mines de charbon pourraient également servir de site pour la séquestration du CO₂. Toutefois, un des enjeux majeurs concerne l'étanchéité des anciens puits miniers, vecteurs préférentiels de fuite du CO₂.

Afin de reproduire les transferts biphasiques d'eau et de CO₂ autour du système de scellement des puits, un modèle hydromécanique de géomatériaux partiellement saturés a été présenté au chapitre précédent.

Dans ce chapitre, la réponse du modèle d'écoulement est étudiée au travers d'un cas synthétique simple simulant l'injection de CO₂ à pression imposée dans une colonne en béton. Cette colonne représente de manière simplifiée le remplissage d'un ancien puits de mine. Une étude 1D des transferts de gaz dans la colonne de béton est réalisée. L'objectif de cette première modélisation est une meilleure compréhension des concepts physiques traduits par les équations mathématiques du modèle d'écoulement. Une étude de sensibilité est ainsi réalisée afin de mettre en avant l'influence des différents paramètres sur les prédictions du modèle. Les paramètres les plus sensibles seront ceux qu'il importera de déterminer expérimentalement avec le plus de précision que possible.

4.2 Définition du problème

Un calcul 1D en écoulement pur des transferts d'eau et de CO₂ dans une colonne en béton est réalisé. La colonne de béton représente le remplissage d'un puits de mine. D'une hauteur de 100 mètres, elle est supposée en contact avec l'atmosphère à son sommet (figure 4.1(a)). Par conséquent, les pressions d'eau et de gaz y sont fixées. La pression de gaz est égale à la pression atmosphérique, soit 0,1 MPa. La pression d'eau est quant à elle fixée à -30 MPa, cette valeur correspondant à une humidité relative de 80%. Ces valeurs de pressions de gaz et d'eau serviront également de conditions initiales dans le béton.

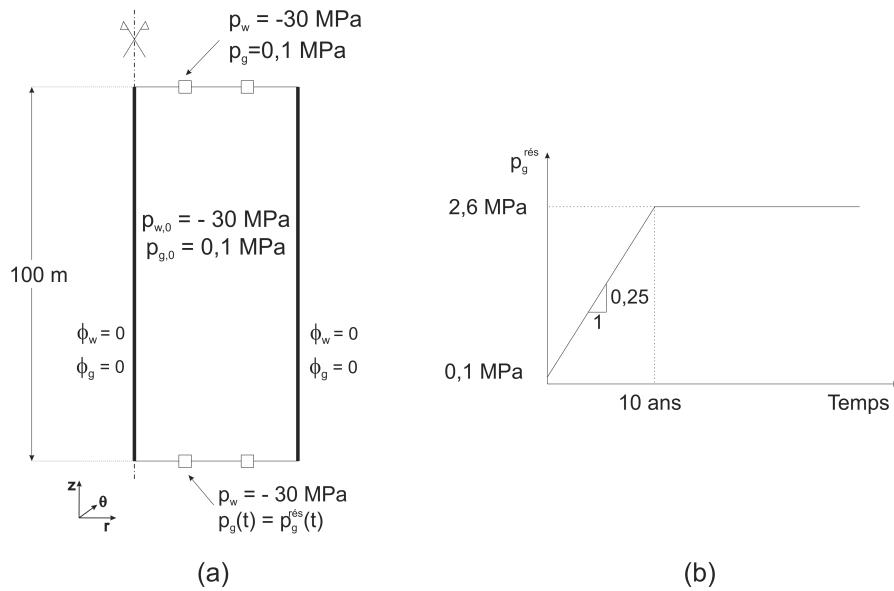


FIGURE 4.1 – Géométrie du problème

Afin de représenter l'injection de CO₂ dans la mine (non modélisée), la pression de gaz à la base de la colonne est progressivement augmentée de 0,1 MPa à 2,6 MPa en 10 ans, avant d'être maintenue constante (figure 4.1(b)).

Le problème des transferts d'eau et de CO₂ dans la colonne de béton est étudié en conditions isothermes. Le modèle d'écoulement utilisé est celui présenté au chapitre 3. Pour rappel, il s'agit d'un modèle d'écoulement biphasique en conditions de saturation partielle. Le modèle prend en compte la présence d'eau et de CO₂ à la fois dans les phases liquide et gazeuse. Deux modes de transports sont considérés : l'advection de chaque phase et la diffusion de l'eau et du CO₂ au sein de ces phases. Les différentes propriétés des fluides ont également été présentées au chapitre précédent (tableau 3.1).

Les paramètres hydrauliques du béton sont repris au tableau 4.1. Ils correspondent à des propriétés « types » utilisées dans les modélisations liées à l'enfouissement de déchets radioactifs (Gerard *et al.*, 2008). La courbe de rétention de van Genuchten est utilisée (équation 3.4). La courbe de perméabilité relative à l'eau considérée est également celle

de van Genuchten (équation 3.20), alors qu'une loi cubique (équation 3.22) est utilisée pour la courbe de perméabilité relative au gaz.

K_{int}^{sat}	Perméabilité intrinsèque (m^2)	1.10^{-16}
ϕ	Porosité (-)	0.15
τ	Tortuosité (-)	0.25
P_r	Paramètre de van Genuchten (MPa)	2
n	Paramètre de van Genuchten (-)	1.54
m	Paramètre de van Genuchten (-)	0.3507
S_{res}	Saturation résiduelle en eau (-)	1
S_{max}	Saturation maximum en eau (-)	0

TABLE 4.1 – Paramètres hydrauliques du béton (Gerard *et al.*, 2008)

4.3 Analyse des résultats

La figure 4.2(a) présente l'évolution des profils de pressions de gaz dans le béton suite à l'injection de CO₂ dans la mine. Cette dernière est, rappelons-le, modélisée par une augmentation de la pression de gaz à la base de la colonne. Au fur et à mesure de l'injection, les pressions de gaz augmentent dans le béton. Cette augmentation est d'autant plus rapide que la perméabilité au gaz du béton est élevée. Lorsque l'injection de CO₂ cesse, les pressions de gaz se stabilisent rapidement (les profils à 20, 50, 100 et 500 ans de la figure 4.2 se superposent). Après 20 ans, l'écoulement de la phase gazeuse semble avoir atteint un régime permanent.

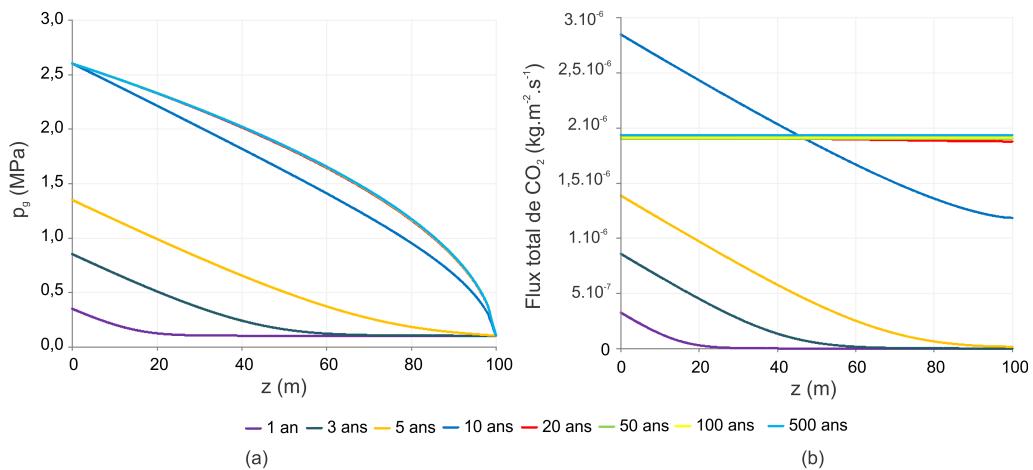


FIGURE 4.2 – Profils des (a) pressions de gaz et (b) flux totaux de CO₂ dans le béton

L'évolution des profils de flux totaux de gaz dans le béton (figure 4.2(b)) corrobore notre analyse. En effet, on remarque qu'après 20 ans, les flux de gaz n'évoluent pratiquement plus, que ce soit dans le temps ou au sein de la colonne. Cela témoigne de l'existence d'un écoulement permanent continu de la phase gazeuse, dicté par la différence de pressions imposée entre les deux extrémités de la colonne. En outre, l'évolution des flux suit exactement celle de la pression de gaz, reflétant le mode de transfert du CO₂ largement prédominant dans les milieux faiblement saturés, à savoir l'advection de la phase gazeuse.

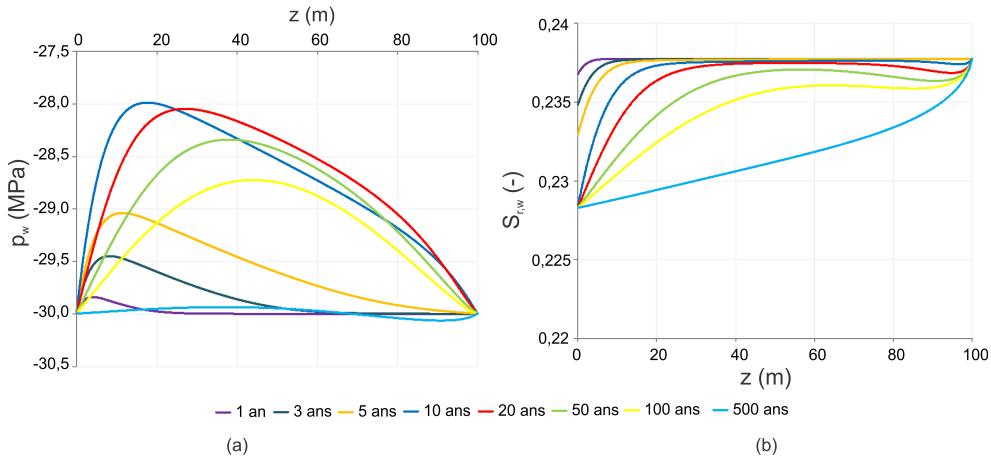


FIGURE 4.3 – Profils des (a) pression d'eau et (b) saturations en eau dans le béton

Les profils de pressions d'eau sont présentés à la figure 4.3(a). On remarque que l'augmentation des pressions de gaz à la base de la colonne provoque une augmentation des pressions d'eau dans le béton. Etant donné que le problème est étudié de manière unidimensionnelle, l'eau ne peut en effet s'échapper par les frontières latérales. Le pic de pression d'eau observé croît au fur et à mesure de l'injection du CO₂ dans la mine et tend à se dissiper une fois que les pressions de gaz sont maintenues constantes à la base de la colonne de béton. Contrairement aux pressions de gaz, les pressions d'eau ne se sont pas encore stabilisées et continuent d'évoluer après 500 ans. Cette différence d'évolution des pressions de gaz et d'eau peut être justifiée par la différence de perméabilité des phases liquide et gazeuse.

Finalement, la figure 4.3(b) présente l'évolution de la saturation en eau. Etant donnée la courbe de rétention du béton, la saturation initiale est relativement faible, de l'ordre de 23%. Les pressions d'eau et de gaz étant fixées aux deux extrémités de la colonne, la saturation y est également imposée.

4.4 Etude de sensibilité

Une étude de sensibilité de différents paramètres du modèle est réalisée afin de mettre en évidence leur influence sur les résultats des modélisations. Les paramètres les plus

sensibles devront être déterminés expérimentalement de façon précise car ils détermineront le niveau de fiabilité des prédictions du modèle.

4.4.1 Etat de saturation

Dans la modélisation de référence, nous avons supposé qu'initialement, les pressions d'eau dans le béton étaient en équilibre avec une atmosphère à 80% d'humidité relative. Or, le béton est un matériau qui réagit extrêmement lentement aux variations hydriques (Groupement belge du béton, 2006) et son état de saturation exact n'est pas connu. Compte tenu de la courbe de rétention du béton, les 80% d'humidité relative correspondent à une faible saturation, de l'ordre de 23%. Cette hypothèse est testée et deux nouveaux calculs sont réalisés. Pour ces nouvelles modélisations, les saturations initiales dans le béton sont de 70 et 95%, ce qui correspond à des pressions d'eau respectivement de -2,79 MPa et -0,5 MPa. Les pressions d'eau imposées aux deux extrémités du modèle sont également modifiées.

Les figures 4.4(a) et 4.4(b) présentent l'évolution des profils de pressions de gaz dans le béton. L'influence de l'état de saturation du béton sur la distribution des pressions de gaz est marquante. Une augmentation de la saturation du milieu poreux entraîne une diminution de sa perméabilité au gaz. Ainsi, on remarque que la variation des pressions de gaz au sein est d'autant plus lente que la saturation en eau est élevée. Cependant, à long terme, les profils de pressions ne sont plus dictés que par les conditions aux limites du modèle et tendent à devenir identiques, quel que soit l'état de saturation du matériau.

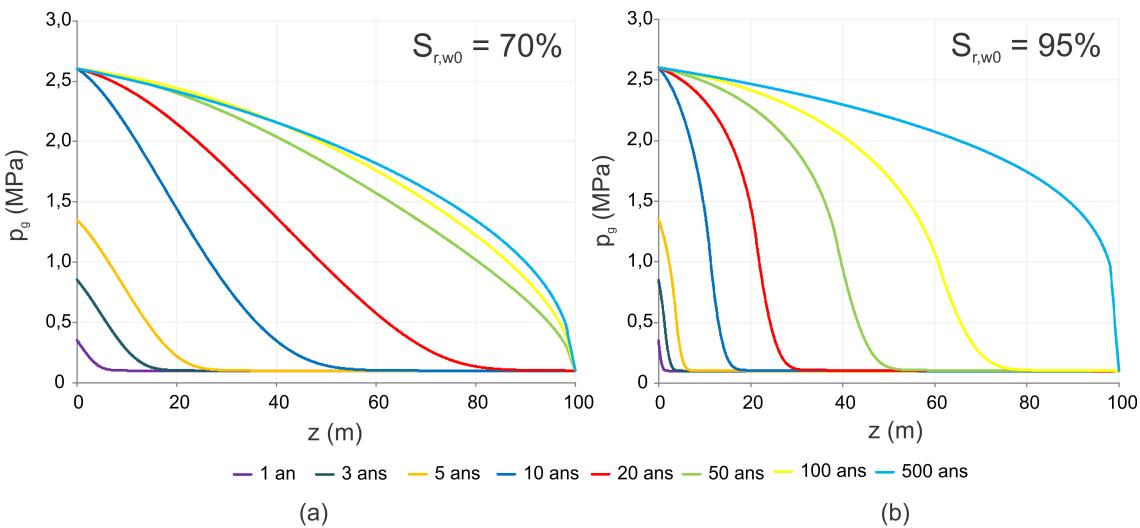


FIGURE 4.4 – Profils des pressions de gaz : (a) $S_{r,w0} = 70\%$ et (b) $S_{r,w0} = 95\%$

La figure 4.5 présente une comparaison des masses de CO₂ rejetées vers la biosphère via une colonne circulaire d'un mètre de rayon. Encore une fois, l'influence de la saturation, via la variation de perméabilité qu'elle entraîne, est très claire. Ainsi, par rapport au cas

de référence, la masse de CO₂ rejetée est près de 12 fois plus faible lorsque la saturation est de 70% et 30 fois plus petite lorsque celle-ci est de 95%.

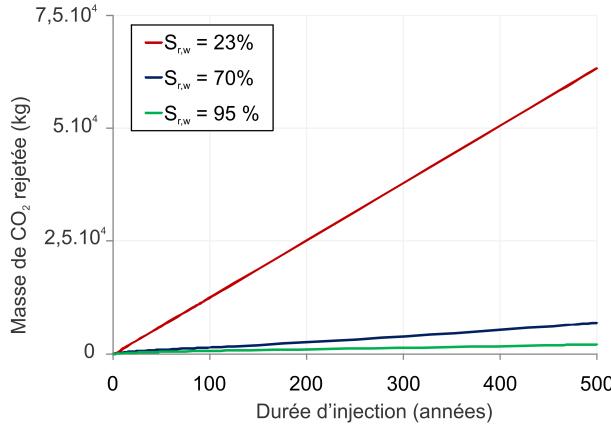


FIGURE 4.5 – Comparaison des masses de CO₂ rejetés vers la biosphère : $S_{r,w} = 23\%$, $S_{r,w} = 70\%$ et $S_{r,w} = 95\%$

Enfin, l'état de saturation du milieu poreux peut modifier dans une plus ou moins grande mesure la cinétique de transfert du CO₂. Ainsi, la figure 4.6 présente les flux totaux de CO₂ sec et dissous lorsque la saturation du béton est de 95%. Elle met également en parallèle l'état de saturation du matériau. Lors de l'analyse des résultats du cas de référence, nous avons vu que le principal mode de transport du CO₂ dans un milieu poreux faiblement saturé était l'advection de la phase gazeuse. La figure 4.6 montre qu'au maximum de saturation (résultant de la mise en pression de la phase liquide), la composante du flux de CO₂ dissous devient prépondérante sur celle du CO₂ gazeux. Une partie du CO₂ gazeux se dissout et est alors transportée, essentiellement par advection, via la phase liquide. La quantité de CO₂ dissous est toutefois limitée par la loi de Henry.

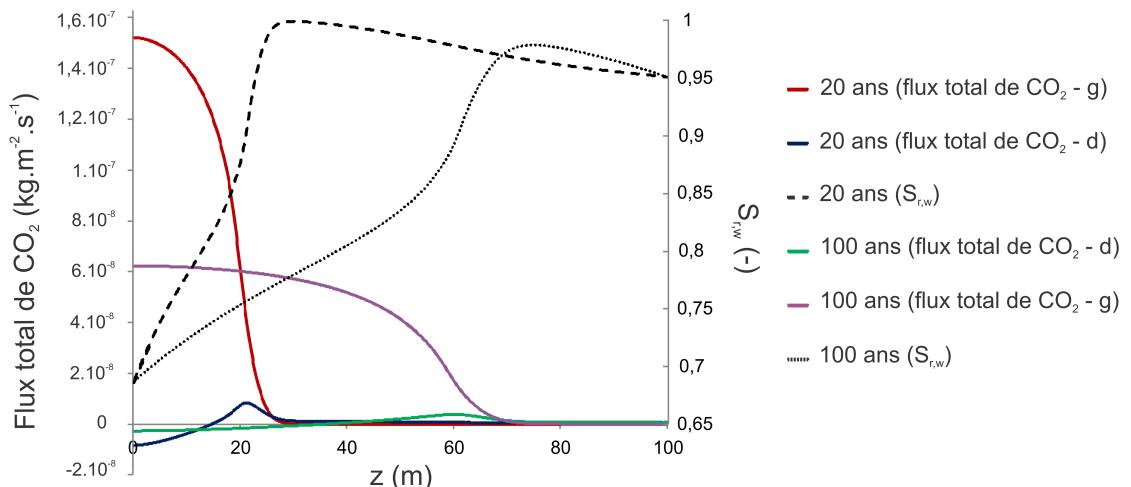


FIGURE 4.6 – Profils des flux totaux de CO₂ sec et dissous ($S_{r,w} = 95\%$). Comparaison avec le degré de saturation

4.4.2 Perméabilité intrinsèque

L'influence de la perméabilité intrinsèque du béton est étudiée. Dans le calcul de base, nous avons utilisé une perméabilité intrinsèque égale à 10^{-16} m^2 , utilisée dans les modélisations liées au stockage des déchets radioactifs (Gerard *et al.*, 2008). La figure 4.7 montre cependant que, dans le cas des béton hautes performances, il est possible d'atteindre des perméabilités allant jusqu'à 2.10^{-17} m^2 . Nous nous proposons donc d'effectuer une nouvelle simulation avec cette dernière valeur de perméabilité intrinsèque.

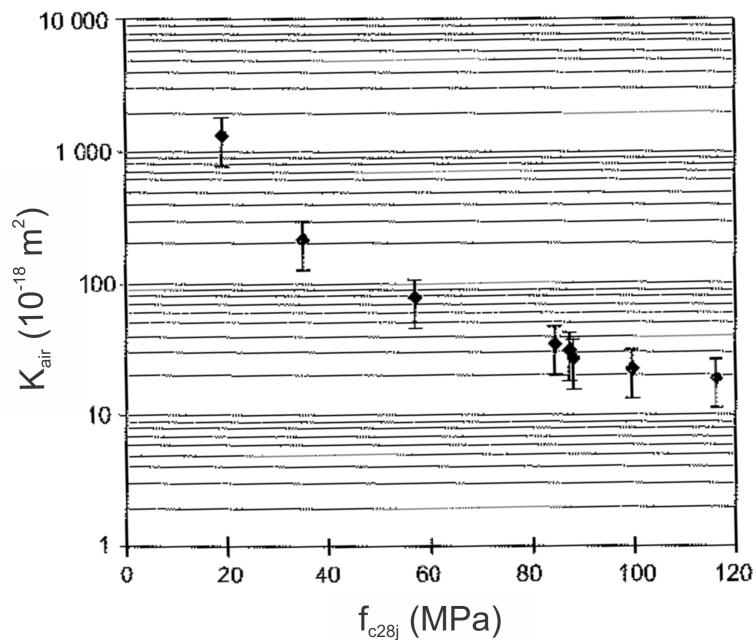


FIGURE 4.7 – Variation de la perméabilité du béton avec la résistance à 28 jours (Ollivier & Vichot, 2008)

La figure 4.8 présente l'évolution des profils de pressions de gaz obtenus. On remarque qu'à court terme, la perméabilité intrinsèque influence fortement l'évolution des pressions de gaz dans le béton. Une diminution de la perméabilité, signe d'une plus grande résistance du milieu à l'écoulement des fluides, a un effet retardateur sur l'augmentation des pressions dans le béton. A plus long terme, les profils de pressions de gaz ne sont cependant plus contrôlés que par les conditions limites du modèle et sont identiques, quelle que soit la perméabilité du milieu.

Selon la loi de Darcy (équation 3.15), la vitesse d'advection de la phase gazeuse est proportionnelle à la perméabilité intrinsèque du milieu. L'advection constituant le principal mécanisme de transfert du CO₂ dans les milieux faiblement saturés, on vérifie que le flux massique de CO₂ est également proportionnel à la perméabilité (figure 4.9).

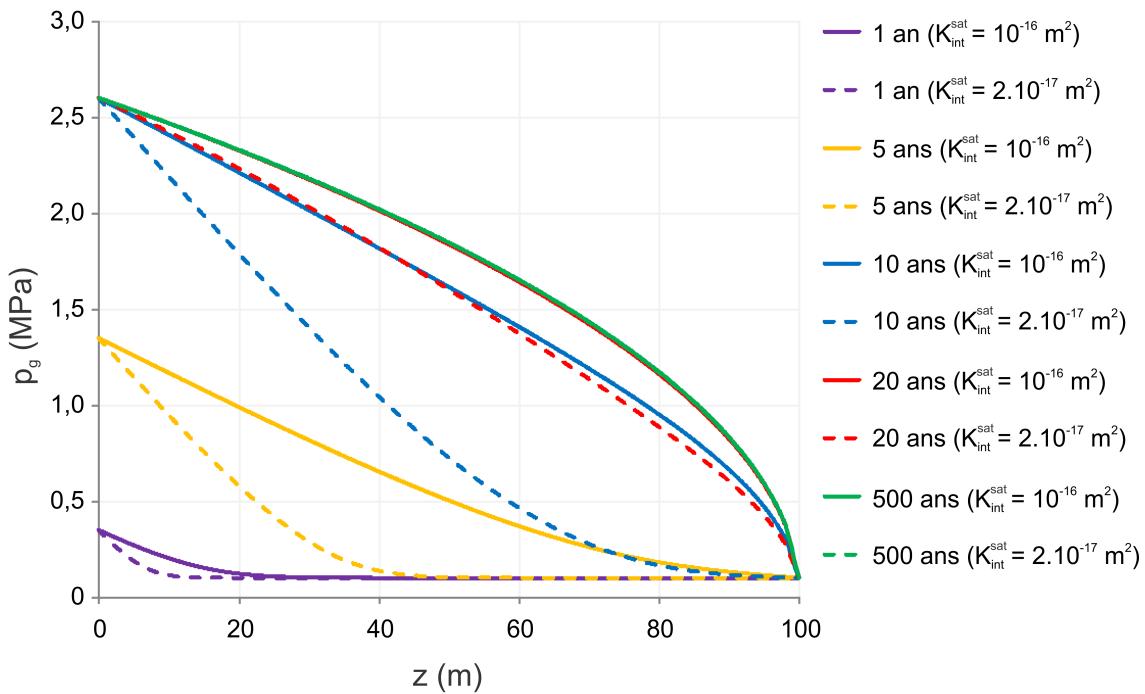


FIGURE 4.8 – Comparaison des profils de pressions de gaz : $K_{int}^{sat} = 10^{-16} \text{ m}^2$ et $K_{int}^{sat} = 2.10^{-17} \text{ m}^2$

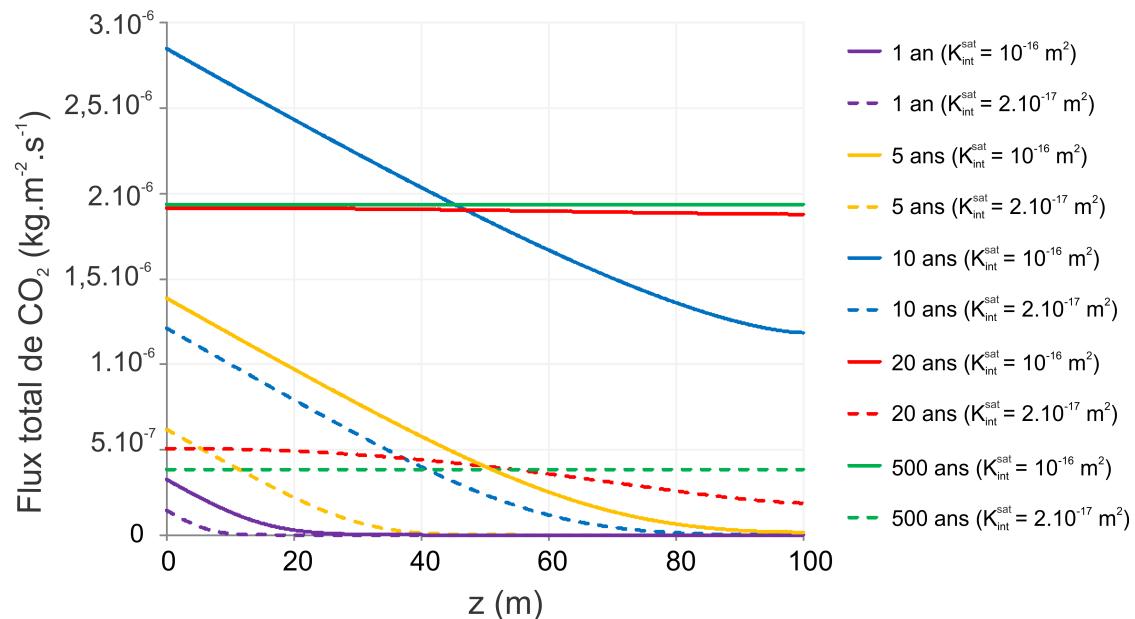


FIGURE 4.9 – Comparaison des profils de flux total de CO₂ : $K_{int}^{sat} = 10^{-16} \text{ m}^2$ et $K_{int}^{sat} = 2.10^{-17} \text{ m}^2$

4.4.3 Courbe de perméabilité relative au gaz

Le choix de la courbe de perméabilité relative au gaz est évalué. Dans la modélisation de référence, une loi de perméabilité au gaz cubique avait été utilisée. Un nouveau calcul est maintenant réalisé avec une courbe de perméabilité relative au gaz de Mualem (équation 3.23). Les deux courbes sont comparées à la figure 4.10. On constate que la loi cubique donne systématiquement une valeur de perméabilité au gaz plus faible que le modèle de Mualem. Cette différence est cependant beaucoup plus marquée dans le domaine quasi-saturé où la différence atteint plusieurs ordres de grandeur.

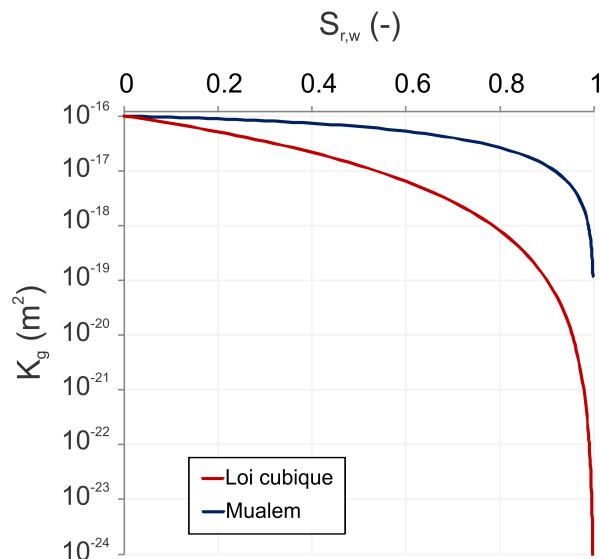


FIGURE 4.10 – Comparaison des courbes de perméabilité au gaz du béton : lois cubique et de Mualem ($K_{int}^{sat} = 10^{-16} m^2$)

La figure 4.11 présente les profils de pressions de gaz obtenus avec les courbes de perméabilité relative au gaz cubique et de Mualem. Pour une saturation en eau de 23%, la perméabilité au gaz obtenue par le modèle de Mualem est près de deux fois plus grande que celle donnée par la loi cubique. L'influence de la perméabilité a déjà été discutée dans les sections précédentes.

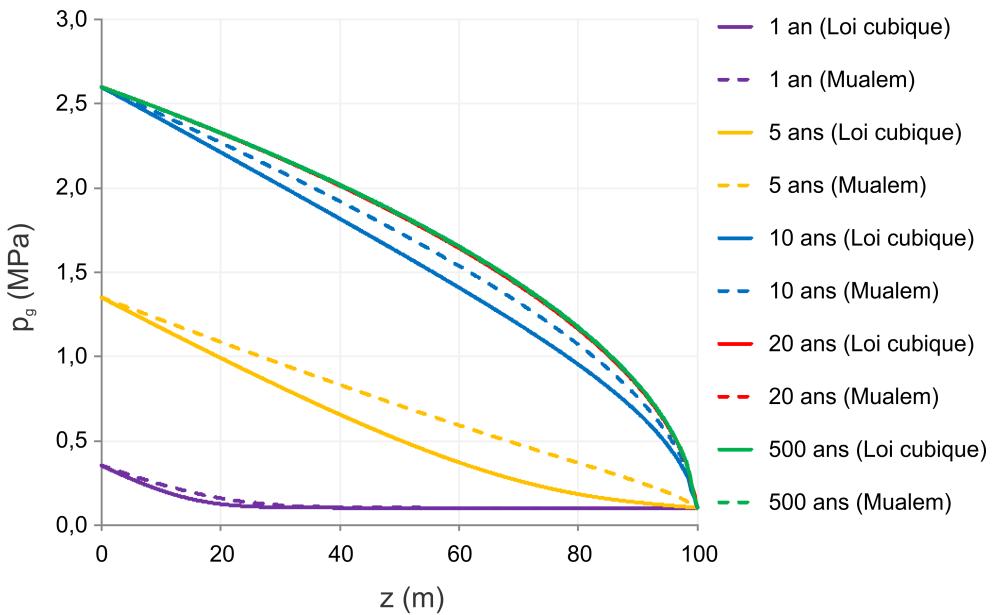


FIGURE 4.11 – Comparaison des profils de pressions de gaz : lois cubique et de Mualem

4.4.4 Pression d'entrée d'air

L'influence de la pression d'entrée d'air, intervenant dans la courbe de rétention, est étudiée. Dans la simulation de base, une pression d'entrée d'air de 2 MPa avait été utilisée. La courbe de rétention de la figure 4.12 montre que des plus grandes valeurs de pression d'entrée d'air sont réalisables dans les bétons. Un nouveau calcul est donc effectué avec une pression d'entrée d'air de 10 MPa.

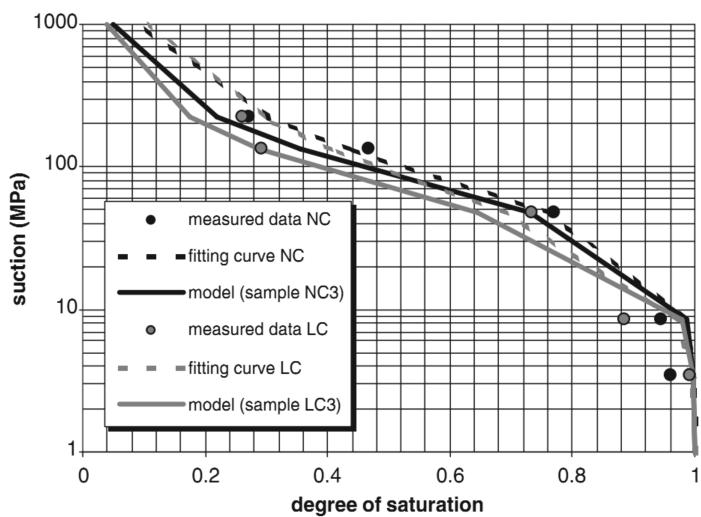


FIGURE 4.12 – Courbes de rétenton d'un béton normal (Navarro *et al.*, 2005)

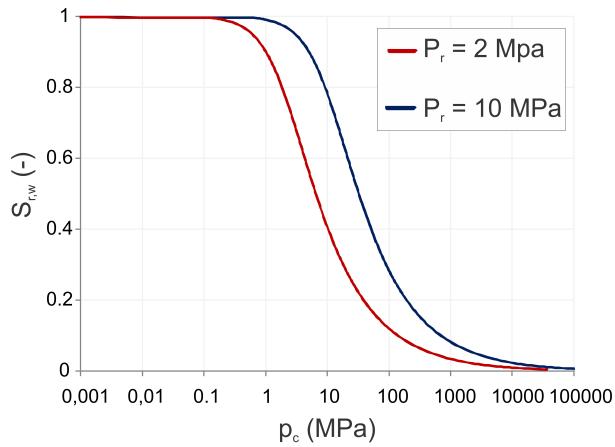


FIGURE 4.13 – Comparaison des courbes de rétention du béton : $P_r = 2 \text{ MPa}$ et $P_r = 10 \text{ MPa}$

Les courbes de rétention utilisées dans la nouvelle modélisation et celle de référence sont représentées à la figure 4.13. Initialement, la pression capillaire dans le béton est de 30,1 MPa. Pour rappel, dans le calcul de référence, il y était associé une saturation en eau de 23%. Celle-ci passe à 52% lorsqu'une pression d'entrée d'air de 10 MPa est considérée. Augmenter la pression d'entrée d'air a donc pour effet d'augmenter la saturation en eau et donc, de diminuer la perméabilité au gaz du matériau. La figure 4.14 montre l'évolution des profils de pression de gaz dans le béton. L'influence de la saturation sur les prédictions du modèle a déjà été largement évoquée précédemment.

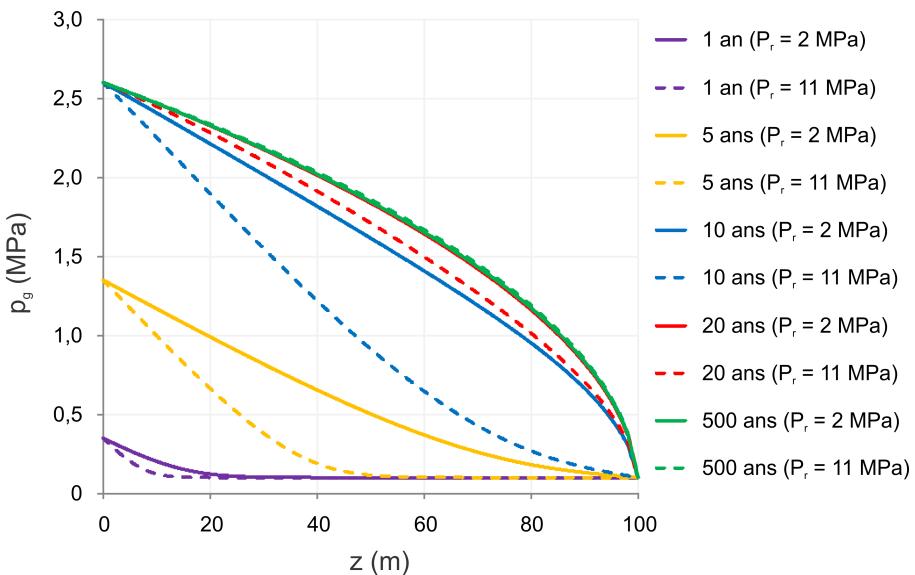


FIGURE 4.14 – Comparaison des profils de pressions de gaz : $P_r = 2 \text{ MPa}$ et $P_r = 11 \text{ MPa}$

4.4.5 Présence d'un bouchon de bentonite

La bentonite est une argile gonflante très peu perméable et aux propriétés de rétention intéressantes. Elle est classiquement envisagée comme barrière d'étanchéité pour l'enfouissement de déchets radioactifs et pourrait être utilisée pour le scellement des puits dans le cadre d'éventuels sites de stockage de CO₂ dans d'anciennes mines de charbon. Dans cette section, l'influence de la présence d'un bouchon de bentonite dans la colonne de béton est analysée. L'épaisseur du bouchon, placé à 5 mètres de la base de la colonne, est de 1 mètre. Les propriétés hydrauliques de la bentonite sont présentées au tableau 4.2. Une courbe de rétention de van Genuchten (équation 3.4) est utilisée. Les perméabilités relatives à l'eau et au gaz sont quant à elles modélisées respectivement à l'aide du modèle de van Genuchten (équation 3.20) et d'une loi cubique (équation 3.22).

K_{int}^{sat}	Perméabilité intrinsèque (m^2)	$8 \cdot 10^{-21}$
ϕ	Porosité (-)	0.366
τ	Tortuosité (-)	0.0494
P_r	Paramètre de van Genuchten (MPa)	16
n	Paramètre de van Genuchten (-)	1.61
m	Paramètre de van Genuchten (-)	0.3789
S_{res}	Saturation résiduelle en eau (-)	1
S_{max}	Saturation maximum en eau (-)	0

TABLE 4.2 – Paramètres hydrauliques de la bentonite (Gerard *et al.*, 2008)

Les profils de pressions de gaz dans le béton et la bentonite sont présentés à la figure 4.15. On constate une influence très forte de la bentonite qui, par sa très faible perméabilité au gaz (elle-même due à une faible perméabilité intrinsèque et à la courbe de rétention), limite fortement les flux de gaz (figure 4.18). Ainsi, un bouchon de bentonite d'un mètre d'épaisseur permet de réduire de près de 150 fois les flux de gaz rejetés vers la biosphère ! En outre, l'augmentation des pressions de gaz au contact entre le béton et la bentonite entraîne une augmentation des pressions d'eau dans la bentonite (figure 4.16) ce qui accroît d'autant plus la saturation du matériau argileux et diminue sa perméabilité au gaz.

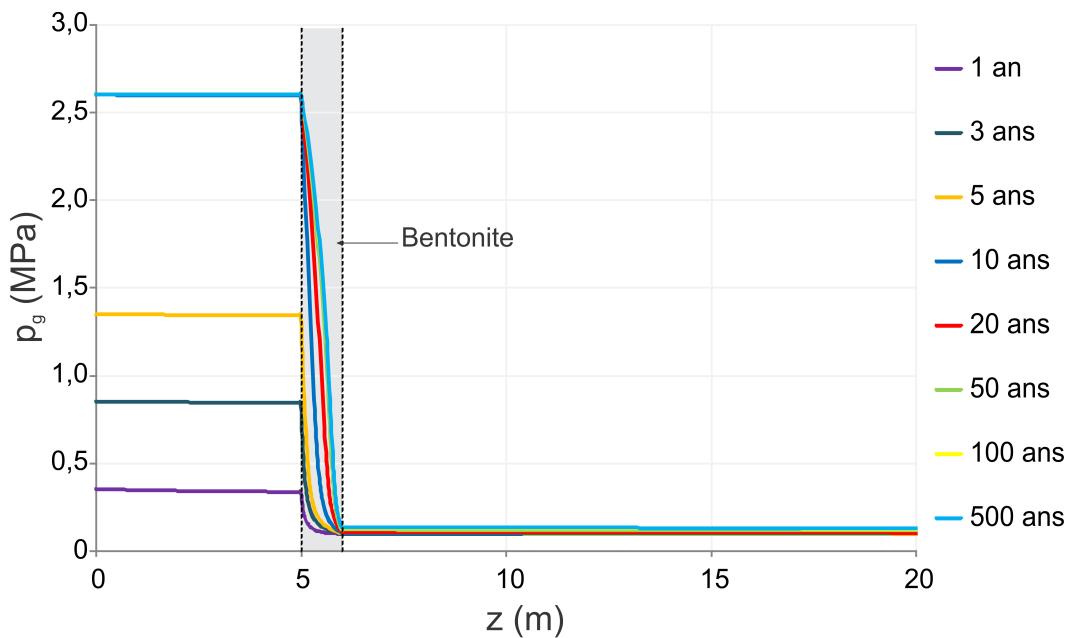


FIGURE 4.15 – Profils des pressions de gaz dans le béton et la bentonite

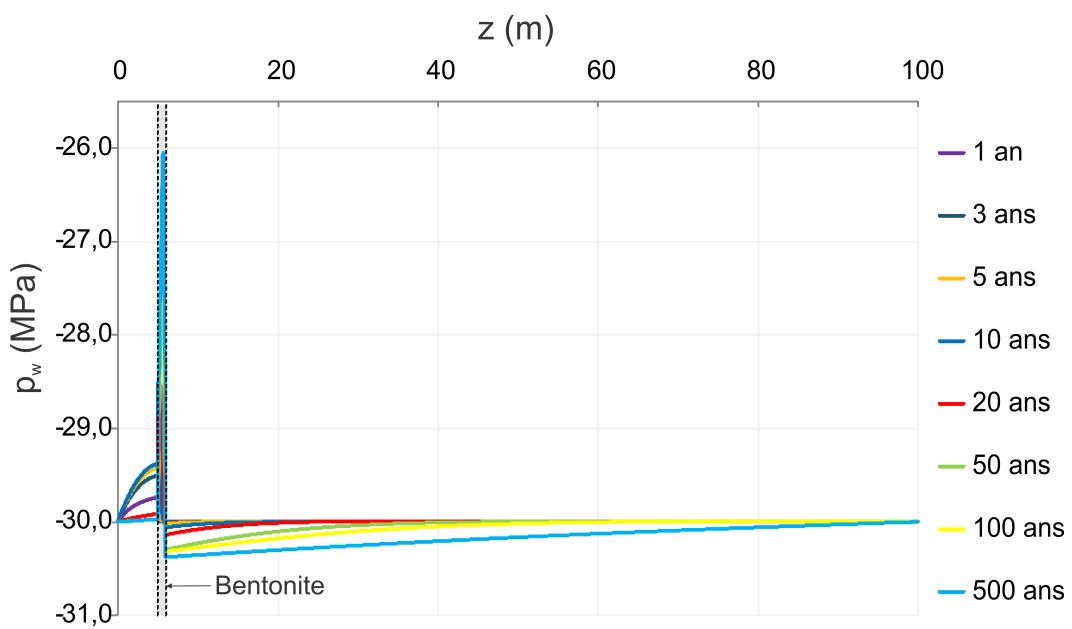


FIGURE 4.16 – Profils des pressions d'eau dans le béton et la bentonite

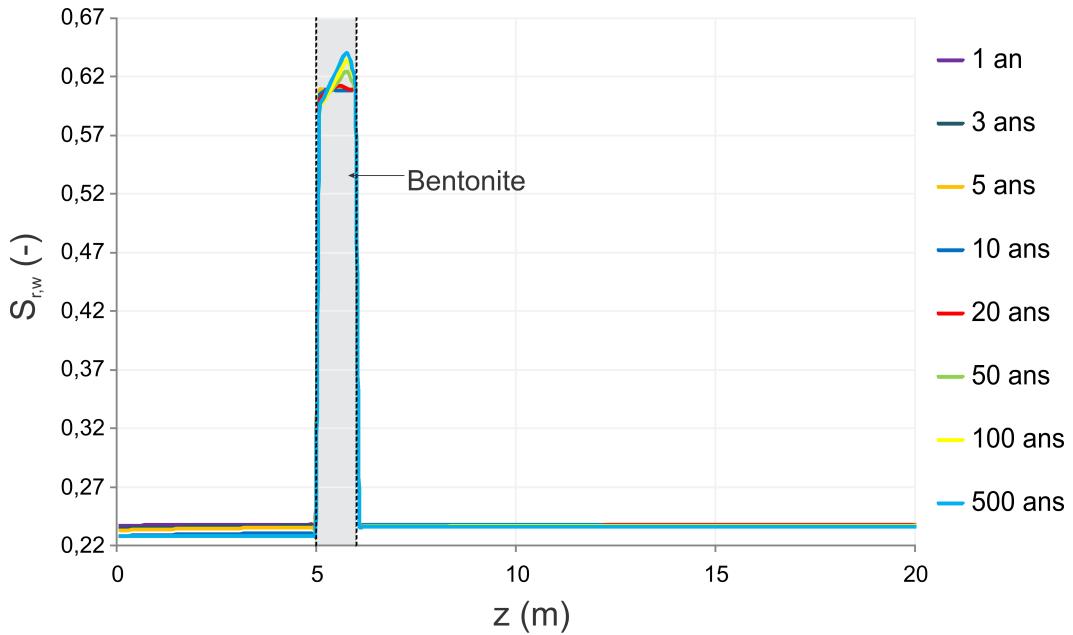


FIGURE 4.17 – Profils des saturations en eau dans le béton et la bentonite

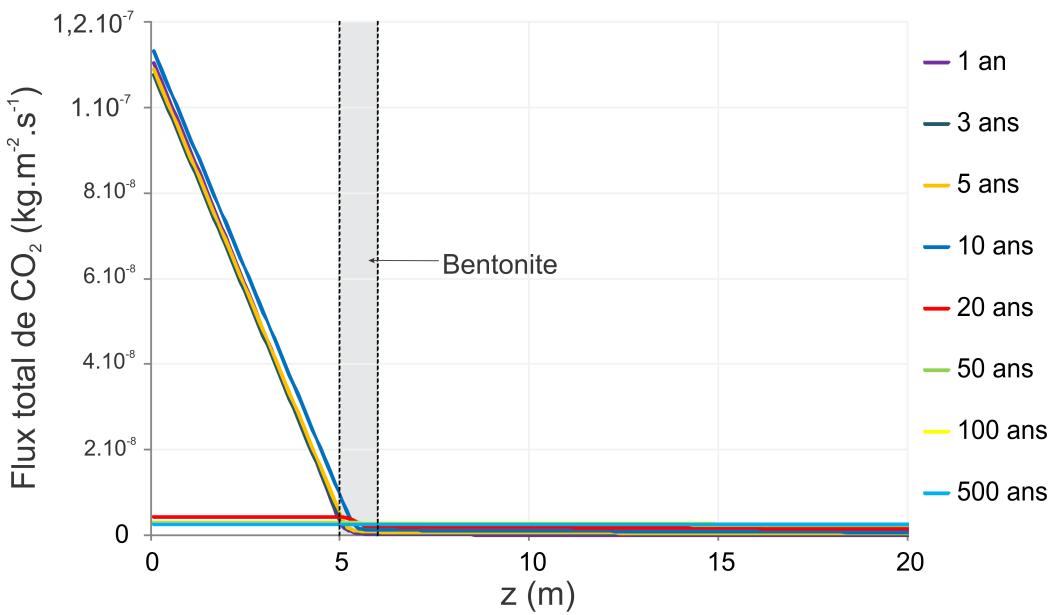


FIGURE 4.18 – Profils des flux totaux de CO₂ dans le béton et la bentonite

4.4.6 Gravité

L'influence de la gravité est étudiée dans un nouveau calcul. La répartition des pressions d'eau initiales n'est plus uniforme mais un gradient hydrostatique est imposé. Notons que, dans le domaine non saturé, la répartition précise des pressions d'eau est inconnue et l'hypothèse ici posée est donc discutable. La pression d'eau de -30 MPa, imposée de manière uniforme lors calcul de base, est maintenant imposée au sommet de la colonne, ce qui modifie légèrement l'état de saturation initial dans le béton.

Les nouveaux profils de pressions de gaz (figure 4.19(a)) et flux totaux de gaz sont pratiquement identiques à ceux obtenus lors du calcul de base ne prenant pas en compte la gravité. Bien que les profils de pressions d'eau (figure 4.19(b)) et de saturation soient eux modifiés par l'effet de la gravité et des nouvelles pressions d'eau imposées à la base de la colonne de béton, aucune modification significative des surpressions observées dans le cas de base n'est à noter. La faible influence de la gravité sur les résultats obtenus est cependant à relativiser avec les importantes succions imposées dans le béton. En effet, la variation relative des pressions d'eau d'une extrémité à l'autre de la colonne de béton est faible. Dans le domaine saturé ou quasi saturé, l'influence de la gravité pourrait être plus importante.

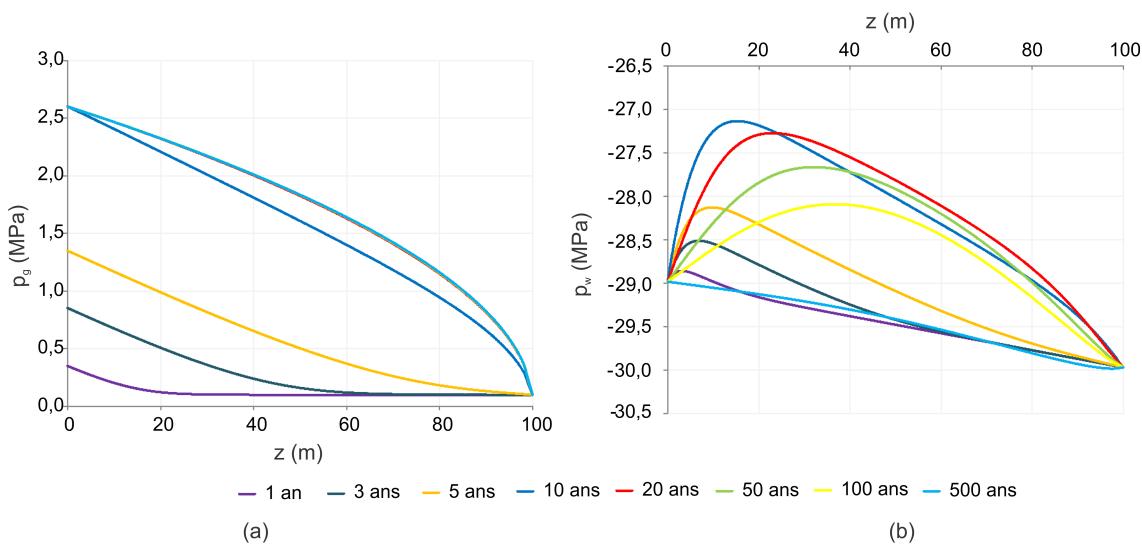


FIGURE 4.19 – Profils des pressions (a) de gaz et (b) d'eau dans le béton

4.5 Conclusions

L'objectif de ce chapitre était de mettre en avant l'influence des différents paramètres hydrauliques intervenant dans le modèle d'écoulement développé au chapitre 3. Pour ce faire, la réponse du modèle a été étudiée au travers d'un cas synthétique simple simulant l'injection de CO₂ à pression imposée dans une colonne en béton. Les conclusions suivantes peuvent être tirées :

- Dans les milieux non-saturés, l'advection de la phase gazeuse représente le mode de transfert prédominant du CO₂. La cinétique de migration du gaz est donc fortement contrôlée par la perméabilité.
- Une modification de la perméabilité intrinsèque du milieu influence directement les flux d'advection des phases liquide et gazeuse à travers les lois de Darcy généralisées (équations 3.13 et 3.15).
- La courbe de perméabilité relative au gaz influence uniquement les transferts par advection de la phase gazeuse.
- Augmenter la pression d'entrée d'air ou, de manière plus générale la saturation en eau, a pour effet une diminution de la perméabilité au gaz du milieu. Cette diminution de la perméabilité est contrôlée par la courbe de perméabilité relative au gaz.
- La bentonite est une argile très peu perméable et possède une courbe de rétention intéressante avec, notamment, une importante pression d'entrée d'air. La mise en place d'un bouchon de bentonite permet de limiter considérablement les flux de CO₂ vers la biosphère.
- Dans le domaine des fortes pressions capillaires, l'influence de la gravité sur la distribution des pressions de gaz et les modes de transferts du CO₂ est négligeable.

Fort de cette première expérience de modélisation des transferts de gaz dans les milieux poreux partiellement saturés, nous sommes maintenant à même d'aborder une modélisation plus réaliste (mais aussi plus complexe !) des transferts de CO₂ autour du système de scellement d'un puits. Tel est l'objectif du chapitre 5.

Chapitre 5

Application : l'ancienne mine de charbon d'Anderlues

5.1 Introduction

Dans ce chapitre, le problème de l'étanchéité des puits est étudié à travers un cas pratique, celui du puits n°6 de l'ancienne mine de charbon d'Anderlues. La mine d'Anderlues appartient à l'ancienne concession minière du Bois de la Haye. D'une superficie de 20,89 km², celle-ci est située dans la partie Est de la province du Hainaut, sur le territoire des actuelles communes d'Anderlues, Binche, Lobbes, Chapelle-lez-Herlaimont et Morlanwez (figure 5.1).

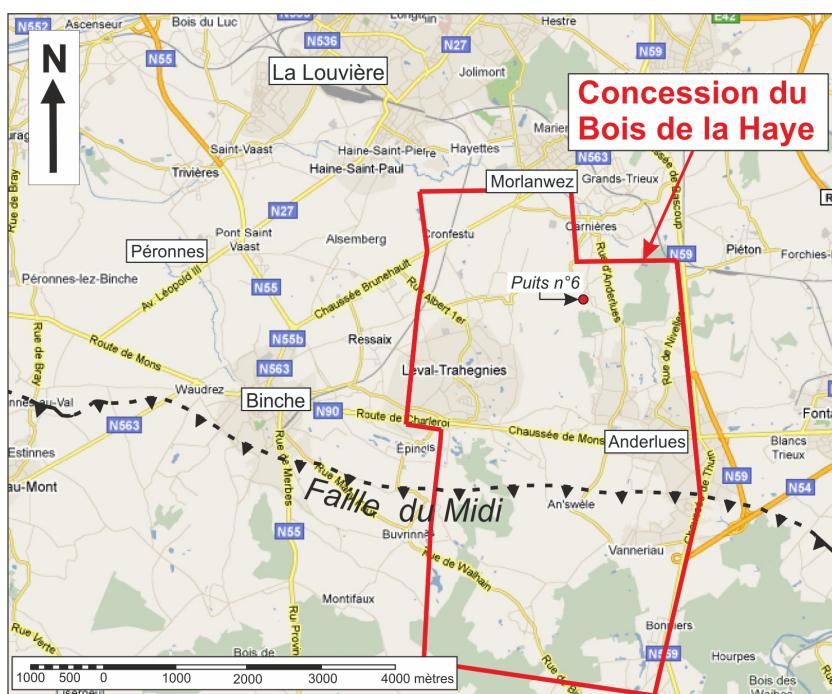


FIGURE 5.1 – Localisation de l'ancienne concession minière du Bois de la Haye

Après l'exploitation minière du gisement et la récupération du grisou, la mine d'Anderlues fut utilisée entre 1978 et 2000 pour le stockage saisonnier de gaz naturel. Dans les années 2000, alors que l'urgence de lutter contre les changements climatiques se fait de plus en plus sentir, le stockage géologique de CO₂ suscite un engouement grandissant. En Belgique, plusieurs études sont réalisées afin d'évaluer les potentialités de stockage du dioxyde de carbone. La possibilité de stocker le CO₂ dans les gisements houillers du Hainaut est alors envisagée (Piessens & Dusar, 2004 ; Piessens *et al.*, 2008), bien qu'un des enjeux majeurs de ce type de stockage soit l'étanchéité des puits de mine abandonnés.

La première partie de ce chapitre est dédiée à la description des contextes géologique et hydrogéologique du site d'Anderlues, ainsi qu'à la présentation de l'histoire de l'exploitation de la mine.

Sur base de ces informations, une modélisation hydro-mécanique 2D axisymétrique du creusement d'un puits, de la mise en place d'un système de scellement et de l'injection de CO₂ est réalisée afin d'étudier l'étanchéité du système. Le modèle hydro-mécanique en saturation partielle développé au chapitre 3 est utilisé pour simuler les transferts de CO₂ autour du système de scellement. La partie centrale du présent chapitre est ainsi consacrée à la présentation et l'analyse des résultats de nos modélisations.

Tout au long de ce travail, une attention particulière est accordée à l'utilisation de données réalistes, compatibles avec les contextes géologique et hydrogéologique du site d'Anderlues. Toutefois, la plupart des données utilisées dans la modélisation sont entachées de fortes incertitudes, essentiellement liées au manque de données disponibles concernant les propriétés hydromécaniques des matériaux. Dans la dernière partie du chapitre, une étude de sensibilité de différents paramètres est donc réalisée afin de mettre en évidence les données capitales pour la fiabilité des prédictions numériques. Ces données essentielles sont celles qu'il importera de déterminer expérimentalement avec le plus de soin possible.

5.2 Contextes géologique et hydrogéologique

5.2.1 Géologie régionale

La description du contexte géologique régional qui suit est essentiellement basée sur les notes du cours d'Introduction à la géologie de la Wallonie du Professeur Boulvain (Boulvain, 2011b).

L'ancienne concession minière du Bois de la Haye est située à l'extrême Est du Bassin houiller de Mons, également appelé Borinage. Ces roches se sont déposées au cours du Westphalien sur un ensemble du Dinantien et du Dévonien moyen¹. Au Westphalien, la région de Mons subit un important régime tectonique compressif (phase sudète de l'orogenèse varisque). La déformation se concentre au niveau d'une faille de charriage située à quelques kilomètres au Sud d'Anderlues : la Faille du Midi. De nombreuses autres failles

1. L'échelle stratigraphique de la Belgique est rappelée à la page 51.

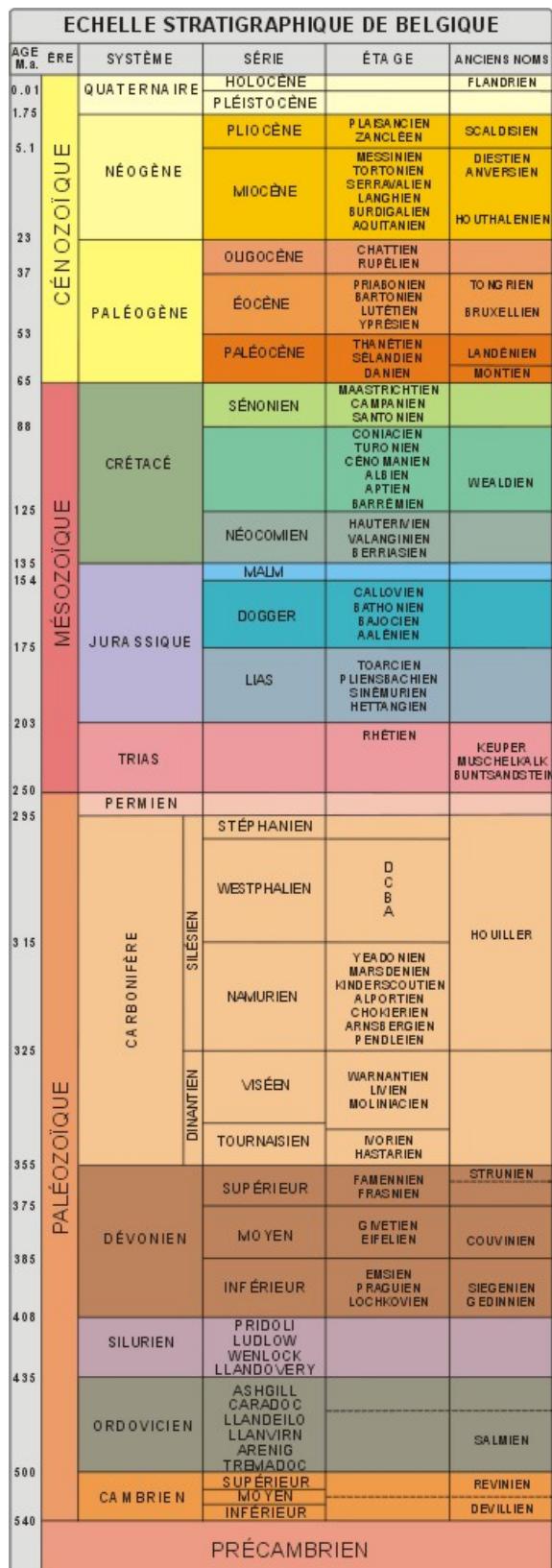


FIGURE 5.2 – Echelle stratigraphique de la Belgique (Boulvain, 2011b)

satellites permettent d'accommoder la déformation et rendent la tectonique régionale assez complexe. Notons que la description d'une grande partie des failles est cependant bien connue de par l'exploitation minière.

Dans le Borinage, le Westphalien est caractérisé par une cyclicité typique aux dépôts paralliques². On retrouve ainsi une alternance de sédiments fins (schistes argileux, souvent appelés « schistes » par abus de langage) déposés en période de subsidence et des débris de végétaux, déposés en phase de stabilité et progressivement transformés en charbon en l'absence d'oxygène.

A partir du Permien, la Wallonie est presque constamment émergée. Le Mésozoïque est marqué par une transgression marine originaire du Bassin de Paris. Celle-ci atteint la région de Mons au Crétacé. Le Bassin de Mons est caractérisé par une forte subsidence, ce qui explique la forme de « lingotière » de la discordance entre le socle paléozoïque et la couverture mésozoïque dans cette région.

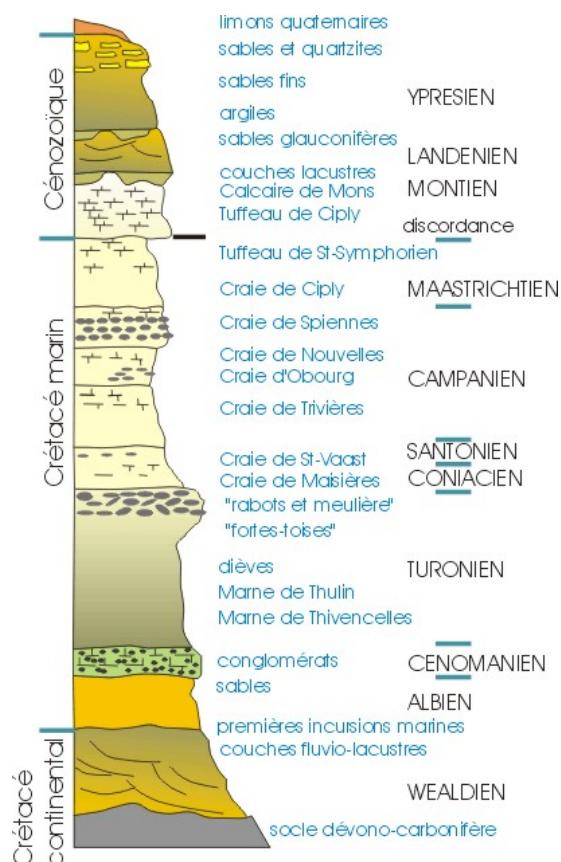


FIGURE 5.3 – Colonne stratigraphique du Crétacé et du Tertiaire du Bassin de Mons (Boulvain, 2011b)

2. Un bassin « paralique » est un bassin situé dans un contexte littoral de type deltaïque ou palustre (de marais), par opposition aux bassins continentaux marécageux dits « limniques ».

Le Crétacé inférieur est caractérisé par des faciès continentaux lacustres et alluviaux : graviers, sables, grès ferrugineux, lignites et argiles (figure 5.3). La transgression marine atteint véritablement le Bassin de Mons à l'Albien supérieur et au Cénomanien. A ce moment, elle dépose des graviers, sables, marnes et grès siliceux appelés « meules ». La transgression continue au Turonien ; les faciès ont un caractère de plus en plus marin. On retrouve des marnes plus ou moins crayeuses ou argileuses. A partir du Coniacien, le régime devient franchement marin et la sédimentation est crayeuse. Le Maastrichtien signe le début de la régression et on observe alors des lacunes sédimentaires de durées de plus en plus grandes.

Finalement, les dépôts tertiaires reposent en discordance sur le Crétacé (figure 5.3). Ils sont constitués à leur base d'une séquence crayeuse surmontée de faciès terrigènes, principalement des sables et argiles.

5.2.2 Géologie locale

La figure 5.4 présente la localisation de l'ancienne concession minière du Bois de la Haye sur fond de la carte géologique n°152 Binche - Morlanwez³.

Le Houiller n'affleure à aucun endroit au niveau de l'ancienne concession du Bois de la Haye. Il est en effet recouvert par les terrains du Secondaire et du Tertiaire sur une épaisseur comprise entre 10 et 85 m (Vandeloise, 1969). Ces terrains n'ont subi aucune phase de plissement et présentent donc une allure monoclinale. Ils correspondent à l'ensemble de la colonne stratigraphique de la figure 5.3 présentée plus haut.

Les sables bruxelliens (B) couvrent l'essentiel de la carte. Au centre de la concession du Bois de la Haye, lorsque l'on descend vers les vallées, on rencontre successivement les sables et les argiles de l'Yprésien (Yd et Yc), les sables glauconifères du Landenien (L1), les sables et argiles heersiennes (Hs) et les craies de St-Vaast (Cp1).

La Faille du Midi divise la concession du Bois de la Haye en deux parties. Au Sud, la faille a ramené des terrains gréso-schisteux du Dévonien sur le Houiller. Au Nord de la Faille du Midi, les terrains du Westphalien se trouvent directement sous ceux du Mésozoïque. L'épaisseur des terrains houillers dépasse les 2000 mètres. Ils sont composés à 60% en masse de schistes argileux, d'environ 37% de grès et psammites et de 3% de charbon (Ghiste, 1990).

3. A ce jour, la nouvelle carte géologique 46/5-6 Binche - Morlanwez n'a pas encore été publiée.

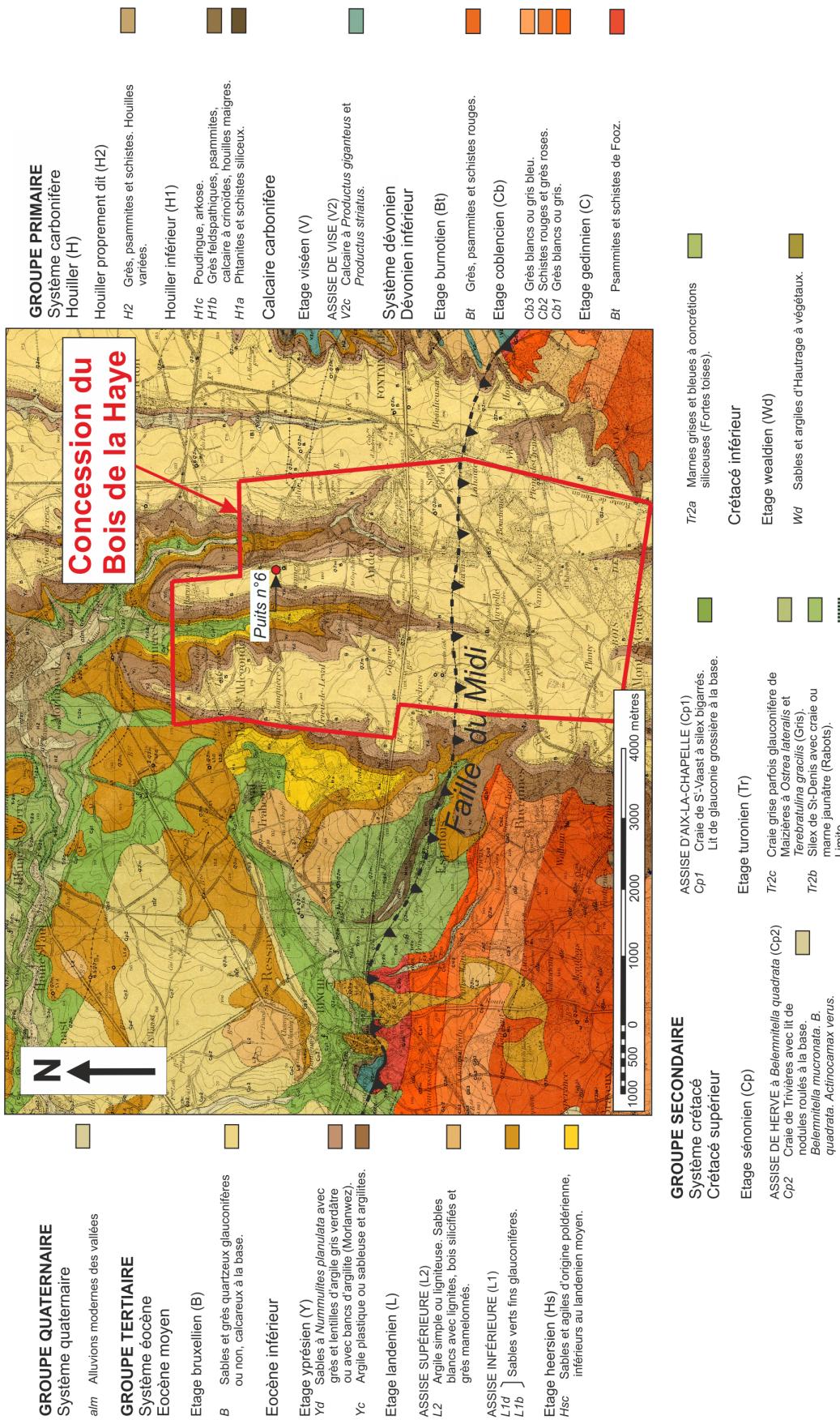


FIGURE 5.4 – Localisation de l'ancienne concession minière du Bois de la Haye sur fond de la carte géologique n°152 Binche – Morlanwez (modifié d'après Briart, 1899)

5.2.3 Hydrogéologie

Les craies du Bassin de Mons constituent le principal aquifère de la région de Binche - Morlanwez. Sous ces terrains, les sédiments de natures argileuses de l'Albien et du Turonien forment un niveau aquiclude qui sépare les formations du Paléozoïque de celles du Mésozoïque et du Cénozoïque. L'épaisseur de cet aquiclude varierait entre 25 et 60 mètres (Roland & Bastien, 2010).

Les terrains houillers de la région d'Anderlues sont riches en schistes argileux. Ceux-ci sont formés de silicates d'alumine Al_2SiO_5 , moins riches en eau que l'argile. En contact avec l'eau, les schistes se réhydratent, gonflent et se transforment en argile. Celle-ci obture alors l'espace poreux, ce qui entraîne une diminution de la conductivité hydraulique des terrains. Ainsi, sous les terrains tertiaires, on observe généralement une épaisse couche d'argile meuble stratifiée qui limite la pénétration de l'eau météorique dans les schistes. Dans la région d'Anderlues, les schistes houillers ne sont donc, en profondeur, généralement pas saturés en eau (Ghiste, 1990).

5.3 Exploitation de la mine d'Anderlues

C'est la Société Anonyme des Houillères d'Anderlues qui, entre 1857 et 1969, exploite le gisement houiller. L'exploitation commence à 120 mètres sous la surface du sol et les travaux les plus profonds atteignent -1100 m. La production totale cumulée de charbon s'élève à 25 millions de tonnes, soit seulement 3,5% du volume total de charbon compris dans le gisement. Les 96,5% restant (environ 690 Mt) sont difficilement exploitables car très dispersés (Vandeloise, 1969).

Dès octobre 1966, la S.A. des Houillères d'Anderlues évalue les possibilités de capter le grisou de la mine et réalise des essais de captage sur des anciens travaux abandonnés. Les dépôts houillers du Hainaut sont en effet connus pour retenir de grandes quantités de ce gaz puisque, pendant l'exploitation minière, des volumes très importants de grisou ont été désorbés du charbon. Le grisou résulte de la transformation des débris végétaux. Il est constitué de méthane (entre 90 et 95%), de dioxyde de carbone et, dans une moindre mesure, de monoxyde de carbone, d'hydrogène et d'hydrogène sulfuré. Il peut être directement valorisé en centrale électrique, dans les fours métallurgiques ou bien intégré dans le réseau de distribution du gaz naturel (Vandeloise, 1969).

Dans une étude de 1969 (Vandeloise, 1969), la S.A. des Houillères d'Anderlues estime les réserves de grisou entre 5 et 6 milliards de mètres cubes (à l'état standard⁴). Cette estimation se base sur une isotherme des quantités de gaz adsorbé par la houille (déterminées par des essais en laboratoire), ainsi que sur l'estimation des quantités de charbon résiduel dans le gisement. Le captage du grisou se poursuit jusqu'en 1978. A ce moment, plus de 70 millions de mètres cubes de méthane ont été récupérés.

4. L'état standard est utilisé comme référence. Il est défini à une pression $P_{st} = 1$ bar et une température $T_{st} = 15^\circ\text{C}$.

En 1978, Distrigaz (aujourd’hui devenu Fluxys) décide d’utiliser l’ancienne mine de charbon d’Anderlues comme réservoir pour le stockage saisonnier de gaz naturel. Le gaz y est stocké entre les niveaux -600 et -1100 à très basse pression (maximum 3,5 bars). En effet, une faille de chevauchement divise le gisement en deux au niveau -600 et agit comme une barrière hydrogéologique primaire (Piessens & Dusar, 2004). Pour rappel, une faille de chevauchement résulte d’un régime tectonique compressif. Dans des terrains schisteux, les épontes de la faille sont généralement peu fracturées et le remplissage est argileux. La faille peut alors être considérée comme une zone de très faible perméabilité.

Neuf piézomètres sont forés dans les morts-terrains pour vérifier l’efficacité et la sûreté du stockage de gaz. Les niveaux piézométriques ne montrent pas de changement dû à l’injection ou la production de gaz dans le réservoir. Aucune fuite n’est détectée (Piessens & Dusar, 2004).

Le volume des cavités minières est estimé entre 6 et 10 Mm³. Près de 180 st-Mm³ de méthane sont stockés dans la mine à une pression de 3,5 bars. Dans la section 2.3.3 du chapitre 2, nous avons montré qu’un important mécanisme de stockage du gaz dans les mines de charbon était le piégeage par adsorption sur le charbon résiduel. Ainsi, si l’on considère la mine comme un système fermé, les phénomènes d’adsorption expliquent que l’on puisse y stocker plus de gaz que ce que les cavités minières ne permettent. Soient :

- $V_{mine} = 6 \text{ Mm}^3$, le volume des vides miniers ;
- $P_{res} = 3.5 \text{ bars}$, la pression de gaz mesurée dans la mine ;
- $V_{sto} = 180 \text{ st-Mm}^3$, le volume de gaz stocké dans le réservoir ;

le volume de gaz adsorbé à la surface du charbon est égal à la différence du volumes de gaz stocké dans le réservoir (en phase gazeuse et par adsorption) et dans les cavités minières :

$$V_{ads} = V_{sto} - \frac{P_{res}}{P_{st}} \cdot V_{mine} = 159 \text{ st-Mm}^3$$

Aux conditions de pression et température du réservoir considérées, le volume de gaz piégé par adsorption est donc environ 8 fois plus grand que celui présent dans les vides et représente près de 90% du volume total de gaz stocké (Piessens & Dusar, 2004).

L’adsorption du gaz naturel à la surface du charbon explique également l’allure du graphique des pressions du réservoir de la figure 5.5. Le graphe en médaillon schématisé la relation entre la pression du réservoir et l’injection ou la production de gaz. La phase *a* correspond à l’injection du gaz naturel dans la mine, ce qui entraîne une forte augmentation de la pression dans le réservoir. Une fois l’injection terminée, la pression diminue progressivement au fur et à mesure que le méthane est adsorbé sur le charbon (phase *b*). Cette situation tend cependant à se stabiliser. La phase *c* coïncide avec l’extraction du gaz : une diminution importante de la pression est observée. Suite à cette diminution de pression, le gaz est peu à peu désorbé du charbon. Cela explique qu’une fois la production de gaz stoppée et alors que le réservoir n’est pas à nouveau rempli, la pression augmente

doucement et tend vers un équilibre. C'est la phase *d* (Piessens & Dusar, 2004).

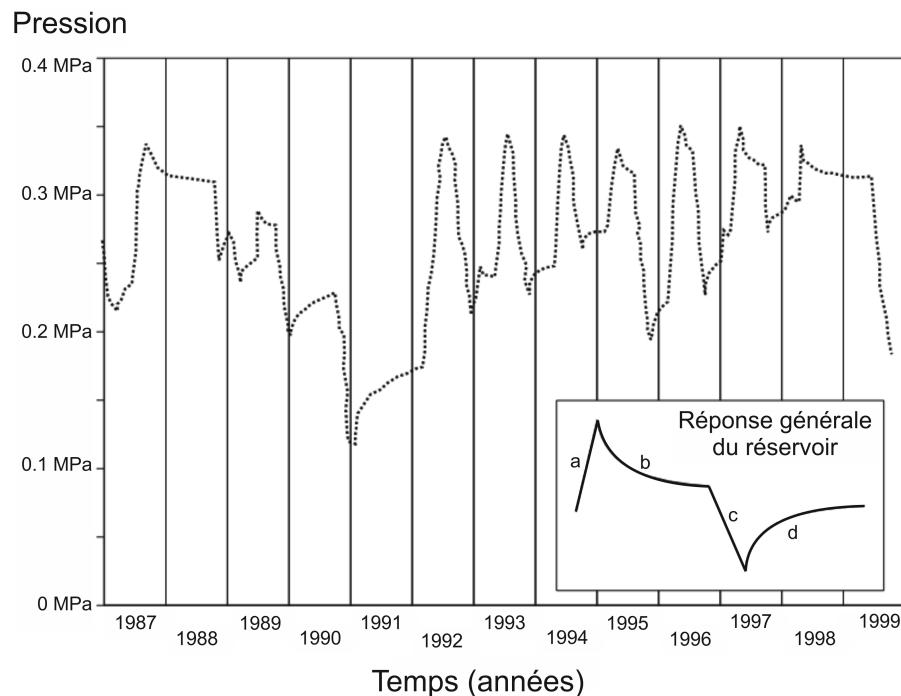


FIGURE 5.5 – Pression du réservoir à Anderlues entre 1987 et 1999 (modifié d'après Piessens & Dusar, 2004)

Finalement, le stockage de gaz naturel à Anderlues cesse en 2000. Bien que le site soit toujours rentable, les coûts de maintenance du scellement des puits sont devenus trop importants par rapport au stockage en aquifère de Loenhout. Par ailleurs, les hydrocarbures les plus lourds restent préférentiellement adsorbés sur les veines de charbon. Le gaz produit à Anderlues possède donc une capacité calorifique plus faible, nécessitant l'addition de 3% de propane (Piessens & Dusar, 2004).

5.4 Définition du problème

5.4.1 Géométrie

Une modélisation hydro-mécanique 2D axisymétrique du creusement d'un puits, de la mise en place d'un système de scellement et de l'injection de CO₂ est réalisée afin d'étudier l'étanchéité du système. La géométrie du problème est basée sur celle du puits n°6 et du système de scellement utilisé dans l'ancienne mine de charbon d'Anderlues pour le stockage de gaz naturel. Elle est présentée à la figure 5.6.

Le puits, d'un rayon de 2,85 m, est creusé dans un massif schisteux supposé homogène. La hauteur de massif considérée est de 100 mètres. La limite supérieure du modèle est supposée être située à 50 mètres de profondeur, soit à la limite entre les formations du

Paléozoïque et du Mésozoïque. Aux profondeurs envisagées par le modèle, l'influence de la gravité ne peut *a priori* être négligée. Elle est donc prise en compte dans le calcul des contraintes et des pressions d'eau. Etant donnée la faible masse volumique des gaz, la variation de leur pression avec la profondeur est quant à elle négligée (elle est de 2 % entre les points haut et bas du maillage). Le rayon de massif modélisé est également de 100 mètres. Les conditions limites imposées à cette distance du puits sont supposées ne pas avoir d'influence sur les résultats obtenus près de la paroi du puits.

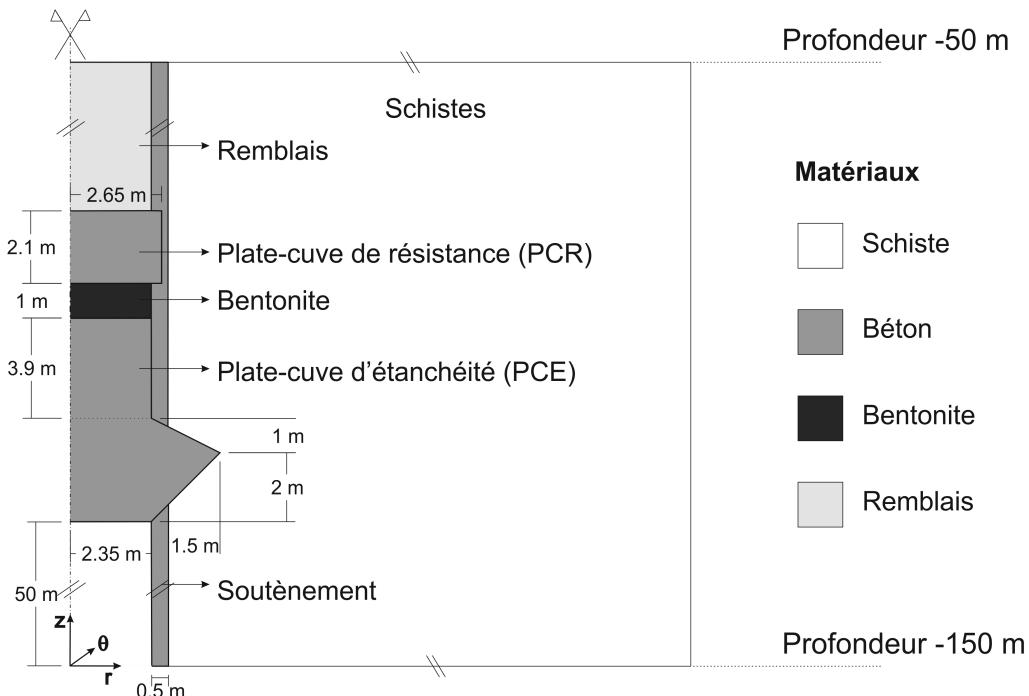


FIGURE 5.6 – Géométrie du problème

Le soutènement mis en place est en béton. Son épaisseur est de 50 cm. Le système de scellement est similaire à celui présenté à la section 2.6 du chapitre 2. Il est composé d'une plate-cuve d'étanchéité en béton armé, d'un joint hydraulique de bentonite compactée et d'une plate-cuve de résistance, également en béton armé. La hauteur totale du système de scellement du puits est de 10 mètres. Le puits est ensuite remblayé jusqu'à la surface. Les contacts entre les différents matériaux sont supposés parfaits.

Les figures 5.7 et 5.8 présentent le maillage utilisé pour la modélisation. Les éléments utilisés sont des éléments quadrangulaires couplés hydro-mécaniques (mécanique - eau - gaz) à 8 noeuds et 9 points d'intégrations. Le choix du nombre de points de Gauss est justifié par la présence d'éléments fortement élancés. Dans ces éléments, le calcul de l'équilibre semble être plus difficile et peut donner lieu à des oscillations. Dans les éléments moins élancés, 4 points d'intégration fournissent des résultats satisfaisants. Cependant, par simplicité, le même type d'élément est utilisé pour l'ensemble du maillage. Finalement, le maillage généré comprend 2222 éléments et 6578 noeuds.

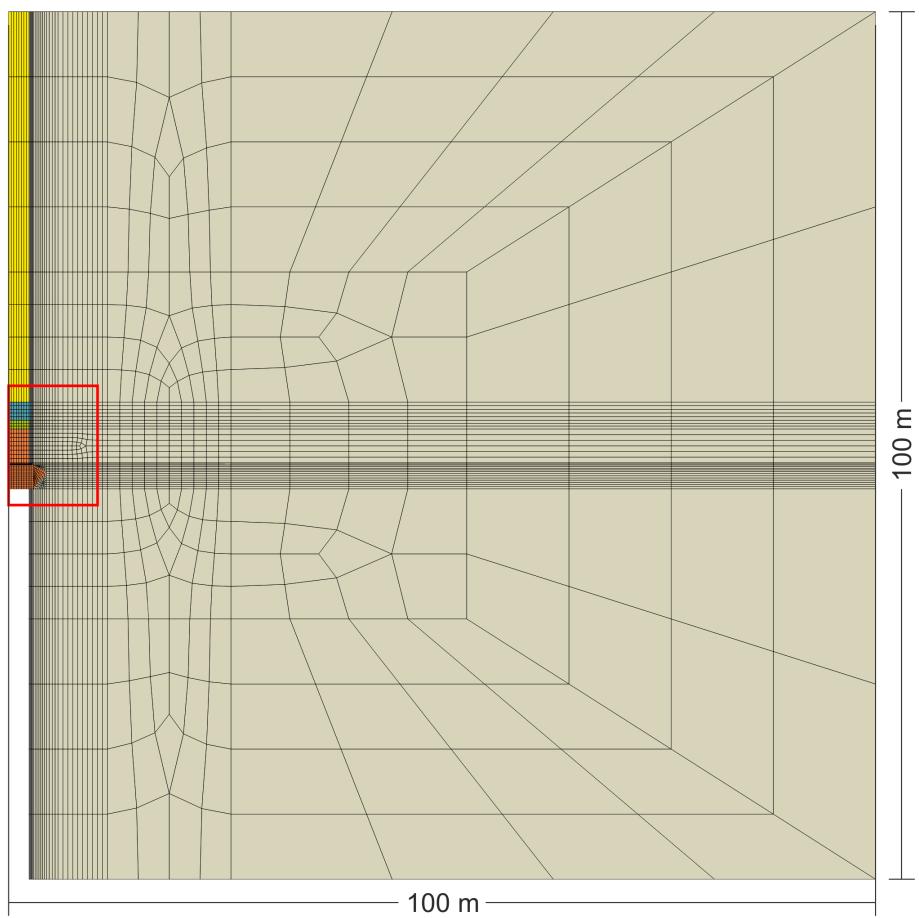


FIGURE 5.7 – Maillage

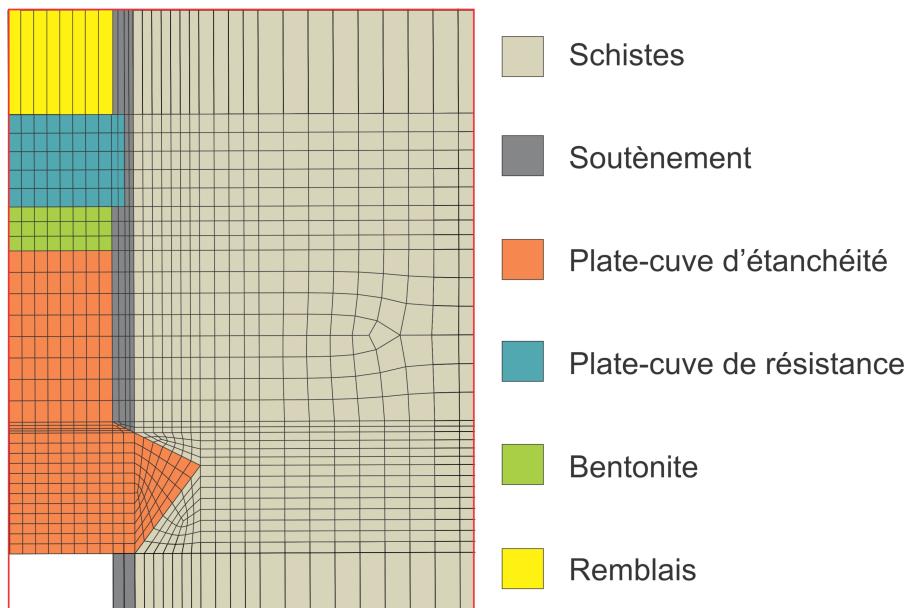


FIGURE 5.8 – Zoom du maillage sur la zone d'intérêt (le zoom correspond au cadre rouge de la figure 5.7)

L'origine du repère d'axes utilisé est située à 150 mètres de profondeur (figure 5.6). Les coordonnées r , θ et z sont appelées respectivement coordonnées radiales, orthoradielles (ou circonférentielles) et axiales. Dans la suite, la référence à la distance axiale sera également faite en termes de profondeur par rapport à la surface du sol.

5.4.2 Conditions initiales

La modélisation réalisée est une modélisation couplée hydro-mécanique en conditions isothermes (15°C) de milieux partiellement saturés. Les équations d'écoulements prennent en effet en compte la présence de deux fluides : l'eau et le CO_2 . Par conséquent, les conditions initiales du problème doivent être définies en termes de pressions d'eau, de gaz et de contraintes mécaniques.

Initialement, les pressions d'eau dans le massif sont telles que le schiste présente une saturation en eau de l'ordre de 90%. La teneur en eau des schistes à Anderlues n'est pas connue mais l'étude du contexte hydrogéologique nous a appris qu'ils étaient non saturés. Les pressions d'eau dans le soutènement, le système de scellement du puits et les remblais sont supposées en équilibre avec l'humidité relative régnant dans la galerie, choisie à 80%. Le choix de cette valeur est basé sur l'humidité relative moyenne en Belgique, comprise entre 80 et 90% (Groupement belge du béton, 2006). Dans tous les cas, la répartition des pressions d'eau est supposée hydrostatique. Cette hypothèse est bien entendu fort discutable dans les matériaux partiellement saturés.

En ce qui concerne les pressions de gaz, une pression uniforme égale à la pression atmosphérique $p_{atm} = 0.1 \text{ MPa}$ est imposée dans tous les matériaux.

Finalement, tous les matériaux, à l'exception de ceux du système de scellement, sont initialement soumis aux seules contraintes de gravité dues à leur poids propre et celui des 50 mètres de matériaux susjacent. Le champ de contraintes est supposé isotrope et le coefficient de poussées des terres K est pris égal à l'unité. Les masses volumiques des différents matériaux sont calculées suivant l'expression :

$$\rho = (1 - \phi) \cdot \rho_s + \phi \cdot S_{r,w} \cdot \rho_w + \phi \cdot (1 - S_{r,w}) \cdot \rho_g$$

où $\rho_s = 2700 \text{ kg/m}^3$ est la masse volumique des grains solides, ϕ , la porosité, $S_{r,w}$, la saturation en eau et où ρ_w et ρ_g sont les masses volumiques respectivement de l'eau et du gaz.

Dans le système de scellement, les contraintes initiales sont choisies nulles pour des raisons numériques⁵. Toutefois, le rééquilibre des contraintes est très rapide et cette condition initiale est supposée ne pas influencer les résultats de l'état final.

En guise de synthèse, les conditions initiales dans les différents matériaux sont reprises au tableau 5.1.

5. En cours de calcul (lors de la mise en place du système de scellement du puits), les contraintes mécaniques dans certains éléments doivent être réinitialisées. Cependant, le code de calcul LAGAMINE ne permet pas d'imposer un gradient aux nouvelles contraintes.

	Schiste	Soutènement	Système de scellement	Remblais
$\sigma_0(z)$	$3.85 - 0.0257z$	$3.43 - 0.0229z$	0	$3.15 - 0.021z$
$p_w(z)$	$-3.43 - 0.00981z$	$-29.6 - 0.00981z$	$-29.6 - 0.00981z$	$-29.6 - 0.00981z$
p_g	0.1	0.1	0.1	0.1

TABLE 5.1 – Conditions initiales dans les différents matériaux, en MPa (z en mètres)

5.4.3 Conditions aux frontières

Quatre phases sont considérées pour la modélisation : le creusement du puits, une phase d'attente correspondant à l'exploitation de la mine, la mise en place du système de scellement du puits et enfin l'injection de CO₂. Ces différentes phases sont caractérisées par l'activation successive d'éléments du maillage et/ou la modification des conditions aux limites. Chaque phase est détaillée de façon précise aux pages qui suivent.

Dans tous les cas, les déplacements verticaux à 150 mètres de profondeur et horizontaux à 100 mètres de l'axe du puits sont bloqués. La condition mécanique à 50 mètres de profondeur est quant à elle une force imposée correspondant au poids des terrains susjacent. En ce qui concerne l'eau, les frontières à 50 et 150 mètres de profondeur et à 100 mètres du puits sont des frontières à flux nul. Finalement, le problème lié aux transferts de gaz n'est pas étudié pendant les trois premières phases et la pression de gaz est maintenue constante dans l'ensemble des matériaux.

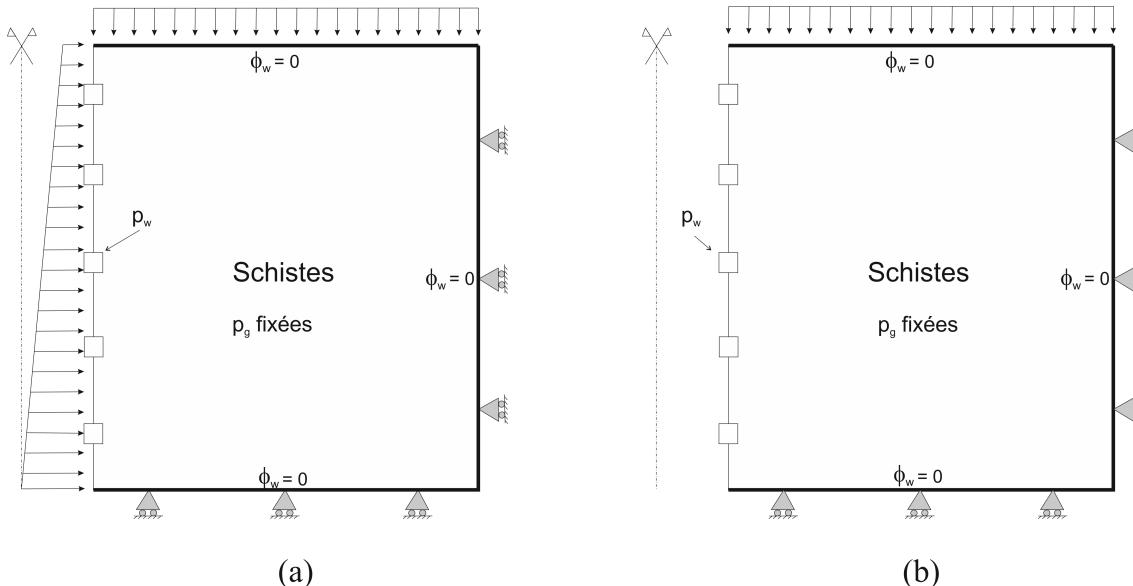


FIGURE 5.9 – Conditions limites (a) au début et (b) en fin de la phase I

➤ Phase I : Creusement du puits

La première phase du calcul, d'une durée de 50 jours, correspond au creusement du puits (figure 5.9). Pendant cette première étape, les contraintes radiales totales sont progressivement annulées en paroi du puits afin de reproduire le déconfinement du massif. D'un point de vue hydraulique, les pressions d'eau en paroi sont rabattues jusqu'à atteindre une valeur de près de -30 MPa, correspondant à une humidité relative de 80%. La diminution des contraintes radiales et des pressions d'eau en paroi est supposée linéaire entre le début et la fin de cette première phase.

➤ Phase II : Phase d'attente

La seconde phase du problème est une phase d'attente qui correspond à l'exploitation de la mine pendant 50 ans. Les éléments du soutènement sont activés au début de la phase et la contrainte radiale totale est supposée nulle à l'intrados du soutènement. Initialement, les pressions d'eau dans le soutènement sont de l'ordre de -30 MPa, ce qui correspond à une humidité relative de 80%. Tout au long du calcul, elles sont fixées en paroi à leur valeur initiale (figure 5.10).

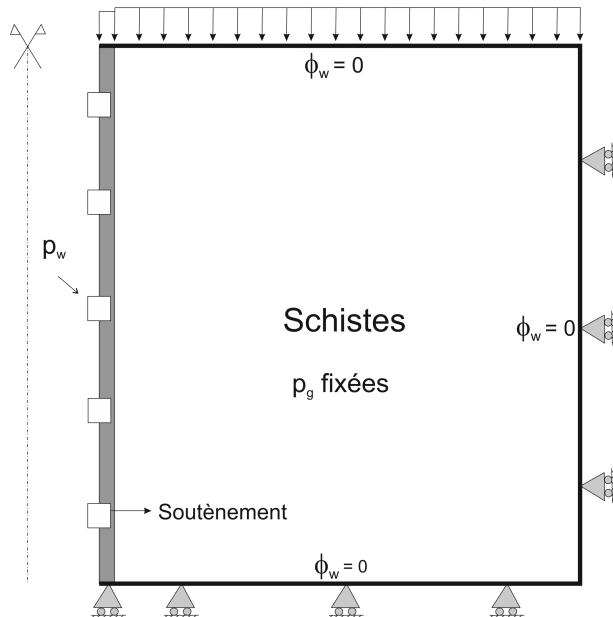


FIGURE 5.10 – Conditions limites pour la phase II

➤ Phase III : Mise en place du système de scellement

La troisième phase du problème correspond à une courte phase d'attente de 50 jours succédant à la mise en place du système de scellement du puits et au remblaiement de celui-ci. Les éléments situés dans le puits sont activés en début de phase. Les plates-cuves de résistance et d'étanchéité sont encastrées dans le soutènement et le massif. Aux encastrements, les éléments du maillage sont déjà activés. Les inconnues et variables d'état

de ces éléments doivent donc être réinitialisées afin de coïncider aux conditions initiales et propriétés du système de scellement.

Du point de vue des conditions aux limites, les pressions d'eau sont fixées au niveau des parois de la galerie de la mine et à la base du système de scellement (figure 5.11). Sur l'axe du puits, le flux d'eau est nul (par symétrie). D'un point de vue mécanique, les conditions aux limites du massif et du soutènement sont identiques à la phase précédente. Par symétrie, le déplacement radial est bloqué sur l'axe du puits. Enfin, les déplacements verticaux sont empêchés à l'interface entre la plate-cuve de résistance et les remblais.

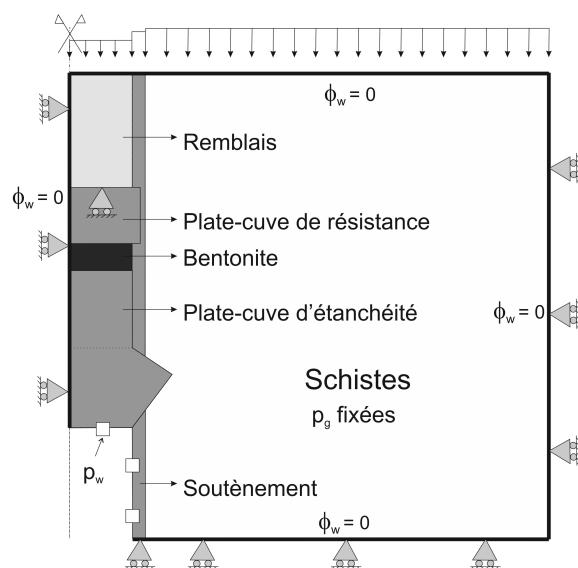


FIGURE 5.11 – Conditions limites pour la phase III

➤ Phase IV : Injection

La dernière phase du problème correspond à l'injection du CO₂ dans la mine. Les pressions de gaz sont fixées sur les parois du puits, où elles représentent la pression du réservoir (figure 5.12). Cette dernière est augmentée de manière linéaire à la vitesse de 0,25 MPa/an pendant 10 ans et est ensuite maintenue constante à 2,6 MPa (figure 5.13). A 50 mètres de profondeur, les pressions de gaz sont fixées à la pression atmosphérique. Les autres frontières du problème sont des frontières à flux nul. Finalement, les conditions mécaniques et de pressions d'eau sont identiques à celles de la phase 3. Remarquons cependant que, la pression d'eau étant fixée en parois du puits, il correspond à l'injection de gaz une augmentation de la pression capillaire et donc, par la loi de Kelvin (équation 3.28), une diminution de l'humidité relative. Cette modification de l'humidité relative reste toutefois modérée puisqu'elle passe de 80 à 78,5% lorsque la pression de gaz augmente de 0,1 à 2,6 MPa.

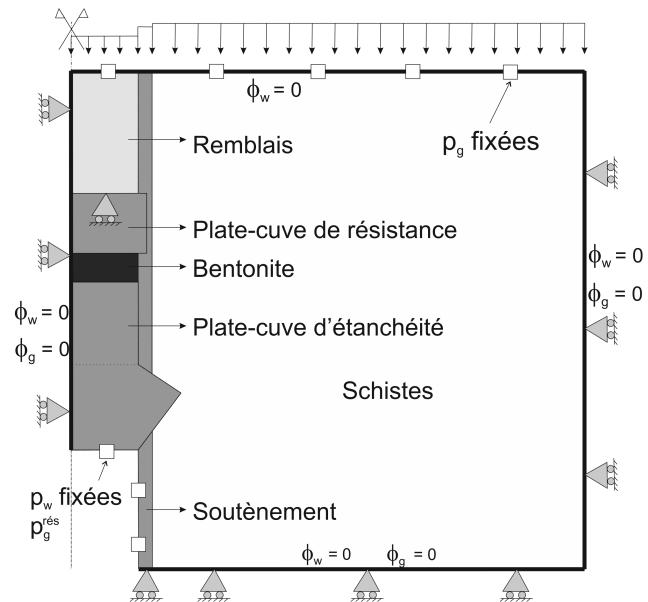


FIGURE 5.12 – Conditions limites pour la phase IV

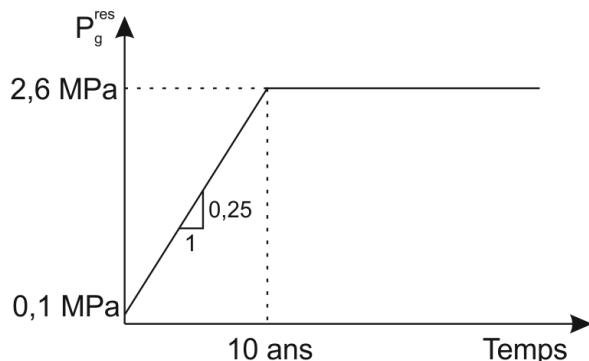


FIGURE 5.13 – Evolution de la pression du réservoir en fonction du temps

5.4.4 Modèle hydro-mécanique

Pour simuler les écoulements d'eau et de dioxyde de carbone dans le massif et le système de scellement du puits, le modèle hydro-mécanique en saturation partielle décrit au chapitre 3 est utilisé. Pour rappel, le modèle d'écoulement prend en compte la présence d'eau et de CO₂ à la fois dans les phases liquide et gazeuse. Deux modes de transports sont considérés : l'advection de chaque phase et la diffusion de l'eau et du CO₂ au sein de ces phases. Les propriétés des fluides ont été présentées dans le chapitre 3 (tableau 3.1).

5.4.5 Propriétés mécaniques des matériaux

Les propriétés mécaniques des différents matériaux sont présentées au tableau 5.2. Le comportement mécanique du schiste est modélisé par une loi élasto-plastique parfaitement plastique. Le critère d'entrée en plasticité utilisé est celui de Drucker-Prager (équation 3.34). Les valeurs de module de Young, coefficient de Poisson, cohésion et, finalement,

d'angle de frottement interne du schiste proviennent de résultats d'essais de laboratoire sur des échantillons de schiste houiller à Anderlues (Distrigaz, 1990). La valeur du coefficient de Biot est déduite de la porosité du schiste (cf. tableau 5.3) grâce à la loi exponentielle de Fabre et Gustkiewicz (Fabre & Gustkiewicz, 1997) :

$$b = 1 - \exp\left(-a \tan\left(\frac{\pi}{2}\phi\right)\right) \quad (5.1)$$

où a est un coefficient empirique qui dépend du type de roche. Il a été estimé par Fabre et Gustkiewicz (1997) pour les grès ($a \approx 5,5$) et pour les calcaires ($a \approx 4,5$), mais pas pour les schistes. Partant du fait que ce coefficient n'est pas très différent pour les grès et les calcaires, Ramos da Silva (Ramos da Silva *et al.*, 2008) suggère de le prendre égal à 5 dans le cas du schiste, ce qui donne un coefficient de Biot égal à 0,4. Cette valeur peut sembler particulièrement faible mais est expliquée par la faible porosité des schistes. Son influence sur les résultats finaux sera étudiée lors de l'étude de sensibilité.

Un modèle de comportement mécanique élastique linéaire est considéré pour le béton, la bentonite et les remblais. Les valeurs des différents paramètres mécaniques correspondent à ceux de matériaux envisagés dans le cadre du stockage de déchets radioactifs (Gerard *et al.*, 2008).

		Schiste	Béton	Bentonite	Remblais
E	Module de Young (MPa)	3000	33000	150	38.5
ν	Coefficient de Poisson (-)	0.3	0.16	0.3	0.2
c	Cohésion (MPa)	2.66	-	-	-
φ	Angle de frottement interne (°)	22.7	-	-	-
b	Coefficient de Biot (-)	0.4	0.8	1	1

TABLE 5.2 – Paramètres mécaniques des différents matériaux

5.4.6 Propriétés hydrauliques des matériaux

Les propriétés hydrauliques et courbes de rétention des différents matériaux sont présentées au tableau 5.3 et à la figure 5.14. Des modèles de van Genuchten sont utilisés pour les courbes de rétention (équation 3.4) et de perméabilité à l'eau (équation 3.20) dans les différents matériaux. Les courbes de perméabilité au gaz sont quant à elles modélisées par des lois cubiques (équation 3.22).

Les paramètres de la courbe de rétention du schiste ont été déterminés à partir des résultats d'essais de laboratoire présentés dans un article de Ramos da Silva (Ramos da Silva *et al.*, 2008). Les échantillons de roche testés ont été prélevés dans les schistes houillers de la mine de Beringen (Campine). Comme à Anderlues, ces roches sont datées du Westphalien. Les résultats expérimentaux présentent une grande dispersion et la valeur des

paramètres de van Genuchten sont dès lors entachés d'incertitudes. Leur influence sur les résultats du problème sera donc analysée lors de l'étude de sensibilité. En ce qui concerne la perméabilité du schiste, aucune donnée n'était disponible. Elle a été choisie arbitrairement à 2.10^{-19} m^2 , soit deux ordres de grandeur supérieure à l'argilite callovo-oxfordienne connue pour sa très faible perméabilité.

Les paramètres hydrauliques du béton, de la bentonite et des remblais proviennent eux, à l'instar des propriétés mécaniques, de matériaux étudiés pour le stockage de déchets radioactifs (Gerard *et al.*, 2008).

		Schiste	Béton	Bentonite	Remblais
K_{int}^{sat}	Perméabilité intrinsèque (m^2)	2.10^{-19}	1.10^{-16}	8.10^{-21}	1.10^{-15}
ϕ	Porosité (-)	0.046	0.15	0.366	0.33
τ	Tortuosité (-)	0.25	0.25	0.0494	1
P_r	Paramètre de van Genuchten (MPa)	9.2	2	16	0.12
n	Paramètre de van Genuchten (-)	1.49	1.54	1.61	1.4203
m	Paramètre de van Genuchten (-)	0.3289	0.3507	0.3789	0.2959
S_{res}	Saturation résiduelle en eau (-)	1	1	1	1
S_{max}	Saturation maximum en eau (-)	0	0	0	0

TABLE 5.3 – Paramètres hydrauliques des différents matériaux

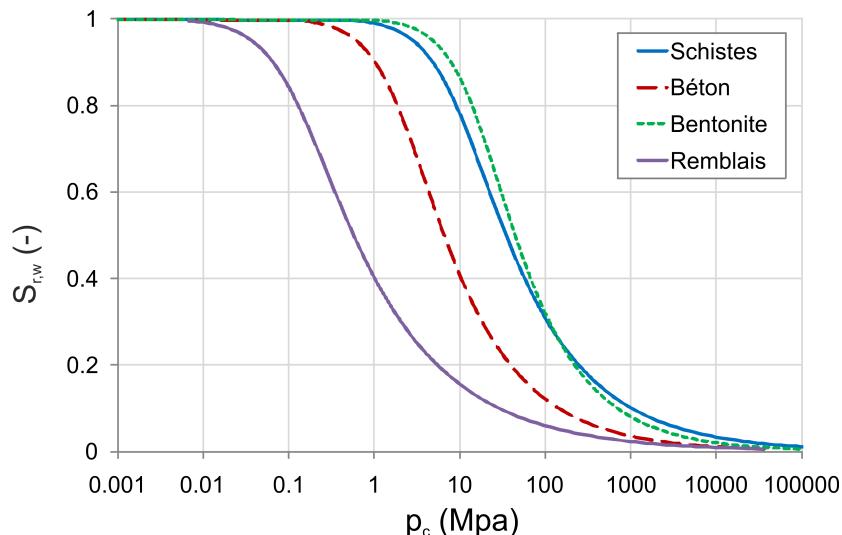


FIGURE 5.14 – Courbes de rétention des matériaux utilisés

5.5 Analyse des résultats

5.5.1 Phase I : Creusement du puits

La première phase du calcul, d'une durée de 50 jours, correspond au creusement du puits : les contraintes radiales totales sont progressivement annulées en paroi alors qu'une humidité relative de 80% y est imposée.

➤ Ecoulement.

La figure 5.15(a) présente l'évolution des profils de pressions d'eau dans le massif pendant le creusement du puits. Les valeurs en paroi correspondent à la condition limite imposée : un rabattement linéaire des pressions d'eau depuis leurs valeurs initiales (correspondant à une saturation d'un peu plus de 90% du massif) jusqu'à une pression proche de -30 MPa (traduisant une humidité relative de 80% en paroi du puits).

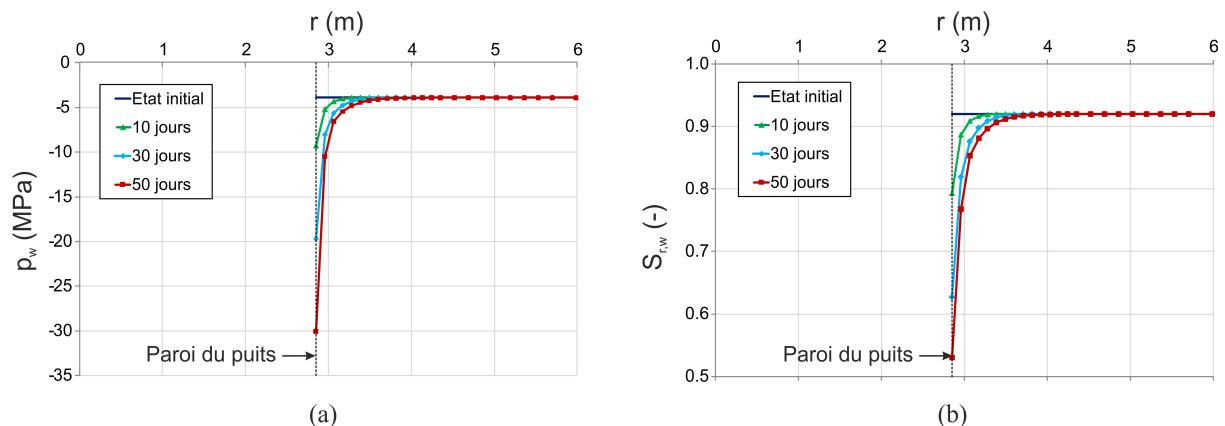


FIGURE 5.15 – Profils (a) des pressions d'eau et (b) de la saturation en eau à 100 mètres de profondeur dans le massif en fonction de la distance radiale

Le rabattement des pressions d'eau provoque des venues d'eau dirigées vers le centre du puits. On observe ainsi un cône de rabattement des pressions d'eau autour de la galerie. Etant donné la faible perméabilité des schistes, l'extension de ce cône reste cependant limitée après 50 jours : les variations importantes de pression d'eau se concentrent au niveau des 30 premiers centimètres de massif et, à un mètre de la paroi du puits, le drainage est très faible. Pendant les 50 jours de creusement, le volume d'eau drainé le long des 100 mètres de puits est de $4,78 \text{ m}^3$.

Le rabattement des pressions d'eau se traduit par une désaturation importante des parois du puits (figure 5.15(b)). Après 50 jours, la saturation en eau y est de 53%. A l'instar des pressions en eau, l'influence du creusement sur le degré de saturation en eau devient rapidement très faible lorsque l'on s'éloigne du puits. Ainsi, à 1 mètre de la paroi, presque aucune diminution n'est observée.

➤ Comportement mécanique.

La figure 5.16 représente la distribution des contraintes radiales effectives autour du puits en fin de creusement. Ces contraintes tendent à décroître lorsque l'on se rapproche du puits. Toutefois, comme le montre la figure 5.17, le minimum des contraintes radiales effectives n'est pas situé au niveau de la paroi du puits (comme dans un problème purement mécanique, par exemple) mais un peu plus loin, à une distance d'environ 30 cm dans notre cas. On observe donc une augmentation importante des contraintes près de la paroi.

Pour expliquer cette observation, nous retournons à la définition des contraintes effectives de Bishop que nous avons utilisée :

$$\sigma' = \sigma - b \cdot (p_w \cdot S_{r,w} + p_g \cdot (1 - S_{r,w})) \quad (5.2)$$

L'idée est la suivante : nous allons décomposer la contrainte effective radiale en un terme de contrainte totale et un terme dû à la pression des fluides. Nous pourrons alors analyser l'évolution de chacun de ces termes dans le massif afin d'expliquer les observations faites.

Il est possible de déduire la distribution des pressions d'eau et de saturation à partir des résultats de la modélisation et, par conséquent, la valeur du second terme du membre de droite de l'équation 5.2. Si nous connaissons une expression analytique des contraintes radiales totales dans le massif, nous pourrons alors déterminer une distribution des contraintes radiales effectives dans le schiste, à comparer aux résultats obtenus numériquement.

Sous les hypothèses d'un état plan de déformation et d'un comportement élastique du massif, on peut montrer que la contrainte radiale totale autour d'un trou de rayon R non soutenu s'exprime comme :

$$\sigma_r = \left(1 - \frac{R^2}{r^2}\right) \sigma^0$$

où r est la distance au centre du puits et σ_0 est la contrainte totale initiale (Panet, 1976). En paroi du puits, on retrouve bien une contrainte radiale nulle ($\sigma_r = 0$) et lorsque l'on s'en éloigne, la contrainte radiale tend à retrouver sa valeur initiale ($\sigma_r = \sigma^0$ lorsque $r = \infty$).

Nous pouvons alors tracer un graphique de l'évolution de chacun des termes de l'équation 5.2 en fonction de la distance radiale au centre du puits (figure 5.18). La courbe verte représente l'évolution des contraintes radiales effectives déduite « analytiquement ». On remarque qu'on retrouve bien l'évolution déterminée numériquement (courbe mauve).

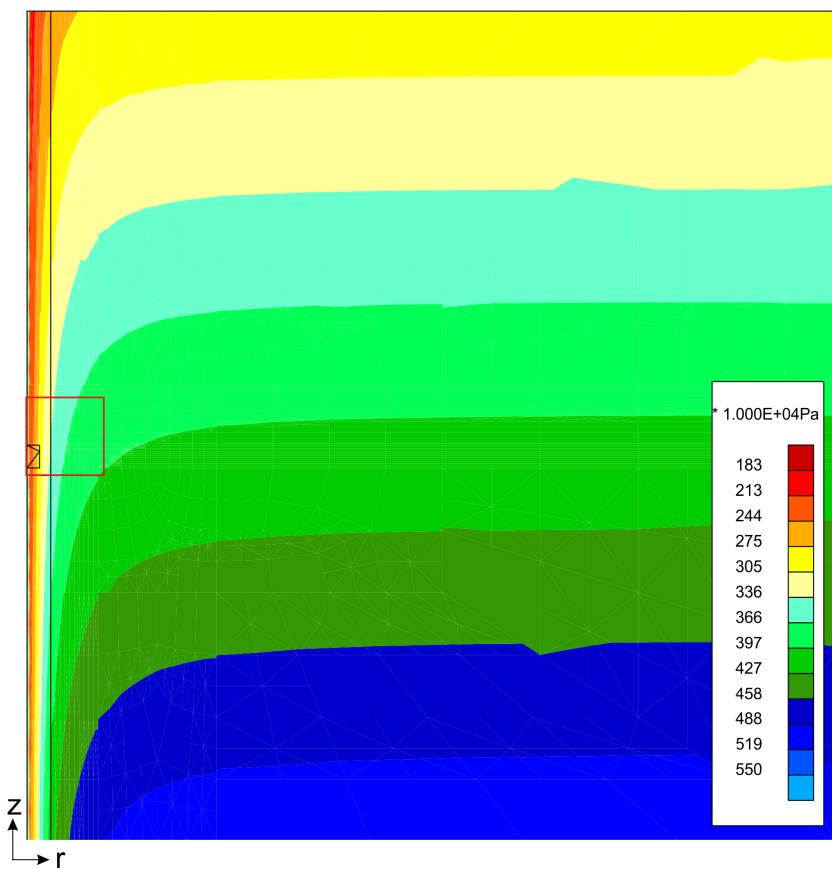


FIGURE 5.16 – Distribution des contraintes radiales autour du puits après creusement

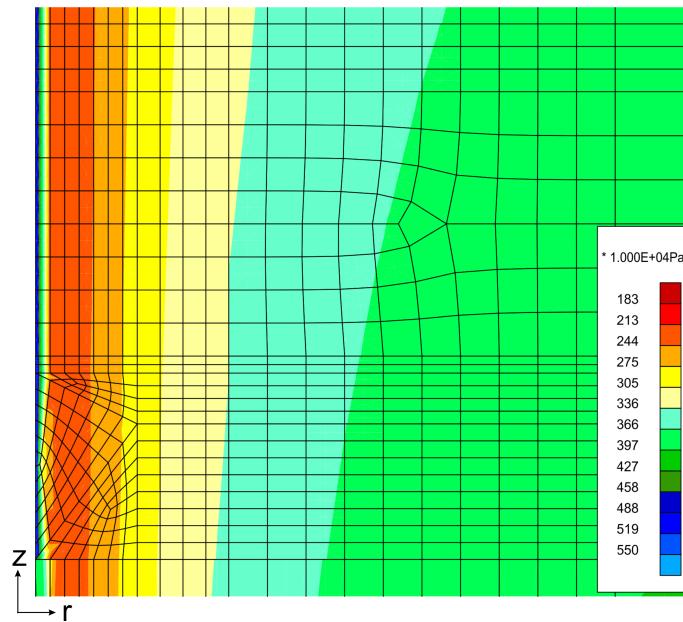


FIGURE 5.17 – Distribution des contraintes radiales en parois de puits après creusement (agrandissement du cadre rouge de la figure 5.16)

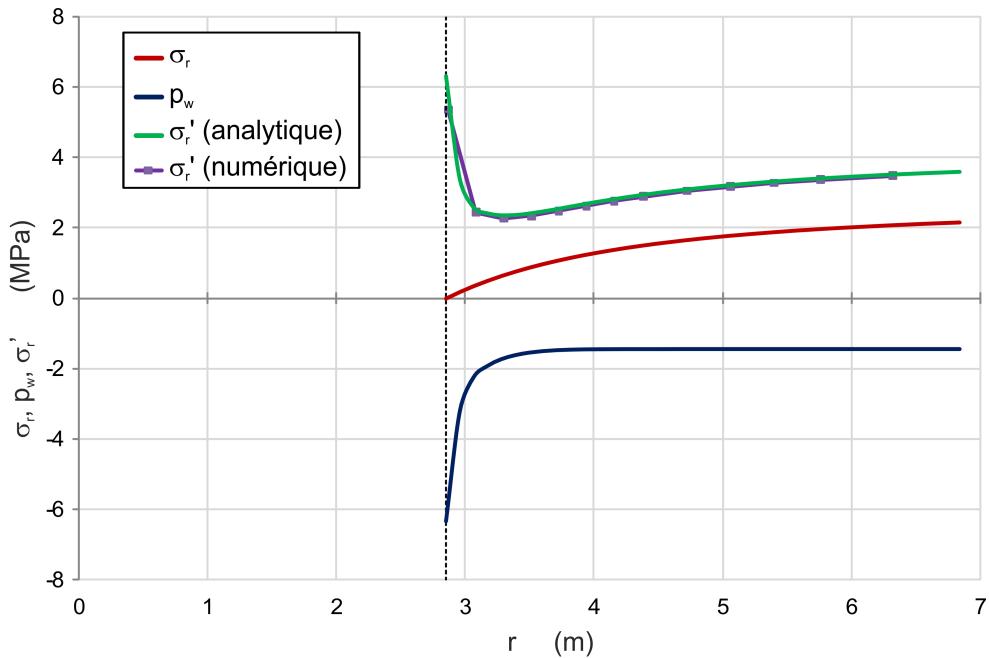


FIGURE 5.18 – Evolution des contraintes totales, pressions d'eau et contraintes effectives en fonction de la distance au centre du puits (à 100 mètres de profondeur)

La présence d'un minimum de contraintes radiales effectives à 30 cm de la paroi du puits peut alors être expliquée par les choix numériques suivants :

- une **faible perméabilité** du schiste qui limite l'influence du creusement sur le rabattement des pressions d'eau dans le massif. Si nous avions considéré un massif gréseux avec des perméabilités plus importantes, le cône de rabattement des pressions d'eau aurait été plus large.
- une **importante succion** imposée en paroi du puits. Cette succion apporte une résistance supplémentaire au massif; c'est le phénomène de consolidation.

La figure 5.19 présente le chemin de contraintes effectives suivis, lors du creusement du puits, par trois points situés près de la paroi. Les trois points considérés (tableau 5.4) correspondent aux trois premiers points d'intégration du premier élément de massif. En effet, étant donnée la consolidation du schiste en paroi de puits, il est légitime de penser que ce n'est pas en paroi que le massif entrera en plasticité en premier lieu.

L'analyse du chemin de contraintes effectives des trois points montre qu'à cet endroit, le massif reste élastique pendant toute la durée du creusement du puits (figure 5.19). En fin de creusement, la convergence du massif est faible : pour un puits de 2,85 m de rayon, le déplacement maximum à 150 m de profondeur n'est que de 4,7 mm. Remarquons que cette valeur correspond exactement à celle obtenue par la méthode de convergence-confinement (Panet, 1976), ce qui peut être expliqué par la grande rigidité du massif.

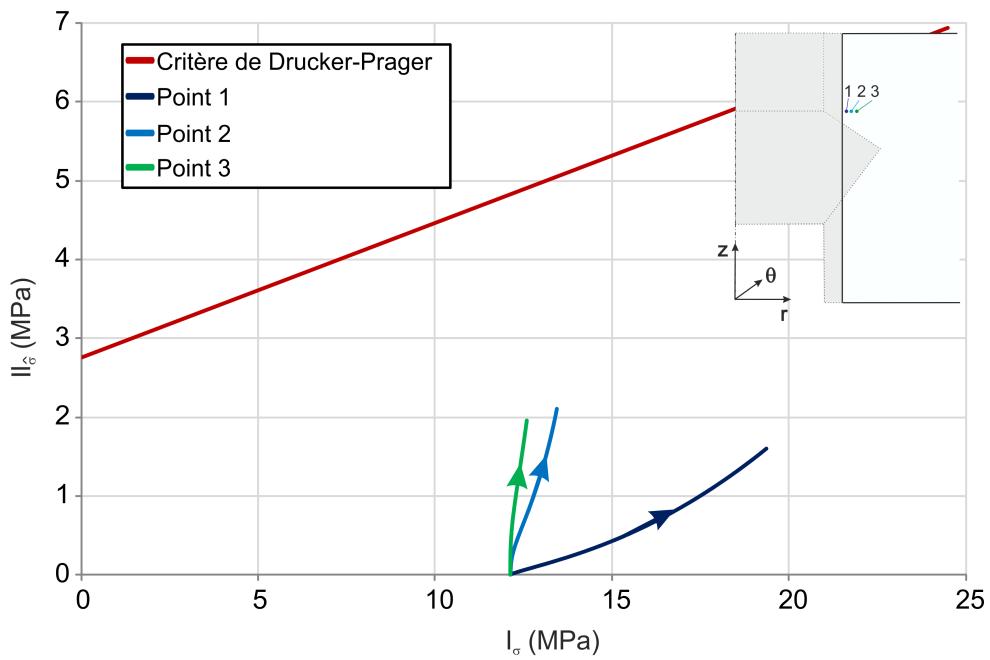


FIGURE 5.19 – Chemin des contraintes (effectives) en paroi du puits à 100 mètres de profondeur

Point	Distance au centre du puits (m)
1	2.87
2	3.09
3	3.30

TABLE 5.4 – Coordonnées des 3 points dont le chemin de contraintes est analysé (profondeur : 100 mètres))

En outre, sur la figure 5.19, on remarque que le chemin de contrainte du point 1 (le plus proche de la paroi) présente une faible pente alors que, dans le cas du point 3, la contrainte moyenne reste pratiquement constante. Cette observation traduit le drainage plus important du massif près des parois du puits. En effet, nous avons montré précédemment que le drainage du schiste est le plus important près de la paroi de la galerie. C'est donc à cet endroit que le massif subit la plus grande variation de pression d'eau. Dans le domaine élastique, la contrainte totale moyenne est constante (une diminution de la contrainte radiale est compensée par une augmentation de la même quantité de la contrainte circonférentielle). La contrainte moyenne effective doit donc augmenter en paroi pour contrer la diminution des pressions d'eau. Lorsque l'on s'éloigne du puits, étant données les faibles perméabilités considérées, les pressions d'eau n'influencent quasiment plus le comportement mécanique du massif. On tend alors à retrouver un chemin de contraintes classique aux problèmes purement mécaniques, c'est-à-dire une droite verticale.

➤ Discussion.

Dans les calculs précédents, nous avons considéré des propriétés mécaniques et hydrauliques constantes dans tout le massif. Cependant, en réalité, nous savons que cela n'est pas le cas. Les résultats des essais présentent une certaine dispersion et les propriétés du massif possèdent elles-mêmes une variabilité spatiale avec, notamment, des zones plus ou moins cohérentes. Les schistes sont des roches qui, en contact avec l'eau ou l'air, peuvent subir une altération physico-chimique importante, entraînant de surcroit une dégradation de leurs propriétés mécaniques. Il est donc intéressant d'analyser dans quelle mesure des valeurs de cohésion ou d'angle de frottement plus faibles pourraient entraîner la plastification du massif. La figure 5.20 présente le chemin de contraintes de deux points situés à 100 et 150 m de profondeur. Le critère d'entrée en plasticité de Drucker-Prager est tracé pour différentes valeurs d'angle de frottement interne et de cohésion.

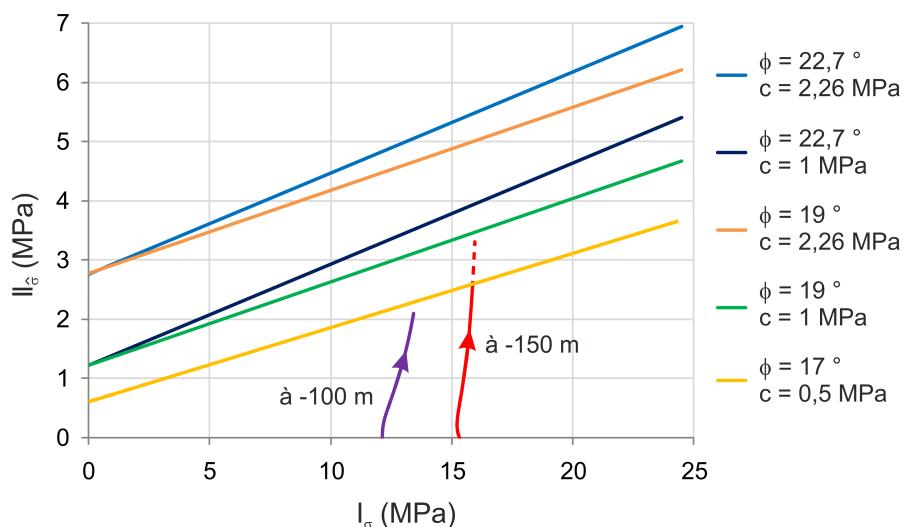


FIGURE 5.20 – Chemin des contraintes (effectives) en paroi du puits pour deux points situés à 100 m et 150 m de profondeur. Le critère de Drucker-Prager est tracé pour différentes valeurs d'angle de frottement interne et cohésion.

Comme on peut le voir sur la figure, une diminution d'un seul des deux paramètres (angle de frottement interne ou cohésion) ne suffit pas pour que le massif entre en plasticité aux profondeurs considérées. À 100 mètres de profondeur, l'entrée en plasticité nécessite une perte relativement importante des caractéristiques mécaniques du massif. Il est donc légitime de penser que celui-ci restera élastique pendant le creusement du puits. Rappelons que ceci peut être, en partie, attribué à l'importante succion imposée en paroi qui apporte un effet bénéfique à la résistance du massif. À 150 mètres de profondeur, la contrainte moyenne est plus grande mais le déviateur des contraintes est également plus élevé. L'entrée en plasticité aura lieu plus tôt mais demande toujours une perte considérable des propriétés mécaniques du schiste.

Enfin, étant donné les lois de comportement hydromécaniques utilisées, il importe

d'être conscient qu'une éventuelle entrée en plasticité n'aurait d'effet que sur les déplacements et que l'influence sur l'écoulement resterait très faible. De nombreux scientifiques ont développé des lois couplées hydro-mécaniques qui permettent de prendre en compte un couplage supplémentaire entre les déformations, la perméabilité et la pression d'entrée d'air (Alonso *et al.*, 2006 ; Chen *et al.*, 2007 ; Olivella & Alonso, 2008 ; Levasseur *et al.*, 2010...).

5.5.2 Phase II : Phase d'attente

La phase II est une phase d'attente de 50 ans, correspondant à l'exploitation de la mine. Afin de modéliser la mise en place du soutènement, les éléments correspondants sont activés au début de la phase. Les pressions d'eau initiales dans le soutènement sont en équilibre avec les 80% d'humidité relative régnant dans le puits. Elles sont fixées à l'intrados du soutènement tout au long de la phase.

La figure 5.21 présente l'évolution des profils de pression d'eau dans le massif et le soutènement. Initialement, la pression d'eau dans le soutènement est en équilibre avec l'humidité relative de la galerie (environ -30 MPa). La différence de pressions d'eau avec le schiste provoque toutefois des flux d'eau dirigés vers le centre du puits qui tendent à resaturer le soutènement en béton.

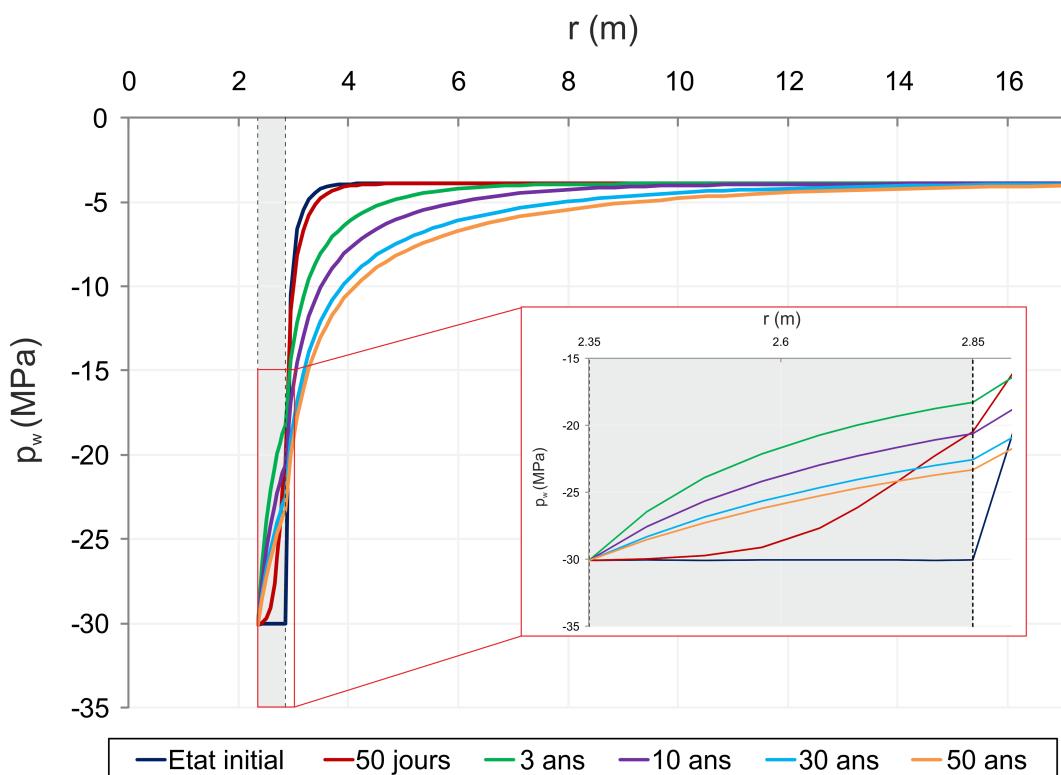


FIGURE 5.21 – Profils des pressions d'eau dans le massif et le soutènement (zone grisée) en fonction de la distance radiale (à 100 mètres de profondeur)

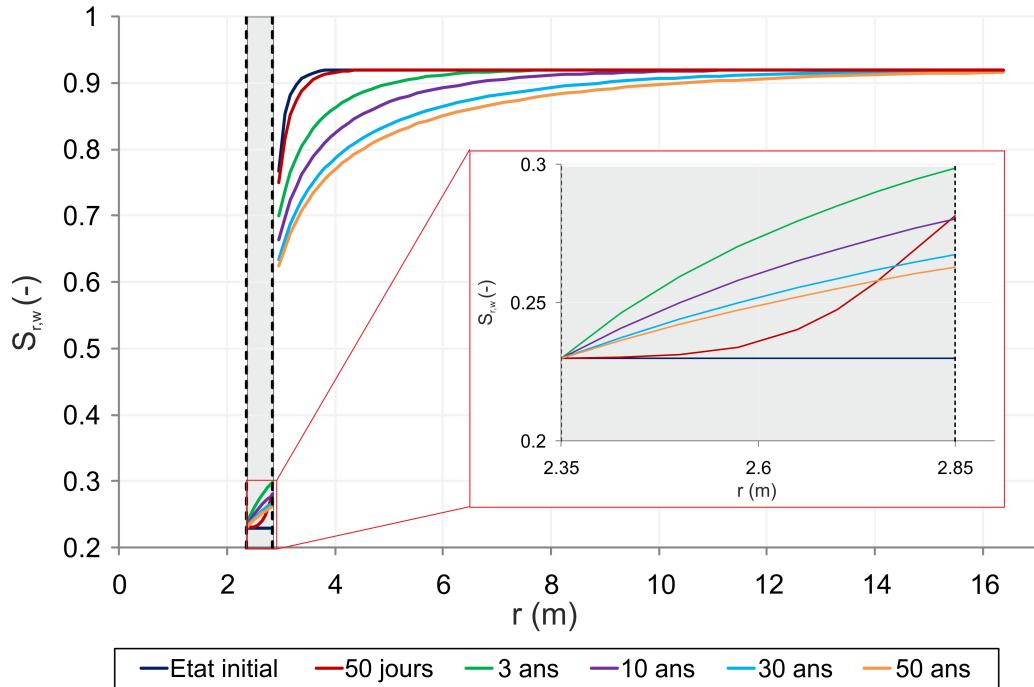


FIGURE 5.22 – Profils de la saturation en eau dans le massif et le soutènement (zone grisée)

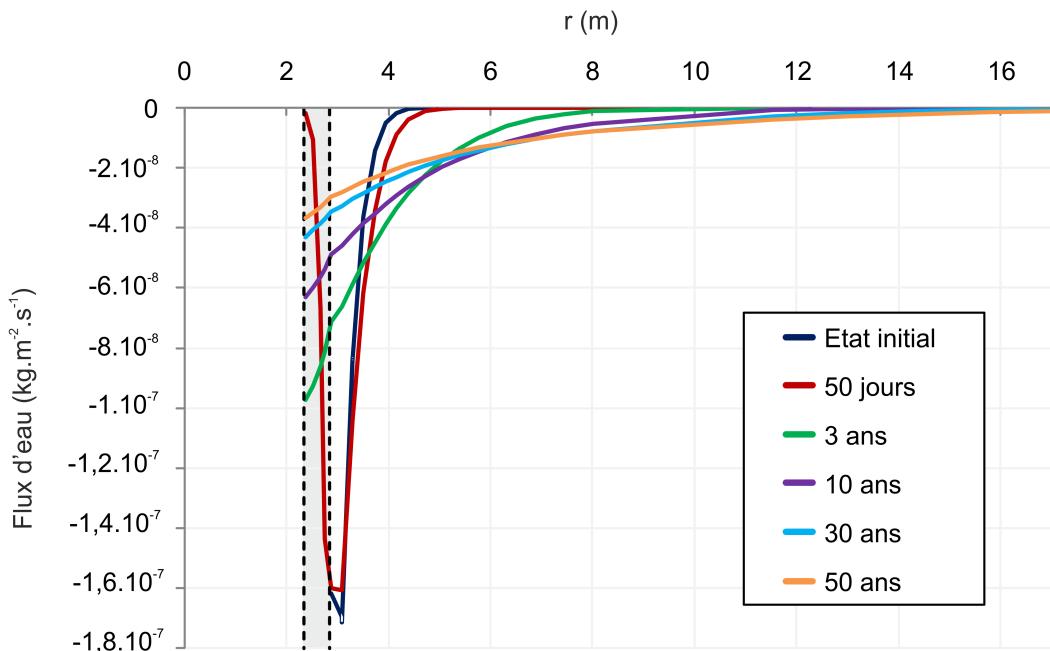


FIGURE 5.23 – Profils des flux d'eau dans le massif et le soutènement (zone grisée)

Ainsi, la figure 5.22 montre que, dans un premier temps, la saturation en eau augmente dans le soutènement et diminue dans le massif. Si l'on analyse les profils de flux d'eau (figure 5.23), on remarque que, bien que les flux soient importants à l'interface massif - soutènement, les volumes d'eau drainés par le puits restent assez faibles. L'eau est en effet emmagasinée dans la structure poreuse du béton, entraînant une augmentation des pressions et de la saturation en eau dans le soutènement. Cette première « phase » dure moins de 3 ans.

Dans un second temps, l'effet du drainage par le puits devient prépondérant sur la resaturation en eau du soutènement. On observe alors une diminution de la saturation du béton et une augmentation des flux d'eau drainés par le puits (figures 5.22 et 5.23). Ce changement de concavité du profil des pressions d'eau dans le soutènement peut être expliqué par une augmentation progressive de la perméabilité à l'eau du béton au fur et à mesure de sa resaturation.

Finalement, avec le temps, les pressions, saturations et flux d'eau drainés par le puits tendent à se stabiliser et à atteindre un régime permanent (figures 5.21 à 5.23). Après 50 ans d'attente, le volume total d'eau drainé par le puits environne les 30 m³.

5.5.3 Phase III : Mise en place du système de scellement

La troisième phase du problème correspond à la mise en place du système de scellement. Une courte phase d'attente de 50 jours est considérée.

Les figures 5.24(a) et 5.24(b) présentent les distributions de pressions d'eau initiales et après 50 jours dans le système de scellement du puits. Endéans ce délai, la distribution des pressions d'eau dans les différents matériaux n'évolue guère. Les modifications de pressions les plus marquantes se situent aux encastrements des plates-cuves d'étanchéité et de résistance, là où les différences de pressions avec les matériaux avoisinants sont les plus grandes.

La figure 5.25 montre quant à elle l'état de saturation dans les différents matériaux. Etant donnée la courbe de rétention du béton et les importantes pressions capillaires imposées, la saturation en eau des éléments du système de scellement du puits est faible (de l'ordre de 23%). La bentonite possède quant à elle une pression d'entrée d'air beaucoup plus grande que le béton (tableau 5.3) et montre une saturation plus élevée d'environ 60%.

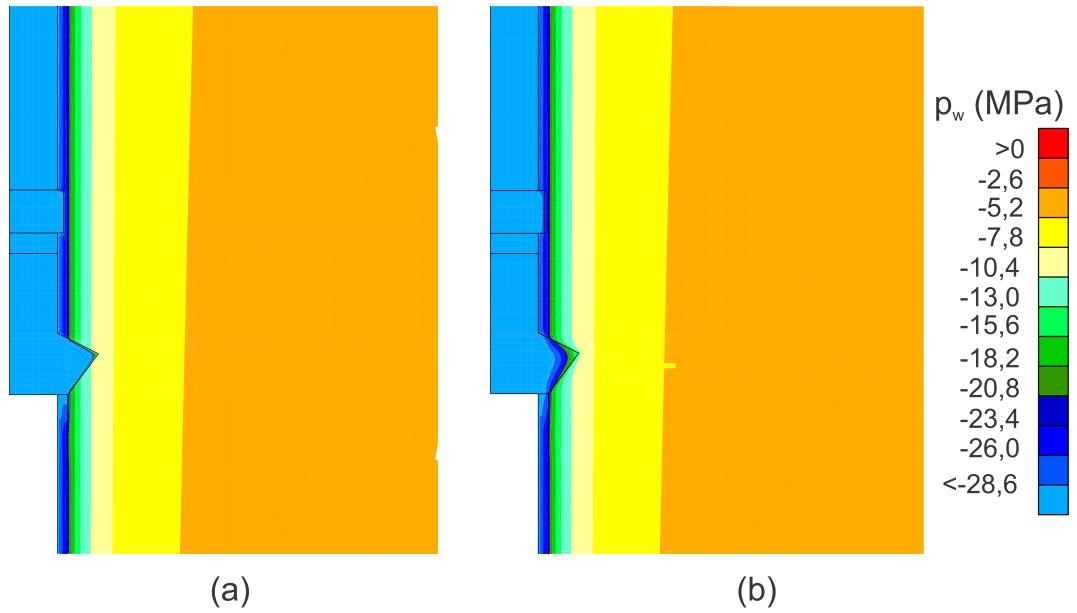


FIGURE 5.24 – Distribution des pressions d'eau (a) au début de la phase 3 et (b) après 50 jours d'attente

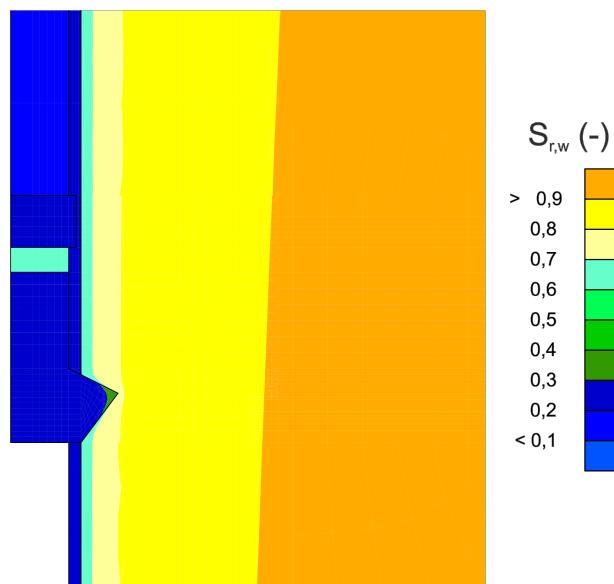


FIGURE 5.25 – Distribution de la saturation en eau dans les différents matériaux, 50 jours après la mise en place du système de scellement

5.5.4 Synthèse des trois premières phases

Au terme du creusement du puits et d'une phase d'attente de 50 ans, les pressions d'eau dans le schiste sont perturbées sur une distance d'un peu moins de 10 mètres. A l'extrados du soutènement, la saturation du schiste est d'environ 60%, valeur à comparer avec la saturation initiale de la roche de 90%. La faible perméabilité du schiste explique le rayon d'influence limité du drainage par le puits.

Compte tenu de la courbe de rétention du béton, la saturation en eau du soutènement et des plates-cuves est faible (environ 25%). La pression d'entrée d'air élevée de la bentonite lui assure par contre une saturation plus élevée, de l'ordre de 60%.

5.5.5 Phase IV : Injection

La dernière phase du problème correspond à l'injection du CO₂ dans la mine. Pour rappel, celle-ci est modélisée par l'augmentation progressive des pressions de gaz au niveau de la paroi du puits et à la base du système de scellement. Les pressions de gaz sont ainsi augmentées de manière linéaire de 0,1 à 2,6 MPa en 10 ans avant d'être maintenues constantes.

La figure 5.26 montre la distribution des pressions de gaz dans le système de scellement et la zone proche du puits pendant la première année d'injection. On constate que l'augmentation des pressions de gaz suite à l'injection du CO₂ est essentiellement localisée dans les éléments en béton. Le gaz injecté va en effet circuler préférentiellement dans le milieu qui lui oppose le moins de résistance. Au chapitre 4, nous avons montré que le principal mécanisme de transfert du gaz dans un milieu poreux faiblement saturé était l'advection de la phase gazeuse. La cinétique de transfert de CO₂ est dès lors contrôlée par la perméabilité du milieu. Compte tenu de la faible saturation initiale du béton (de l'ordre de 25%) et de sa perméabilité intrinsèque plus grande que celle du schiste, l'écoulement de la phase gazeuse se fait essentiellement à travers les éléments en béton du système de scellement et du soutènement.

Par ailleurs, on remarque que le gaz injecté tend à contourner le joint hydraulique de bentonite et à passer par le soutènement en béton. En effet, étant données les propriétés de rétention et la très faible perméabilité intrinsèque de la bentonite, celle-ci agit comme une frontière *quasi* imperméable. Alors qu'au chapitre précédent, le bouchon de bentonite était apparu comme une barrière d'étanchéité extrêmement efficace, l'architecture du système de scellement ne permet pas ici d'en tirer profit.

Remarque : A la figure 5.26, une modification de la distribution des pressions de gaz dans le soutènement, le système de scellement du puits et les remblais est très vite observée. Cette augmentation des pressions de gaz est en réalité très faible (inférieure au pourcent) et ne doit pas être imputée à l'injection de CO₂. Elle correspond en effet à une légère redistribution des pressions de gaz suite aux arrivées d'eau venant du massif.

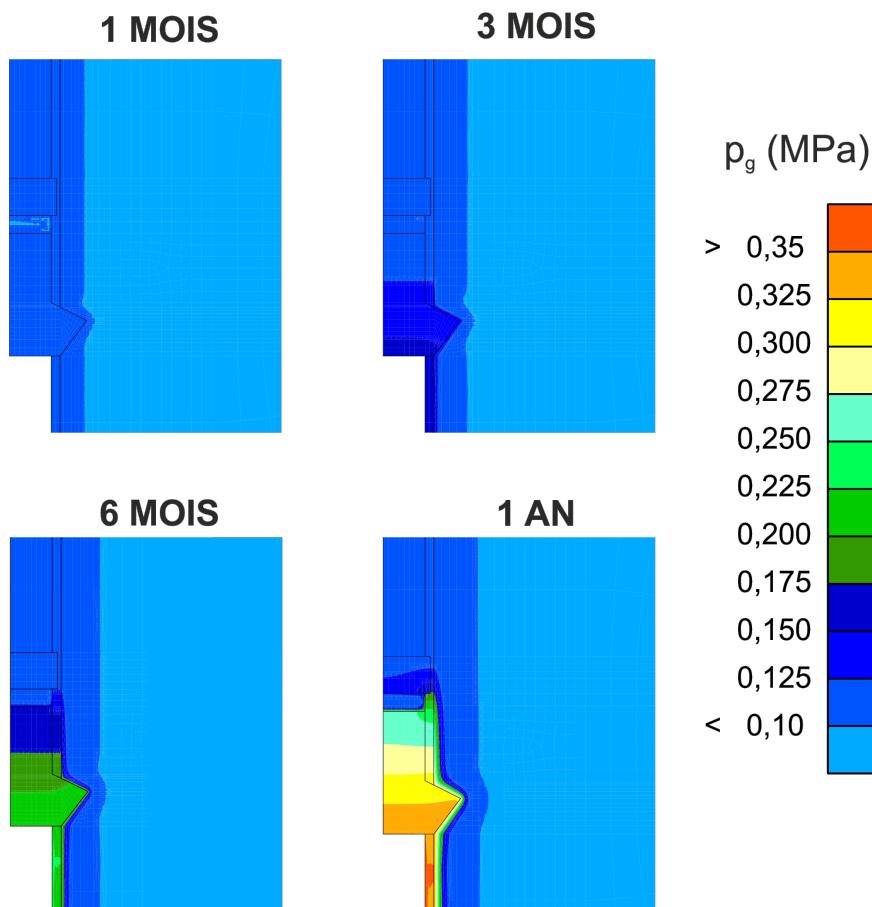


FIGURE 5.26 – Distribution des pressions de gaz autour du système de scellement pendant la première année d’injection

La distribution des pressions de gaz à long terme est présentée à la figure 5.27. Au fur et à mesure de la phase IV, le massif est drainé par les éléments de remplissage du puits faiblement saturés et voit sa saturation diminuer. Sa perméabilité au gaz devient donc plus importante, ce qui explique que les pressions de gaz imposées en paroi modifient progressivement la distribution des pressions dans le massif. La figure 5.28 présente l’évolution des profils de pression de gaz le long d’une coupe radiale à travers la plate-cuve d’étanchéité. On vérifie que les pressions de gaz dans le massif sont perturbées dans la zone la plus désaturée du schiste.

Par ailleurs, on remarque que la pression de gaz dans les remblais n’évolue quasiment pas au cours de l’injection (figure 5.27). Ceci peut-être expliqué d’une part, par la très grande perméabilité au gaz des remblais qui agissent comme un drain et, d’autre part, par la condition limite imposée à la frontière supérieure du modèle ($p_g = 0,1 MPa$). De plus, après 50 ans d’injection, la distribution des pressions de gaz dans le système de scellement du puits n’évolue plus (figure 5.27) ; l’écoulement de la phase gazeuse a atteint un régime permanent.

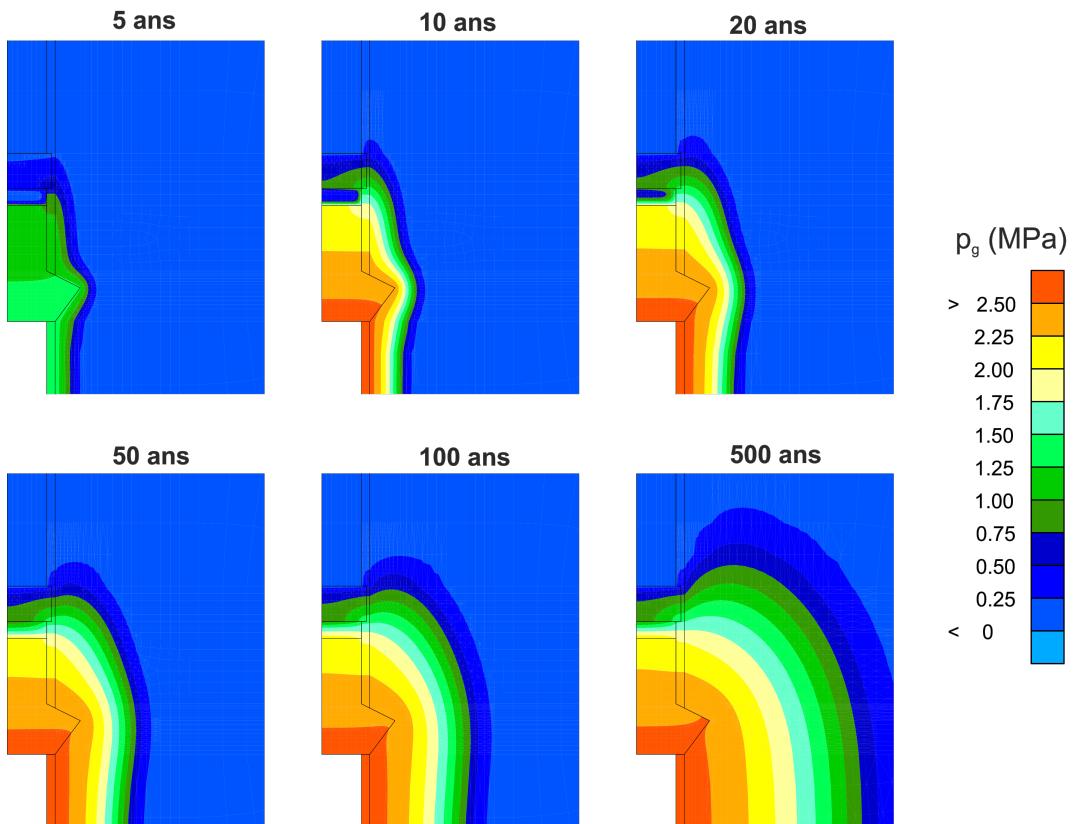


FIGURE 5.27 – Distribution des pressions de gaz autour du système de scellement à long terme

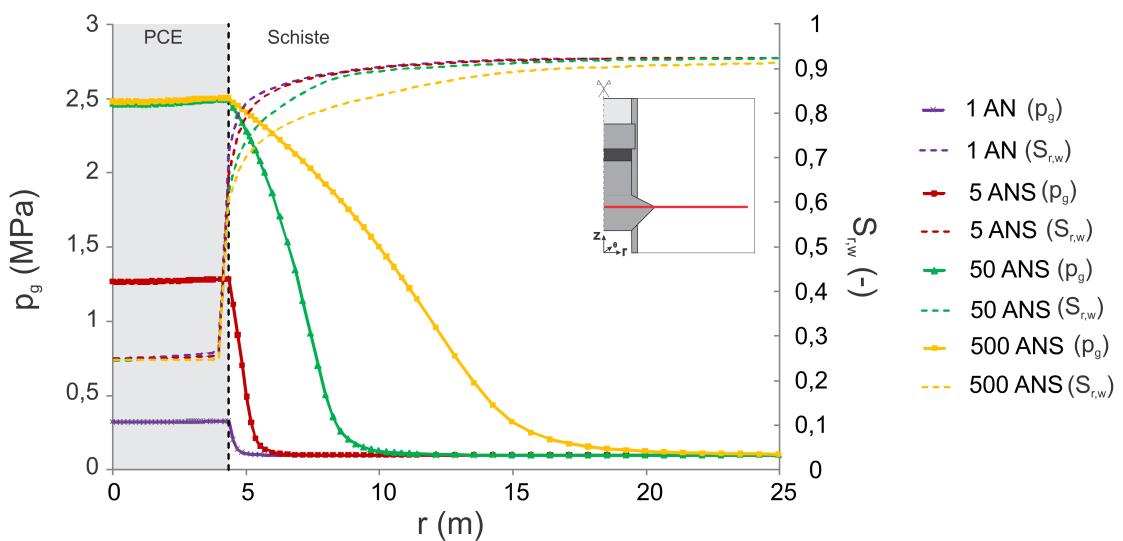


FIGURE 5.28 – Profil des pressions de gaz le long d'une coupe radiale à travers la plate-cuve d'étanchéité. Comparaison avec le degré de saturation

Finalement, le tableau 5.5 présente l'évolution des masses de CO₂ rejeté vers la biosphère à 50 mètres de profondeur. Une distinction est proposée en fonction du matériau à travers lequel le rejet s'effectue. On remarque ainsi que les remblais, par leurs grandes perméabilités, sont responsables de la *quasi*-totalité des flux de gaz sortants et que les contributions du soutènement et du schiste sont négligeables. Par ailleurs, on remarque qu'entre 50 et 100 ans, le volume de gaz rejeté double. Par contre, il est multiplié par moins de 5 entre 100 et 500 ans. Ceci peut être expliqué par une diminution du flux de gaz liée à l'augmentation de la saturation du remplissage du puits (alimenté par le massif) et à la diminution de la perméabilité au gaz qu'elle induit (figures 5.29(a) et 5.29(b)).

Temps	Remblais	Soutènement	Schiste
6 mois	4,34 kg	-	-
1 an	65 kg	-	-
5 ans	1,01.10 ⁴ kg	0,68 kg	-
10 ans	5,68.10 ⁴ kg	5,45 kg	0,78 kg
20 ans	1,48.10 ⁵ kg	13,82 kg	1,05 kg
50 ans	4,04.10 ⁵ kg	31,84 kg	1,66 kg
100 ans	8,09.10 ⁵ kg	53,39 kg	2,63 kg
500 ans	3,87.10 ⁶ kg	150,34 kg	9,64 kg

TABLE 5.5 – Masses de CO₂ rejeté par les différents matériaux à 50 mètres de profondeurs

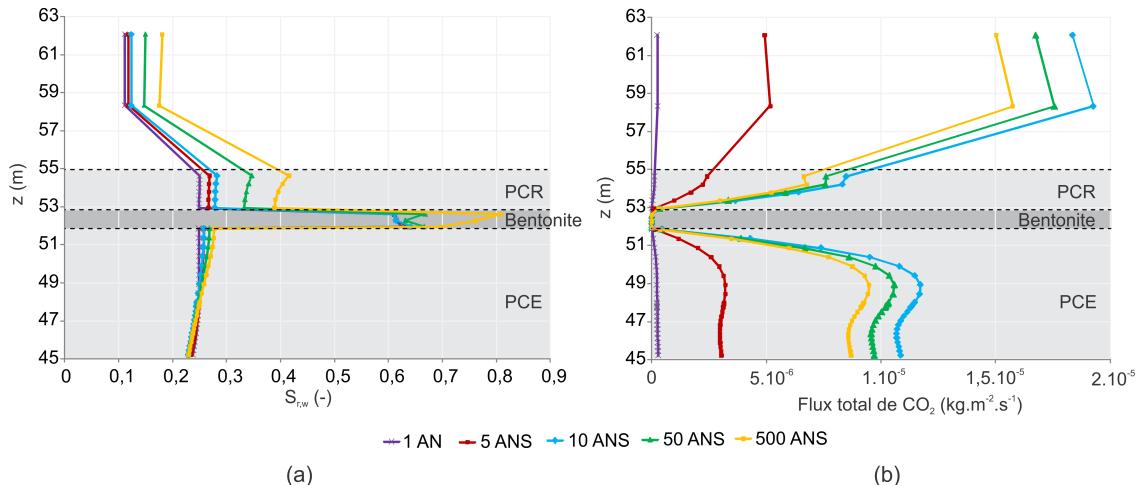


FIGURE 5.29 – Profil (a) de la saturation en eau et (b) du flux total de CO₂ le long d'une coupe axiale

5.6 Etude de l'influence du couplage hydro-mécanique

Afin d'étudier l'influence de la mécanique sur la distribution des pressions de gaz et les flux de CO₂ obtenus, une modélisation en écoulement pur est réalisée. Dans ce nouveau calcul, le milieu est considéré comme infiniment rigide et seuls les transferts biphasiques eau - CO₂ sont pris en compte.

La figure 5.30 présente l'évolution des profils de flux totaux de CO₂ le long de l'axe du puits obtenus avec une modélisation en écoulement pur. Pour faciliter la comparaison, les résultats de la première modélisation couplée hydro-mécanique sont superposés. On remarque que les profils de flux de CO₂ dans le système de scellement sont identiques dans les deux cas. Le faible couplage observé entre la mécanique et l'écoulement peut être expliqué par le recours à une loi élastique avec de grands modules de rigidité pour modéliser le comportement mécanique des matériaux de scellement (cf. tableau 5.2). Ainsi, les déformations des matériaux restent faibles et n'influencent pratiquement pas l'écoulement. Dans les remblais, l'influence de la mécanique est un peu plus marquée, bien qu'elle reste faible. Ceci résulte du faible module de Young des remblais.

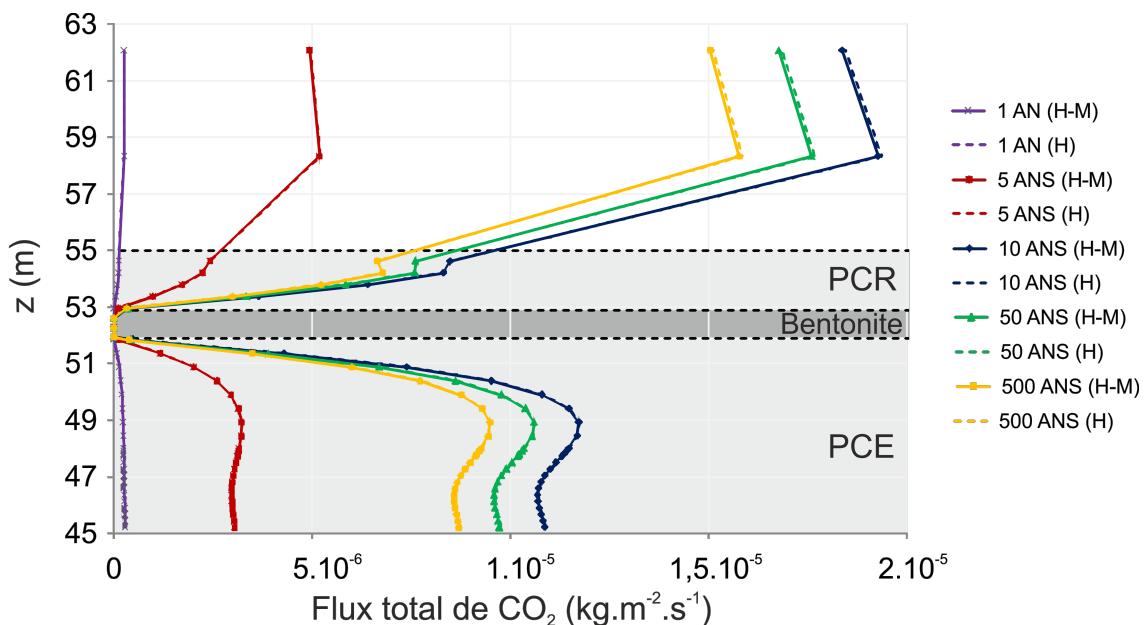


FIGURE 5.30 – Comparaison des profils de flux totaux de CO₂ le long de l'axe du puits obtenus avec une modélisation hydro-mécanique (H-M) et en écoulement pur (H)

5.7 Etude de sensibilité

Un calcul 2D axisymétrique couplé hydro-mécanique de l'injection de gaz dans une ancienne mine de charbon (non modélisée) a été présenté. Alors qu'une attention particulière a été accordée à l'utilisation dans notre modèle de propriétés hydromécaniques

réalistes pour des schistes houillers, d'importantes incertitudes subsistent quant aux valeurs utilisées. Dans cette section, l'influence des différents paramètres sur la performance du système d'étanchéité est analysée. L'objectif de cette étude de sensibilité est de mettre en avant les paramètres hydromécaniques dont la connaissance précise revêt d'un caractère primordial pour la fiabilité des prédictions du modèle.

Une série de nouvelles modélisations est ainsi réalisée afin de tester l'influence de l'état de saturation, des courbes de rétention et de perméabilité au gaz, de la perméabilité intrinsèque et du coefficient de Biot du schiste. Dans tous les cas cependant, les propriétés du schiste, pour autant qu'elles restent meilleures que celles du béton, n'influencent pas l'étanchéité globale du système. En effet, comme nous l'avons vu à la section 5.5.5, l'essentiel des transferts de CO₂ se fait à travers le système de scellement et les remblais du puits. Les distributions de pressions de gaz sont illustrées aux figures 5.31 à 5.34. L'influence de chaque paramètre a déjà été abordée au chapitre 4.

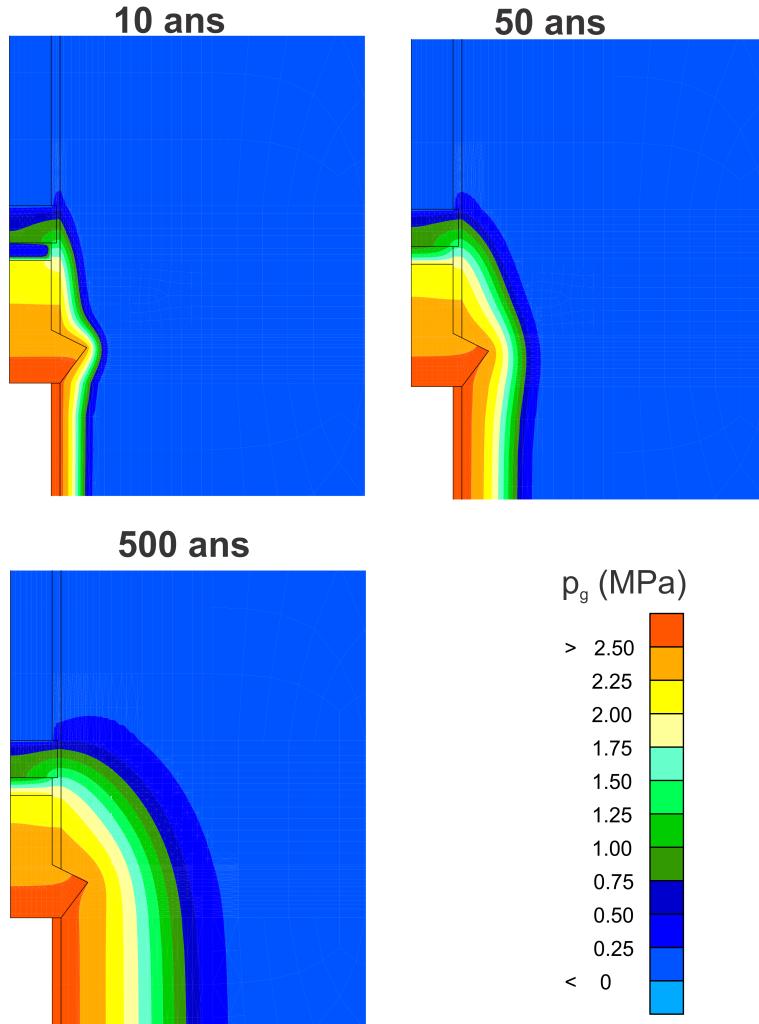


FIGURE 5.31 – Distribution des pressions de gaz : $P_r = 15 \text{ MPa}$

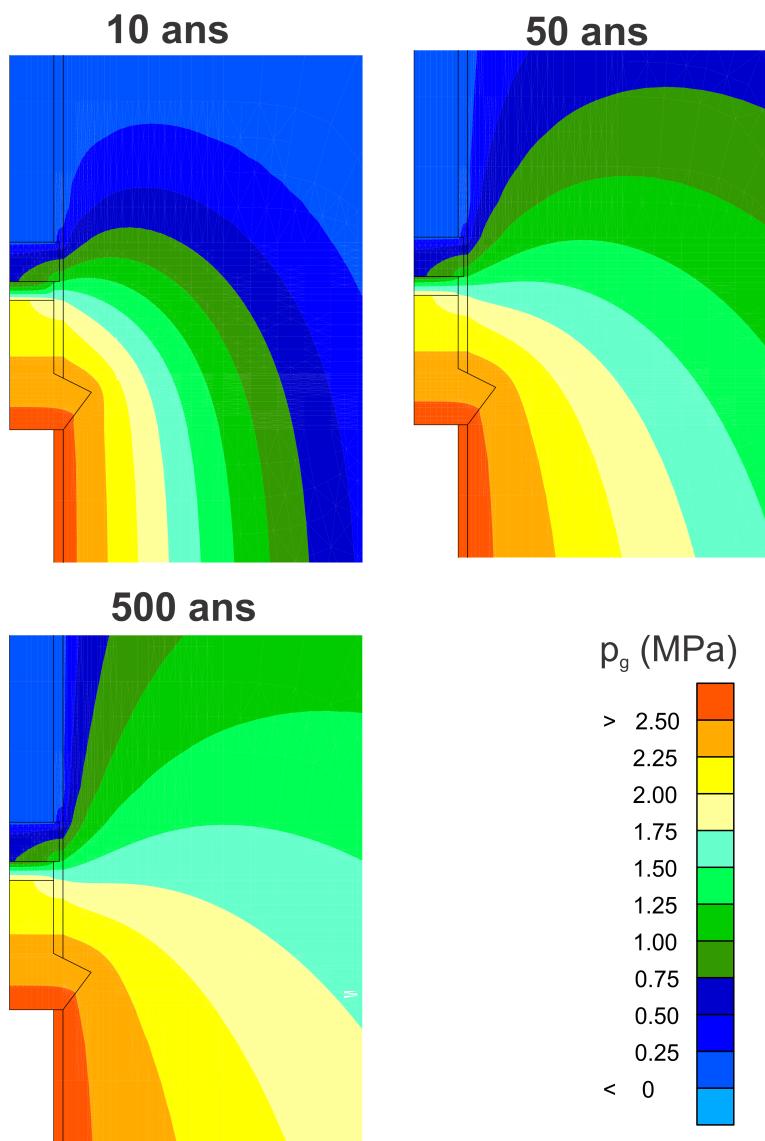


FIGURE 5.32 – Distribution des pressions de gaz : modèle de perméabilité relative au gaz de de Mualem

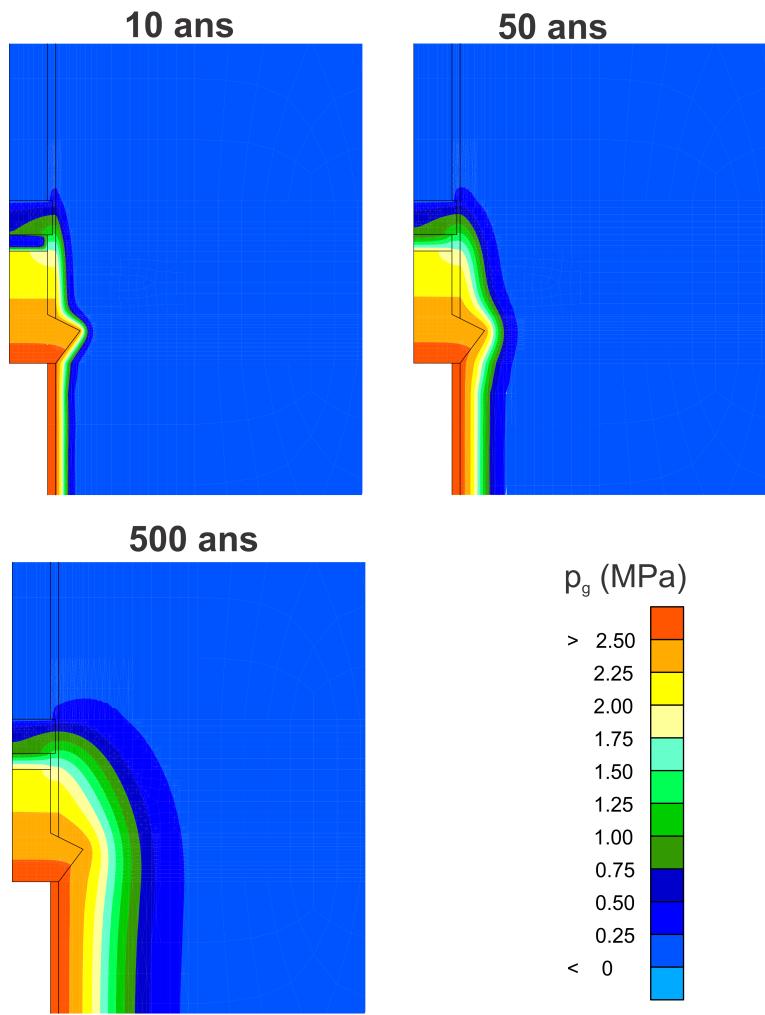


FIGURE 5.33 – Distribution des pressions de gaz : $K_{int}^{sat} = 2.10^{-20}$

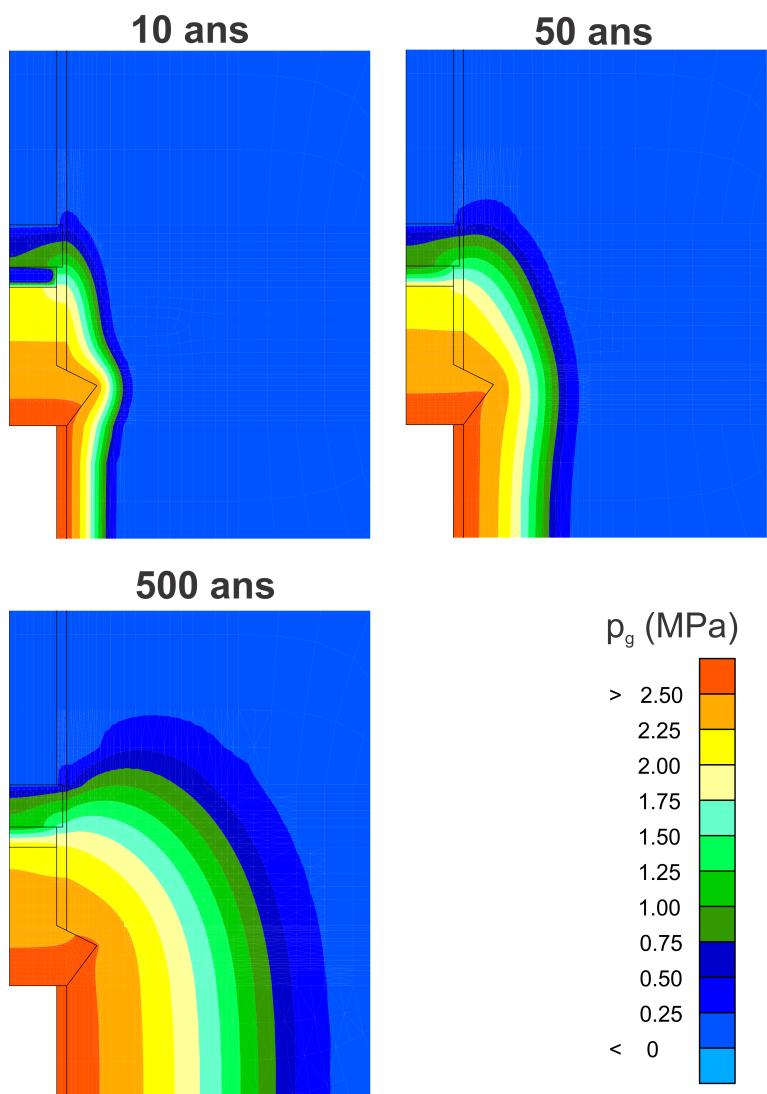


FIGURE 5.34 – Distribution des pressions de gaz : coefficient de Biot $b = 0,7$

5.8 Conclusions

Dans ce chapitre, une modélisation 2D axisymétrique du creusement d'un puits, de la mise en place d'un système de scellement et de l'injection de CO₂ a été réalisée en vue d'étudier l'étanchéité du système. La géométrie du problème s'est inspirée de l'ancien site de stockage de gaz naturel d'Anderlues et un effort particulier a été accordé à l'utilisation de valeurs réalistes des paramètres hydromécaniques des différents matériaux.

L'objectif de la modélisation des trois premières phases (creusement du puits, phase d'attente de 50 ans et mise en place du scellement) était de reproduire des états de contraintes mécaniques et de pressions d'eau dans le massif et le soutènement compatibles avec les conditions du site d'Anderlues avant l'injection de gaz dans la mine. Au terme de ces trois phases, il apparaît que les pressions d'eau dans le schiste sont perturbées sur une distance de moins de 10 mètres. A l'extrados du soutènement, la saturation du schiste est d'environ 60%, valeur à comparer avec la saturation initiale de la roche de 90%. La faible perméabilité du schiste explique certainement le rayon d'influence limité du drainage du massif par le puits. D'un point de vue mécanique, l'importante succion imposée par les 80% d'humidité relative en paroi, le module de Young élevé et la faible perméabilité du schiste limitent fortement la convergence du massif : en fin de creusement du puits, le déplacement radial en paroi est inférieur au demi centimètre.

Compte tenu des importantes pressions capillaires imposées initialement et des propriétés de rétention du béton, la saturation en eau du soutènement et des plates-cuves avant l'injection de gaz est faible (environ 25%). La pression d'entrée d'air élevée de la bentonite lui confère par contre une saturation plus élevée, de l'ordre de 60%. Dans ces conditions de saturation, le béton apparaît comme environ 3000 fois plus perméable au gaz que le schiste désaturé en paroi et 30.000 fois plus que le joint de bentonite !

Dans la phase IV du calcul, l'injection du gaz dans la mine a été modélisée par une augmentation des pressions de gaz en paroi du puits et à la base du système de scellement. Très vite, une modification de la distribution des pressions de gaz dans les éléments en béton est observée. En revanche, les pressions de gaz dans le schiste et la bentonite, moins perméables au gaz, ne varient que dans de faibles mesures.

Alors qu'au chapitre 4, le joint de bentonite était apparu comme une barrière d'étanchéité efficace pour limiter les flux de CO₂ vers la biosphère, l'architecture du système de scellement ne permet pas ici d'en tirer profit. En effet, dans la plate-cuve d'étanchéité, les flux de gaz se détournent de la bentonite pour passer dans le soutènement en béton. Ainsi, l'étude de sensibilité réalisée sur les propriétés hydromécaniques du schiste, entachées d'une forte incertitude, a montré que ces paramètres n'ont aucune influence sur les performances globales du système de scellement tel qu'il est conçu (pour autant que les propriétés hydromécaniques du massif soient meilleures que celles des matériaux de scellement du puits).

Chapitre 6

Conclusions et perspectives

L'objectif de ce travail était d'envisager la question de l'étanchéité des puits dans le cadre d'éventuels projets de stockage de CO₂ dans d'anciennes mines de charbon. Plus particulièrement, le problème a porté sur l'étude numérique des transferts de gaz autour du système de scellement d'un puits.

Dans un premier temps, une étude bibliographique du stockage de CO₂ dans d'anciennes mines de charbon a été réalisée. Il en ressort que peu d'auteurs ont investigué ce type de réservoir pour le stockage de CO₂. De part le monde, trois anciennes mines de charbon ont pourtant déjà été exploitées pour le stockage saisonnier de gaz naturel. Deux de ces mines sont situées en Belgique (à Péronne et Anderlues) et ont été exploitées par Fluxys entre 1980 et 2000. Ces expériences de stockage de gaz dans d'anciennes mines de charbon ont montré qu'un des enjeux majeurs concernait l'étanchéité des puits abandonnés.

L'outil numérique a été utilisé dans ce travail pour simuler les écoulements de gaz autour du système de scellement d'un puits. En effet, contrairement aux expériences de laboratoire, il permet de modéliser des phénomènes à grande échelle qui se produisent sur de longues périodes de temps, caractéristiques essentielles du stockage de CO₂.

Au chapitre 3, un modèle hydromécanique de géomatériaux partiellement saturés, utilisé pour nos futures modélisations, a ainsi été présenté. Le modèle d'écoulement considère la présence d'eau et de CO₂ dans chacune des phases liquide et gazeuse. Deux modes de transport sont considérés : l'advection de chaque phase et la diffusion de l'eau et du CO₂ au sein de ces phases.

Au chapitre 4, la réponse du modèle d'écoulement a été testée au travers d'un cas synthétique simple représentant l'injection à pression imposée de gaz dans une colonne en béton. Il en ressort que, dans les milieux poreux faiblement saturés, l'advection de la phase gazeuse représente le principal mécanisme de transfert du CO₂. L'influence de différents paramètres du modèle d'écoulement a ensuite été mise en évidence afin d'améliorer notre compréhension des concepts physiques décrits par les équations mathématiques du modèle.

Au chapitre 5, une modélisation hydro-mécanique 2D axisymétrique inspirée de l'ancien site de stockage de gaz naturel d'Anderlues a été réalisée. Afin de reproduire les états de contraintes mécaniques et de pressions d'eau dans le massif avant l'injection de CO₂ dans la mine, différentes étapes ont été considérées : le creusement du puits, une phase d'attente de 50 ans correspondant à l'exploitation minière et la mise en place d'un système de scellement du puits. L'efficacité de ce système a ensuite été testée en simulant l'injection à pression imposée de CO₂ à sa base et aux parois du puits. Les pressions de gaz ont ainsi été progressivement augmentées de 0,1 à 2,6 MPa en 10 ans avant d'être maintenues constantes. Il ressort de notre modélisation que la faible saturation du béton et sa perméabilité intrinsèque plus grande que celle du schiste lui confère une perméabilité au gaz supérieure à celle du massif. L'essentiel des flux de CO₂ passe donc par ce matériau. En outre, le joint hydraulique de bentonite, en contact avec le soutènement ne contribue pas à limiter les rejets de CO₂ vers la biosphère. En effet, les flux de CO₂ contournent la bentonite en passant par le soutènement en béton. Notons que cette observation justifie *a posteriori* le passage d'un modèle unidimensionnel tel qu'étudié au chapitre 4, à un modèle 2D capable de reproduire le contournement des flux de gaz. L'architecture du système de scellement tel qui a été conçu est donc à l'origine d'un manque d'efficacité concernant l'étanchéité du puits. En effet, de manière plus idéale, le joint de bentonite devrait être posé directement en contact avec le massif. Cette configuration n'a pas été testée dans le cadre de ce mémoire mais pourrait être étudiée dans un futur travail.

Par ailleurs, l'écoulement de CO₂ vers la surface ayant lieu préférentiellement à travers les matériaux de remplissage du puits, l'état de saturation du massif avant injection et les propriétés hydromécaniques du schiste, pour autant qu'elles restent meilleures que celles du béton, se sont avérées être sans influence sur les résultats globaux du calcul. La dégradation importante des paramètres hydromécaniques du massif n'a pas été étudiée dans le présent travail. Elle pourrait également être examinée à l'avenir afin d'analyser les modifications en termes de vecteurs de transfert du gaz et de performance du système d'étanchéité du puits qu'elle entraînerait.

En outre, le calcul réalisé a montré que, pendant la première année d'injection, les masses de CO₂ rejeté vers la biosphère sont relativement faibles (environ 65 kg). Bien que cette prédiction soit *a priori* encourageante, elle doit être relativisée par la très lente montée en pression du réservoir modélisé. Endéans 500 ans, moins de 4000 tonnes de CO₂ ont été relachées dans l'environnement. A titre de comparaison, la production annuelle de CO₂ des industries belges les plus émettrices peut atteindre plusieurs millions de tonnes (Piessens & Dusar, 2004). Dans le scénario décrit par notre modèle, les fuites de CO₂ à travers un puits sont donc très faibles.

Il importe cependant d'être prudent vis-à-vis de conclusions trop hâtives concernant la faisabilité et la viabilité d'un éventuel projet de stockage de CO₂ dans d'anciennes mines de charbon. Différentes hypothèses simplificatrices dont il faut être conscient ont en effet été émises.

Tout d'abord, le problème a été étudié en conditions d'axisymétrie. Aucune anisotropie

n'a donc pu être prise en compte. Cependant, il semble légitime de supposer que le massif de schiste, ayant subi une histoire tectonique complexe, possède un état de contraintes anisotrope. Dans ce cas, le déviateur des contraintes avant creusement du puits ne serait pas nul et lors du creusement, le massif entrerait plus rapidement en plasticité. Or, l'entrée en plasticité du massif crée une zone endommagée plastique autour de la galerie. L'introduction d'une loi couplée hydro-mécanique prenant en compte des variations de perméabilité et de courbe de rétention en fonction de la déformation permettrait alors de modéliser la dégradation des propriétés hydromécaniques autour du puits.

Par ailleurs, afin de simuler l'injection de CO₂ dans la mine, la pression de gaz en paroi a été augmentée jusqu'à 2,6 MPa, ce qui correspond à 2,6 fois la pression hydrostatique à 100 mètres de profondeurs. Il serait donc intéressant d'analyser le risque d'hydrofracturation des différents matériaux à cette pression. En outre, notre étude s'est focalisée autour des anciens puits. Cependant, le réservoir dans sa globalité doit être étudié. En particulier, le risque de mouvement de failles ou de fractures provoquées par l'exploitation minière soumises à des pressions élevées doit être étudié.

De plus, les propriétés hydromécaniques des différents matériaux ont été supposées constantes dans le temps. Aucun couplage hydro-mécano-chimique n'a été pris en compte, que ce soit pour les bétons dont le ciment peut subir des phénomènes de carbonatation ou pour les schistes qui s'altèrent en contact avec l'eau et l'air.

Finalement, malgré les différentes hypothèses posées, notre modèle a permis d'appréhender la problématique de l'étanchéité des puits de manière satisfaisante et a mis en évidence les différents mécanismes de transfert du CO₂ dans les matériaux poreux. Bien que le présent travail ait été centré autour de la thématique « stockage géologique de CO₂ », il s'est inscrit dans un contexte plus général : celui de l'étude des transferts de gaz dans des milieux poreux partiellement saturés. Notre étude trouve ainsi de nombreuses autres applications, que ce soit en géomécanique, en hydrogéologie, en agronomie ou encore en ingénierie des réservoirs.

Références

- Abou Akar A. et al.. 2005. *Stockage géologique de CO₂ : Analyse des risques, surveillance et mesures*. Rapport final. BRGM, RP-53830-FR, 108 p.
- Alonso E.E., Olivella S. & Arnedo D. 2006. Mechanisms of gas transport in clay barriers. *Journal of Iberian Geology* 32(2), 175 - 196.
- Benge G. 2009. Improving wellbore seal integrity in CO₂ injection wells. *Energy Procedia* 1(1), 3523 - 3529.
- Benson S. & Cook P. 2005. Underground geological storage. In : Metz B., Davidson O., de Coninck H., Loos M. & Meyer L. *IPCC Special Report on Carbon Dioxide Capture and Storage*. New-York, Cambridge University Press, 195 - 276.
- Boulvain F. 2011a. *Eléments de sédimentologie et de pétrologie sédimentaire*. Notes de cours, Liège, Université de Liège. 164 p.
- Boulvain F. 2011b. *Une introduction à la géologie de la Wallonie*. Notes de cours, Liège, Université de Liège. 170 p.
- Briart A. 1899. *Carte géologique n°152 Binche - Morlanwez*. 1 : 40.000.
- British Geological Survey (BGS). 2008. *An appraisal of underground gas storage technologies and incidents, for the development of risk assessment methodology*. BGS, Health and safety executive, Nottingham, Royaume-Uni, 350 p.
- Charlier R. 2010. *Modélisation du comportement des géomatériaux*. Notes de cours, Liège, Université de Liège, 72 p.
- Chen Y.F., Zhou C.B. & Sheng Y. 2007. Formulation of strain dependant hydraulic conductivity for fractured rock mass. *International Journal of Rock Mechanics & Mining Sciences* 44(7), 981 – 996.
- Collin F. 2003. Couplages thermo-hydro-mécaniques dans les sols et les roches tendres partiellement saturés. Thèse de doctorat, Liège, Université de Liège, 300 p.

Cooperative Research Centre for Greenhouse Gas Technologies (CO2CRC). 2008. *Storage capacity estimation, site selection and characterisation for CO₂ storage projects.* CO2CRC, Canberra, Australie, 52 p.

Delage P. & Cui Y.J. 2000. L'eau dans les sols non saturés. *Techniques de l'ingénieur* C301, 20 p.

Kühn *et al.*. 2006. *CO₂Trap - Development and evaluation of innovative strategies for mineral and physical trapping of CO₂ in geological formations and of long-term cap rock integrity.* Rapport intermédiaire. RWTH Aachen, Allemagne. 70 p.

Environmental Protection Agency (EPA). 1998. *Technical and economic assessment of coalbed methane storage in abandoned mine workings.* EPA, Coalbed methane outreach program, Atmospheric pollution prevention division, Washington D.C., USA. 48 p.

Foucault, A. & Raoult J.-F. 1988. *Dictionnaire de géologie.* 3e édition. Paris, Dunod, 352 p.

Gawin D. & Schrefler B.A. 1996. Thermo-hydro-mechanical analysis of partially saturated porous materials. *Engineering Computations* 13(7), 113 - 143.

Gerard P. 2011. Impact des transferts de gaz sur le comportement poro-mécanique des matériaux argileux. Thèse de doctorat, Liège, Université de Liège, 285 p.

Gerard P., Charlier R., Barnichon J.-D., Su K., Shao J.-F., Duveau G., Giot R., Chavant C. & Collin F. 2008. Numerical modelling of coupled mechanics and gas transfer around radioactive waste in long-term storage. *Journal of Theoretical and Applied Mechanics* 8 (1-2), 25 - 44.

Ghiste S. 1990. *Carte géotechnique 46.7.5 à 8 Charleroi. Secteur : Fontaine-L'Eveque - Marchienne au Pont.* Imprimerie du Ministère des Travaux Publics. 9 plans, 52 p.

Gombert P. 2010. *Etat des connaissances sur les risques liés au stockage géologique du CO₂. Rapport n°1 : les risques en phase d'injection.* INERIS, Direction des risques du sol et du sous-sol, rapport d'étude DRS-08-95145-11842B, 135 p.

Grim R.E. 1968. *Clay mineralogy.* 2e édition. New-York, McGraw-Hill, 596 p.

Groupe d'experts Intergouvernemental sur l'Evolution du Climat (GIEC). 2007. *Bilan 2007 des changements climatiques - Rapport de synthèse.* GIEC, Genève, Suisse, 103 p.

Groupement belge du béton. 2006. *Technologie du béton.* 4e édition. Bruxelles, Groupement belge du béton, 605 p.

Houtrelle S. 1999. Stockage de gaz naturel en mine de charbon abandonnée. Approche géologique du site d'Anderlues. Mémoire de fin d'études, Mons, Faculté Polytechnique de

Mons, 50 p.

Jalili P., Saydam S. & Cinar Y. 2011. CO₂ storage in abandoned coal mines. In : Proceedings, 2011 Underground coal operator's conference, Wollongong, University of Wollongong, 355 - 360.

Karacan C.O. 2007. Swelling-induced volumetric strains internal to a stressed coal associated with CO₂ sorption. *International Journal of Coal Geology* 72(3-4), 209 - 220.

Kempka T., Waschbüsch M., Fernandez-Steeger T.M. & Azzam, R. 2006. Sorptive storage of CO₂ on coal dust and flotation waste from coal processing in abandoned coal mines. In : van Coethem A., Charlier R., Thimus J.F., Tshibangu J.P. (Eds.) *EUROCK 2006 - Multiphysics Coupling and Long Term Behaviour in Rock Mechanics*. Liège, 9-11 mai 2006, 69 - 74.

Levasseur S., Charlier R., Frieg B. & Collin F. 2010. Hydro-mechanical modelling of the excavation damaged zone around an underground excavation at Mont Terri Rock Laboratory. *International Journal of Rock Mechanics & Mining Sciences* 47(3), 414 - 425.

Lutynski M. 2010. A concept of Enhanced Methane Recovery by high pressure CO₂ storage in abandoned coal mine. *Gospodarka Surowcami Mineralnymi* 26(1), 93 - 104.

METSTOR. 2010. *Captage et stockage du CO₂ - Le stockage en veines de charbon*. BRGM, Orléans, France, <http://www.metstor.fr>. Consulté le 20 mai 2011.

Mualem Y. 1976. A new model for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated porous media. *Water Resources Research* 12(3), 513 - 522.

Navarro V., Yustres A., Cea L., Candel M., Juncosa R. & Delgado J. 2005. Characterization of the water flow through concrete based on parameter estimation from infiltration tests. *Cement and Concrete Research* 36(9), 1575 - 1582.

Nulens K., van Coethem A., Grégoire N. & Wergifosse J. 2003. Remblayage de puits de mine. Puits Ste Marguerite I - Péronnes-lès-Binche. *Tunnels et Ouvrages Souterrains* 180, 368 - 372.

Olivella S. & Alonso E.E. 2008. Gas flow through clay barriers. *Géotechnique* 58(3), 157 - 168.

Olivella S., Carrera J., Gens A. & Alonso E.E. 1994. Non isothermal multiphase flow of brine and gas through saline media. *Transport in Porous Media* 15(3), 271 - 293.

Ollivier J.P. & Vichot A. *La durabilité des bétons*. 2e édition. Paris, Presse de l'Ecole Nationale des Ponts et Chaussées, Association technique de l'industrie des liants hydrauliques, 453 p.

Pan Z. & Connell L.D. 2007. A theoretical model for gas adsorption-induced coal swelling. *International Journal of Coal Geology* 69(4), 243 - 252.

Panday S. & Corapcioglu M.Y. 1989. Reservoir transport equations by compositional approach. *Transport in Porous Media* 4, 369 - 393.

Panet M. 1976. Analyse de la stabilité d'un tunnel creusé dans un massif rocheux en tenant compte du comportement après la rupture. *Rock Mechanics* 8, 209 - 223.

Piessens K. & Dusar M. 2003. CO₂ - sequestration in abandoned coal mines. In : Proceedings, International Coalbed Methane Symposium, Tuscaloosa, Alabama, USA, paper 0346, 11 p.

Piessens K. & Dusar M. 2004. Feasibility of CO₂ sequestration in abandoned coal mines in Belgium. *Geologica Belgica* 7(3-4), 165 - 180.

Piessens K. et al. 2008. *Policy support system for carbon capture and storage - « PSS - CCS »*. Rapport final. Phase 1. Belgian Science Policy, Bruxelles, Belgique, 268 p.

Pollock D.W. 1986. Simulation of fluid flow and energy transport processes associated with high-level radioactive waste disposal in unsaturated alluvium. *Water Resources Research* 22(5), 765 - 775.

Ramos da Silva M., Schroeder C. & Verbrugge J.-C. 2008. Unsaturated rock mechanics applied to a low-porosity shale. *Engineering Geology* 97 (1-2), 42 - 52

Roland S. & Bastien J. 2010. *Carte hydrogéologique de Wallonie, Binche - Morlanwez 46/5-6. 1 : 25.000*. Namur, Ministère de la Région wallonne, Direction générale des ressources naturelles et de l'environnement. [non publié]

Romanov V.N., Ackman T.E., Soong Y. & R.L. Kleinman. 2009. CO₂ storage in shallow underground and surface coal mines : challenges and opportunities. *Environmental Science and Technology* 43(3), 561 - 564.

Schultz K. 1998. *Gas storage at the abandoned Leyden coal mine near Denver, Colorado*. EPA-report, contrat 68-W5-0018, préparé par Raven Ridge Resources Inc., 12 p.

Shi J.Q. & Durucan S. 2005. CO₂ storage in deep unminable coal seams. *Oil & Gas Sciences and Technology - Revue IFP* 60(3), 547 - 558.

Tang A.M. 2005. Effet de la température sur le comportement des barrières de confinement. Thèse de doctorat, Paris, Ecole Nationale des Ponts et Chaussées, 207 p.

Thambimuthu K., Soltanieth M. & Abanades J.C. 2005. Capture of CO₂. In : Metz B.,

Davidson O., de Coninck H., Loos M. & Meyer L. *IPCC Special Report on Carbon Dioxide Capture and Storage*. New-York, Cambridge University Press, 105 - 178.

Total. 2011. *Le captage et stockage géologique de CO₂*. <http://www.total.com>. Consulté le 20 mai 2011.

Vandeloise R. 1969. Le captage du grisou des vieux travaux à la S.A. des houillères d'Andrelles. *Industrie Nationale des Industries Extractives - Bulletin technique « mines et carrières »* 119, 35 p.

Van Genuchten M.T. 1980. A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils. *Soil Science Society of America Journal* 44, 892 - 898.

Van Tongeren P. & Dreesen R. 2004. Residual space volumes in abandoned coal miens of the Belgian Campine Basin and possibilities for use. *Geologica Belgica* 7(3 - 4), 157 - 164.

Zhang H., Liu J. & Elsworth D. 2008. How sorption-induced matrix deformation affects gas flow in coal seams : a new FE model. *International Journal of Rock Mechanics & Mining Sciences* 45(8), 1226 - 1236.