

# STOCKAGE GEOLOGIQUE DU DIOXYDE DE CARBONE ( $CO_2$ )

1

Numéro du candidat:17493

# Objectifs

2

- Faire une modélisation physique du phénomène de diffusion du  $CO_2$  dans la roche réservoir
- Résolution analytique et numérique des équations avec Python
- Montrer l'importance de la diffusion dans la capacité de stockage du réservoir géologique
- Etudier l'impact de la diffusion de  $CO_2$  sur les roches du réservoir géologique

# Plan

3

## Introduction

- I. Mise en évidence et explication du phénomène
- II. Modélisation physique du phénomène
- III. Résolution des équations
- IV. L'impact de la diffusion du  $CO_2$  sur les roches du réservoir géologique

## Conclusion

Notations:

(i):représente la source i dans l'annexe de l'image  
[lettre]:représente le code source dans l'annexe de la figure  
ou une preuve



# Introduction

4

La fonte des  
glaciers[6]



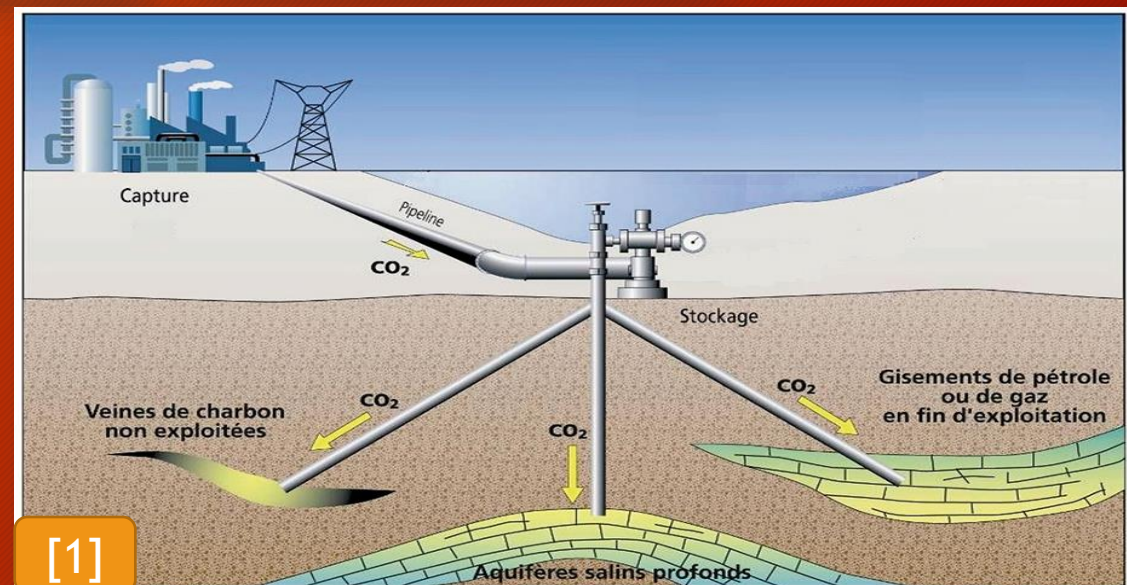
La sécheresse[7]



Ce qui a pour  
conséquence le  
réchauffement  
climatique avec:

La  
solution: ***Le  
captage et  
stockage  
géologique  
du CO<sub>2</sub>***

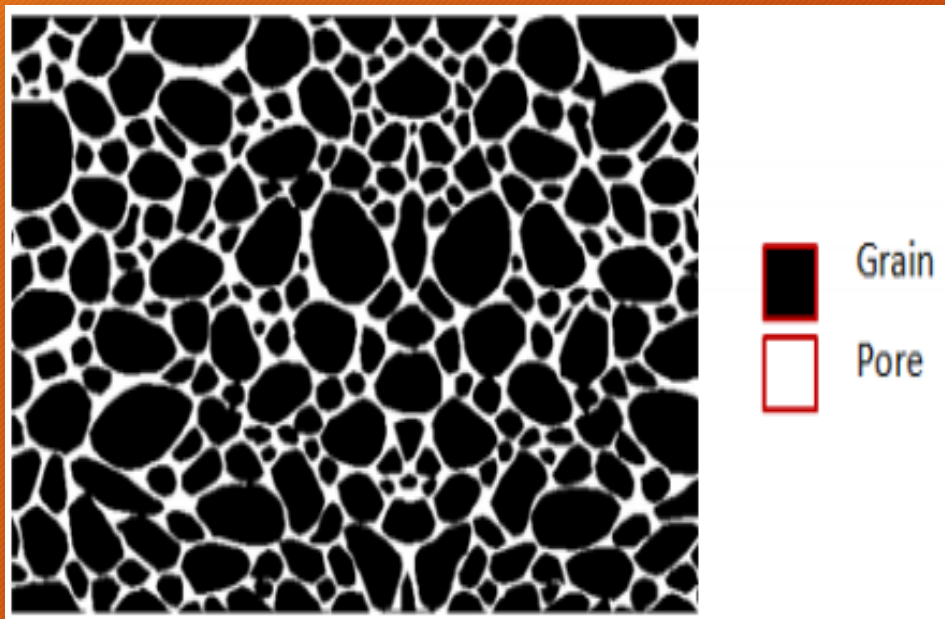
Du CO<sub>2</sub>  
directement  
rejeté dans  
l'air[8]



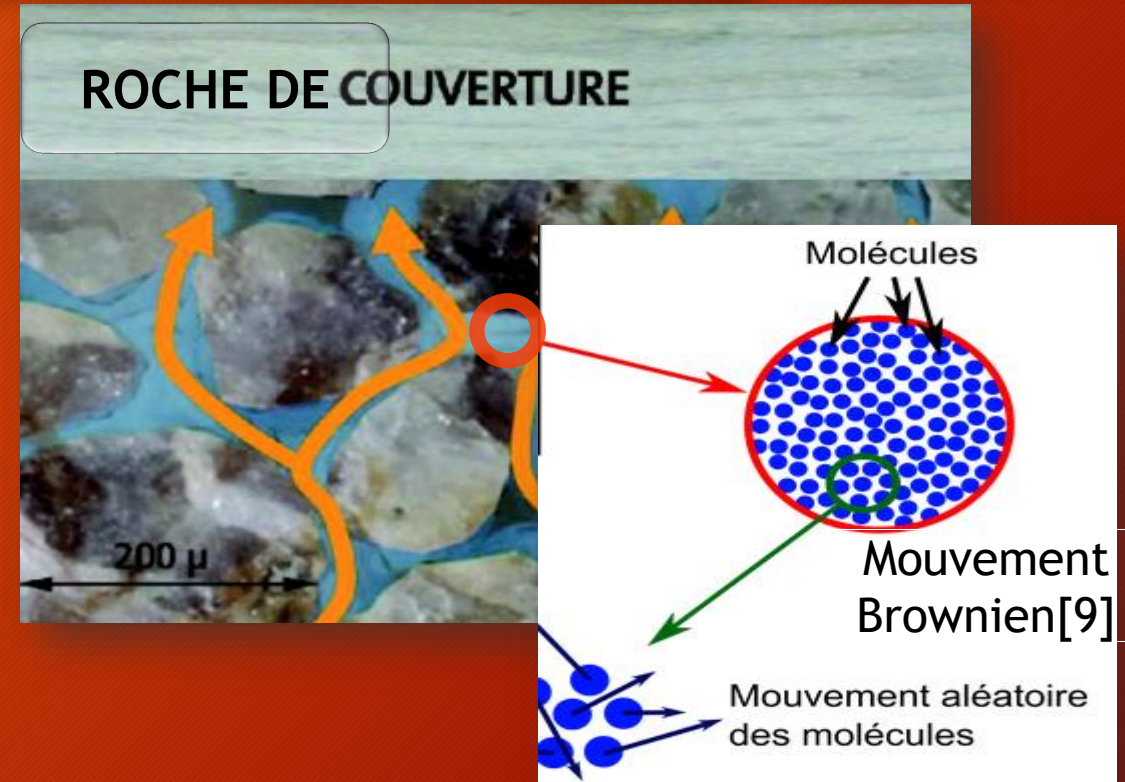


# I-Mise en évidence et explication du phénomène de diffusion

5



Structure de la roche réservoir [3]



Le  $CO_2$  dans les pores roche réservoir[2]

# II-Modélisation du phénomène

6

Le phénomène du diffusion du  $CO_2$  (aqueux) est décrit par la loi de FICK (Première loi)

$$\vec{j} = -D_e \cdot \overrightarrow{grad}(c)$$

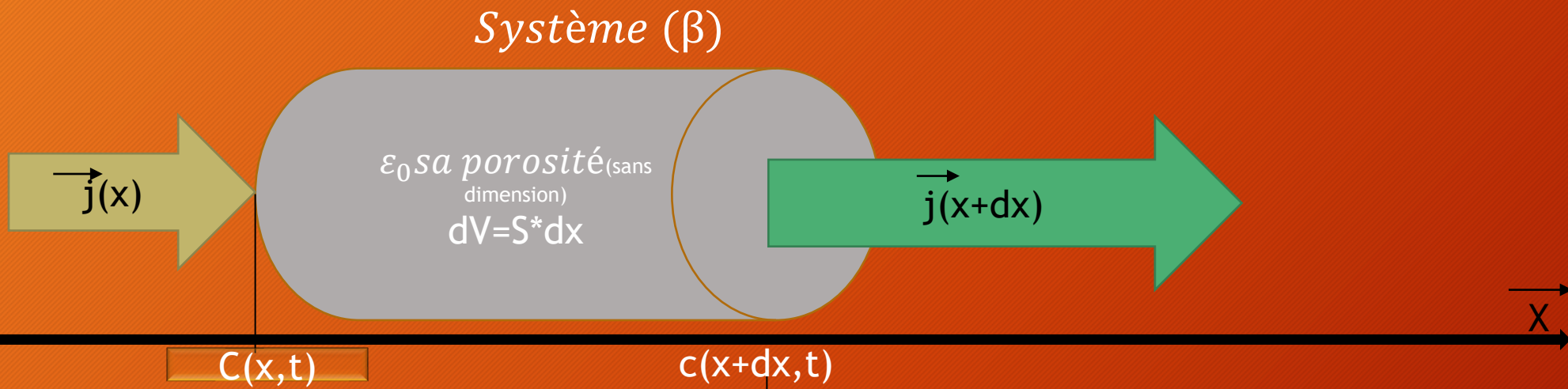
- $D_e$  : le coefficient de diffusion effectif ( $s^{-1}m^2$ )
- $j$  : la densité de flux molaire du  $CO_2$  ( $mol.m^{-2}.s^{-1}$ )
- $c$  : sa concentration molaire ( $mol.m^{-3}$ )

Type de roche	Méthode utilisée	Espèce diffusante	Coefficient de diffusion effectif ( $m^2.s^{-1}$ )
Argiles de Mol	Pulse-test	HTO	$8,50 \times 10^{-11}$
Calcaires de Charmottes	RMN	$D_2O$	8,0 à $9,8 \times 10^{-12}$
Argilite de Muderong	Diffusion au travers	$CO_2$ dissous	$3,08 \times 10^{-11}$
Argilites de Bure	Diffusion au travers	HTO	1,8 à $2,4 \times 10^{-11}$
Argiles à Opalinus	Diffusion au travers	HTO	5,6 à $6,7 \times 10^{-12}$
Grès d'Emscher	Diffusion au travers	$CO_2$ dissous	$7,80 \times 10^{-11}$

Des ordres de grandeur de  $D_e$  [5]



# ❖ Equation de diffusion



Notons  $n(x,t)$  le nombre de mole à l'instant  $t$  et à la position  $x$

$$dn(x,t) = c(x,t) \cdot dV = S \cdot c(x,t) \cdot dx$$

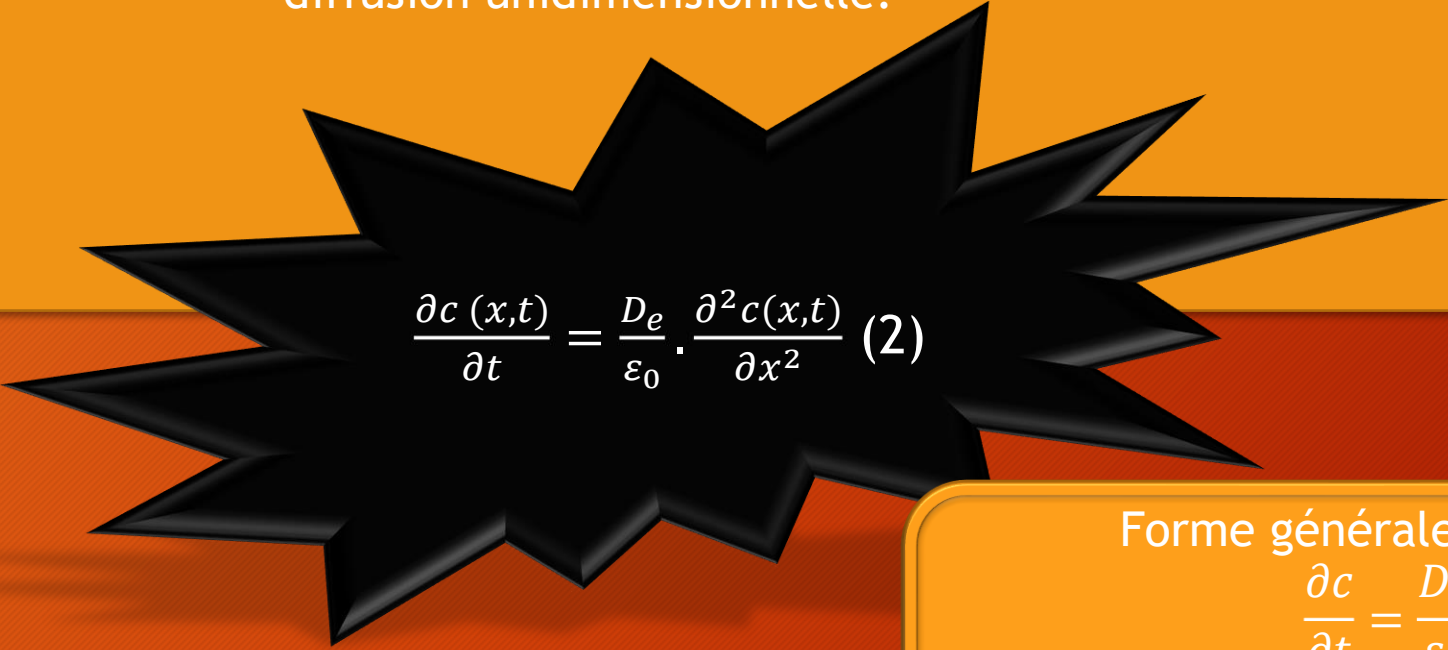
Par ailleurs,  $\epsilon_0 \cdot \frac{\partial n(x,t)}{\partial t} = \iint j \cdot dS$  (par analogie avec avec  $I = \frac{\partial q}{\partial t} = \iint j_{\text{electrique}} \cdot dS$ )

Ainsi en faisant un bilan sur  $n(x,t)$  et en remplaçant  $n$  par son expression on obtient successivement:

$$\epsilon_0 \cdot \frac{\partial n(x,t)}{\partial t} = S(j(x,t) - j(x+dx,t))$$

$$\frac{\partial c(x,t)}{\partial t} = - \frac{\partial j(x,t)}{\epsilon_0 \cdot \partial x} \quad (1)$$

En remplaçant  $j$ (loi de Fick) par son expression dans (1), on a donc l'équation de diffusion unidimensionnelle:


$$\frac{\partial c(x,t)}{\partial t} = \frac{D_e}{\varepsilon_0} \cdot \frac{\partial^2 c(x,t)}{\partial x^2} \quad (2)$$

Forme générale (2<sup>ème</sup> Loi de Fick ):

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \frac{D_e}{\varepsilon_0} \cdot \Delta(c) + \sigma$$

$\sigma$  : un terme de source



# III-Résolution des équations

9

## ❖ Résolution avec la transformation de Fourier pour le cas unidimensionnel

- **Hypothèse** :  $D_e$  et  $\varepsilon_0$  sont des constantes
- **Définition** : la Transformation de Fourier (TF) d'une fonction  $f$  est:

$$F(k) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(x) e^{-i2\pi kx} dx$$

Et la transformation inverse de Fourier ( $TF^{-1}$ ) de  $F$  est:

$$f(x) = \int_{-\infty}^{+\infty} F(k) e^{i2\pi kx} dk$$

- **Résolution** : On applique la TF à (2):

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\partial c(x,t)}{\partial t} e^{-i2\pi kx} dx = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{D_e}{\varepsilon_0} \cdot \frac{\partial^2 c(x,t)}{\partial x^2} e^{-i2\pi kx} dx$$

Voir annexe (D)

$$\frac{\partial C(k,t)}{\partial t} = -4\pi^2 k^2 \frac{D_e}{\varepsilon_0} \cdot C(k,t) \quad (3)$$

$$(3) \quad C(k, \tau) = A(k). e^{-4\pi^2 k^2 \frac{D_e t}{\varepsilon_0}}$$

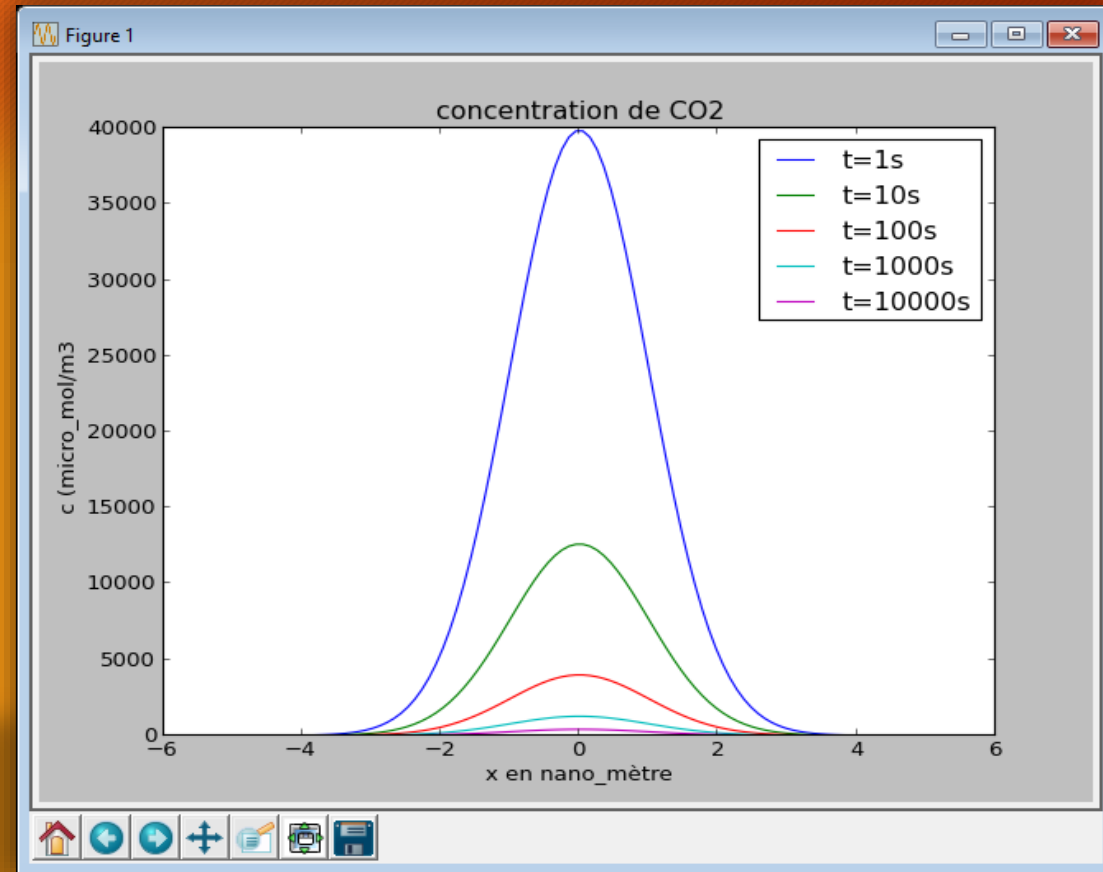
pour trouver  $A(k)=C(k,0)$ , on prend par exemple une condition initiale une

gaussienne  $c(x, 0) = c_0 e^{-\frac{x^2}{2}}$ , Alors

$$C(k, t) = C(k, 0). e^{-k^2 \frac{D_e t}{\varepsilon_0}} \quad (4)$$

où en appliquant  $TF^{-1}$  à (4), on obtient:

$$c(x, t) = c_0 \frac{e^{-\left(\frac{\varepsilon_0}{4D_e t}\right)x^2}}{2\sqrt{\pi \frac{D_e t}{\varepsilon_0}}}$$



10

Voir  
annexe  
(A)

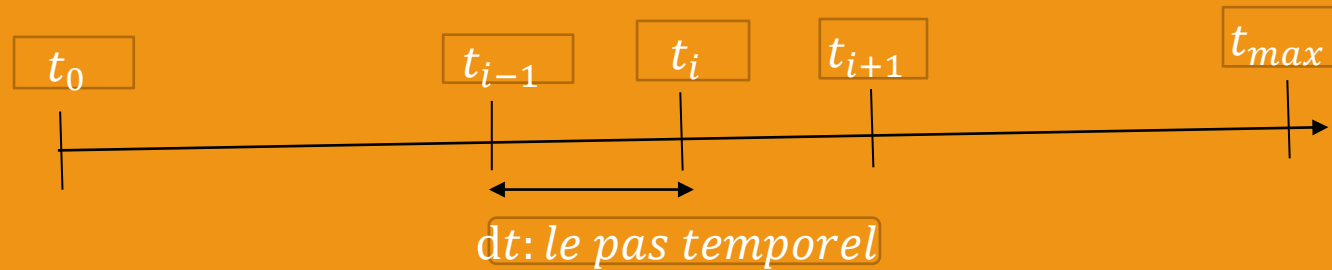
*Conclusion partielle:* La concentration tend à être uniforme au cour du temps



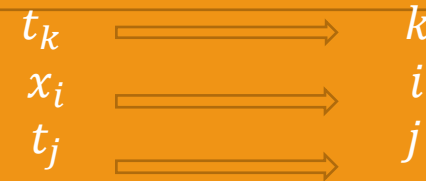
❖ Résolution numérique en 2D  
En 2D, la 2<sup>ème</sup> loi de Fick devient:

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \frac{D_e}{\varepsilon_0} \left( \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 c}{\partial y^2} \right) + \sigma \quad (5)$$

- Discrétisation:



On fait de même pour x et y .On notera pour simplifier:



$dt \ll 1$  ,  $dx \ll 1$  ,  $dy \ll 1$ ; d'où en appliquant de Taylor , on obtient:

$$\text{➤ } c(i, j, k + 1) = c(i, j, k + dt) \approx c(i, j, k) + dt \frac{\partial c}{\partial t} \quad (1')$$

$$\text{➤ } c(i + 1, j, k) = c(i + dx, j, k) \approx c(i, j, k) + dx \frac{\partial c}{\partial x} + dx^2 \cdot \frac{\partial^2 c}{2\partial x^2} \quad (2')$$

$$\text{➤ } c(i - 1, j, k) = c(i - dx, j, k) \approx c(i, j, k) - dx \frac{\partial c}{\partial x} + dx^2 \cdot \frac{\partial^2 c}{2\partial x^2} \quad (3')$$

En sommant (2') et (3');on obtient:

$$\frac{\partial^2 c}{\partial x^2} \approx \frac{c(i + 1, j, k) + c(i - 1, j, k) - 2c(i, j, k)}{dx^2} \quad (4')$$

De même selon y on a:

$$\frac{\partial^2 c}{\partial y^2} \approx \frac{c(i, j + 1, k) + c(i, j - 1, k) - 2c(i, j, k)}{dy^2} \quad (5')$$



En combinant les équations  
(5),(1'),(4') et (5') on obtient donc:

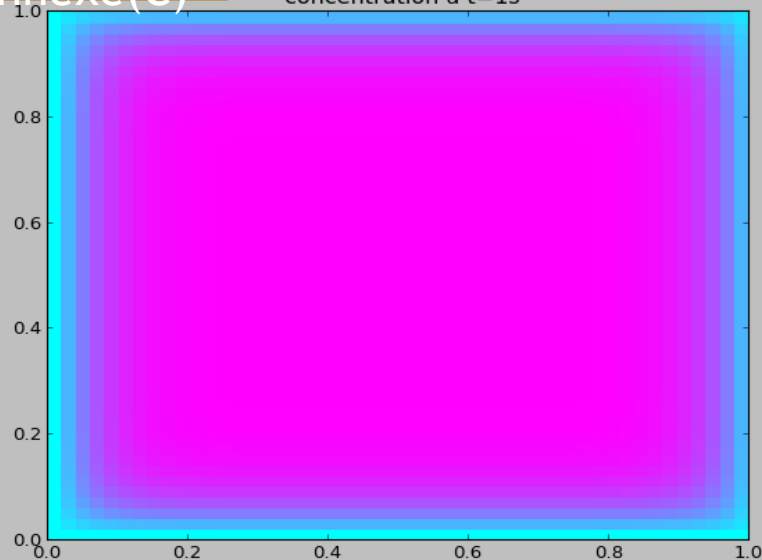
13

$$c(i, j, k + 1) \approx c(i, j, k) + \frac{D_e}{\varepsilon_0} \cdot dt \left( \frac{c(i + 1, j, k) + c(i - 1, j, k) - 2c(i, j, k)}{dx^2} + \frac{c(i, j + 1, k) + c(i, j - 1, k) - 2c(i, j, k)}{dy^2} \right) + dt \cdot \sigma$$

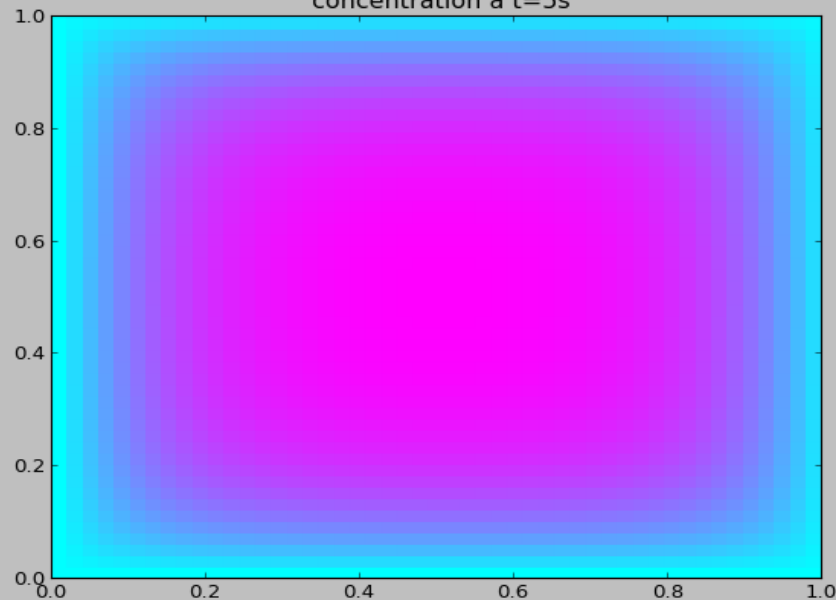
- ✓ Conditions initiales :  $c(x=0, y=0, t)=1$
- ✓ Conditions aux limites:  $x_{\text{limite}}=1$  ,  $y_{\text{limite}}=1$   
 $x_0=0$  ,  $y_0=0$

Voir  
annexe(C)

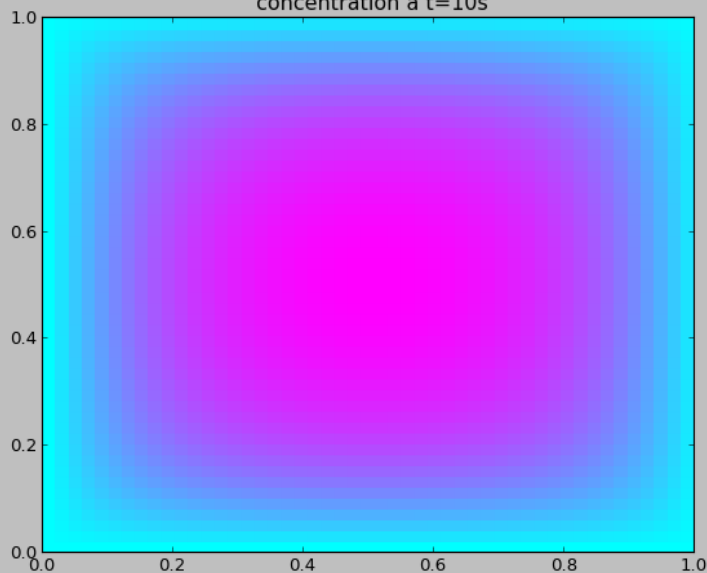
concentration à t=1s



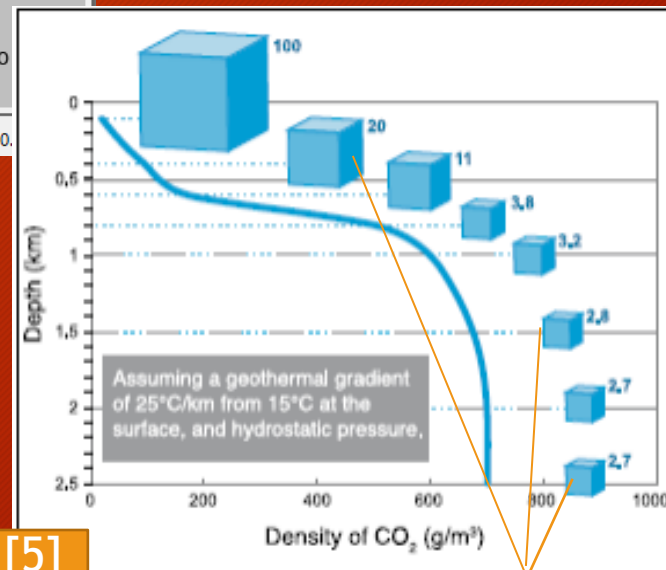
concentration à t=5s



concentration à t=10s



➤ La diffusion tend à rendre la concentration de  $\text{CO}_2$  homogène dans l'eau de la roche. Ainsi avec des température ( $50^\circ\text{C}$ ) et pression (100 bar) élevées en profondeur, le  $\text{CO}_2$  aqueux occupe donc moins de volume qu'en phase gazeuse; ce qui augmente la capacité de stockage du réservoir géologique



[5]

Volume occupé par le  $\text{CO}_2$  en profondeur



# IV-Impact de la diffusion de $CO_2$ sur les roches du réservoir

15

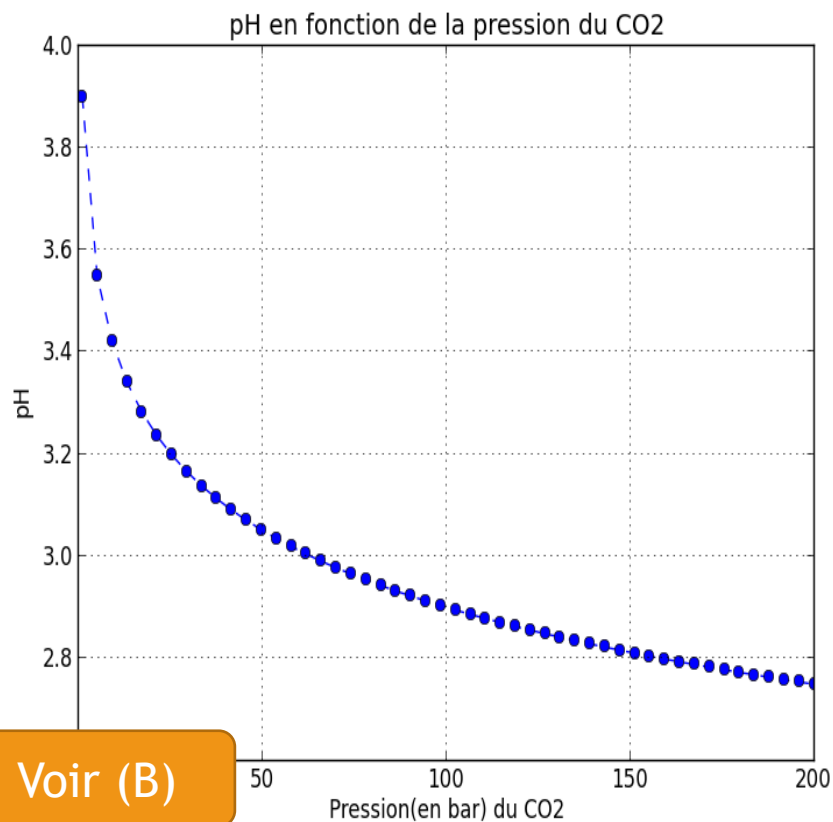
Les travaux de Appelo et Postma ont permis de montrer la relation simple suivante:

$$pH = -0,5 \log \left( 10^{-7,8} \frac{P_{CO_2}}{P_{norm}} \right) \quad \text{à } T = 25^\circ\text{C}$$

Avec:

- $P_{CO_2}$ : la pression de  $CO_2$
- $P_{norm}$ : une pression de normalisation
- pH: le pH du  $CO_2$  (aqueux)

La représentation graphique est obtenue avec python



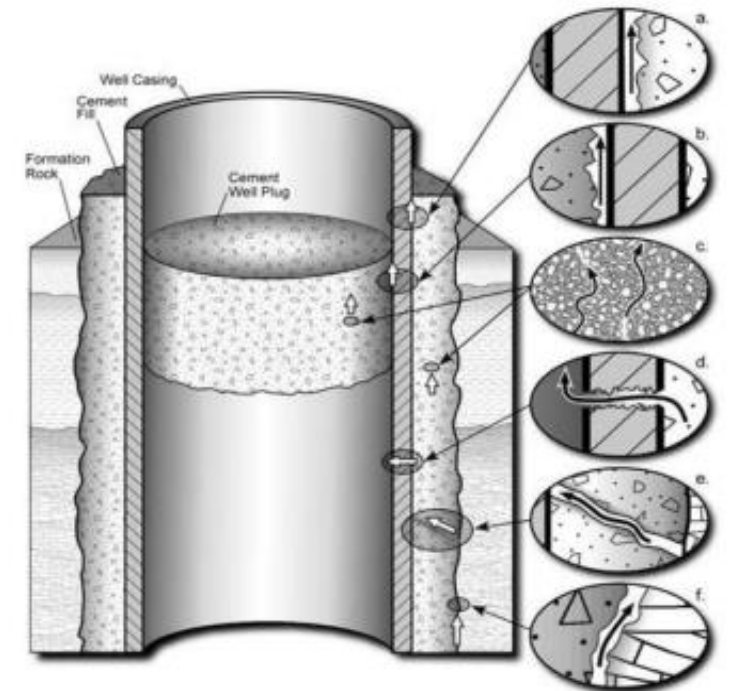
pH de l'eau en fonction de la pression du CO<sub>2</sub>

- Avec P normalisation=1bar

### Observation et interprétions:

- Le pH décroît en fonction de la pression
- Le pH est inférieur à 7(milieu acide)
- D'où le lieu de plusieurs réactions chimiques
- Ce qui altère la roche couverture ou le ciment

16



[1]



• Matériau	• Type de roche	• Mode d'altération	• Dimensions des échantillons (mm)	• Température (°C)	• Pression (bar)	• Taux d'injection (cm <sup>3</sup> /h)	• Durée
Argilite de Tournemire	Couverture fracturé	Injection d'eau acidifiée par dissolution de CO <sub>2</sub>	Diamètre : 9 Longueur : 15	25	n.s.*	25	33 j
Grès synthétique	Poudre	Flux de CO <sub>2</sub> dissous	Colonne : Diamètre : 36 Longueur : 1000	70	100	1,25	7,5 mois
Argilite de Muderong	Couverture	Diffusion de CO <sub>2</sub> dissous	Diamètre : 28,5 Longueur : 5 à 20	50	60-70	-	120 h
Carbonate de Midyat Carbonate de Saint-Maximin	Réservoir Réservoir	Injection de CO <sub>2</sub>	Diamètre : 38,1 & 47,2 Longueur : 70 & 107	18, 35 & 50	n.s.	180, 360 & 3600	~6,5 h
Calcaire de Lérrouville	Réservoir	Injection d'eau acidifiée par dissolution de CO <sub>2</sub>	Diamètre : 9 Longueur : 21	20	n.s.	300	22,5 h
Calcaire argileux de Montpellier	Réservoir fracturé	Injection d'eau acidifiée par dissolution de CO <sub>2</sub>	Diamètre : 9 Longueur : 15	20	n.s.	300	100 h
Grès d'Adamsviller Calcaire de Lavoux	Réservoir Réservoir	Diffusion de saumure saturée en CO <sub>2</sub> & CO <sub>2</sub> supercritique humide	Diamètre : 12,5 & 25 Longueur : 25 & 50	90	280	-	1 mois
Calcaire de Leadville Grès de Mt. Tom Grès de Coconio	Poudre Poudre Poudre	Diffusion de CO <sub>2</sub> dissous dans trois types de saumure	-	20 & 120	100 à 600	- - -	~50 j
Calcaire de Lavoux	Réservoir	Diffusion de CO <sub>2</sub> dissous & CO <sub>2</sub> supercritique sec	Diamètre : 38 Longueur : 61 à 76	80	150	-	1 mois
Grès d'Emsher Calcaire de Donar 5	Couverture Couverture	Percée et diffusion de CO <sub>2</sub> dissous	Diamètre : 28,5 Longueur : 10	28	50	-	50 h

[5]

17

Des exemples d'altération de roche par la diffusion du CO<sub>2</sub>

roche par la diffusion du CO<sub>2</sub>  
Des exemples d'altération de

# Conclusion

17

- Cette modélisation permet de visualiser la diffusion du  $CO_2$  dans la roche ,comprendre son importance sur la capacité de stockage et voir son impact sur les roches du réservoir géologique .
- Cependant  $D_e$  et  $\varepsilon_0$  ne sont pas vraiment des

constantes, ils dépendent du type de milieu, de la position mais aussi du temps

- Solution envisageable pour réduire les risques liés au stockage géologique :injecter le  $CO_2$  avec des faibles pressions

[5]

Type de roche	Méthode utilisée	Espèce diffusante	Coefficient de diffusion effectif ( $m^2.s^{-1}$ )
Argiles de Mol	Pulse-test	HTO	$8,50 \times 10^{-11}$
Calcaires de Charmottes	RMN	D <sub>2</sub> O	$8,0 \text{ à } 9,8 \times 10^{-12}$
Argillite de Muderong	Diffusion au travers	CO <sub>2</sub> dissous	$3,08 \times 10^{-11}$
Argilites de Bure	Diffusion au travers	HTO	$1,8 \text{ à } 2,4 \times 10^{-11}$
Argiles à Opalinus	Diffusion au travers	HTO	$5,6 \text{ à } 6,7 \times 10^{-12}$
Grès d'Emscher	Diffusion au travers	CO <sub>2</sub> dissous	$7,80 \times 10^{-11}$

[4]

Roches poreuses	porosité totale (%)
Sable et gravier	25 à 40
Sable fin	30 à 35
Argile	40 à 50
Craie	10 à 40
Calcaire (fissuré)	1 à 10



MERCI POUR  
VOTRE  
ATTENTION  
!

*Vos questions sont les  
Bienvenues ...*

# ANNEXE

20

- [1]:Image de : Guillaume BERTHE, THÈSE DE DOCTORAT, UNIVERSITE PARIS-SUD, Soutenue le 20/12/2012, Évolution des propriétés de confinement des roches couvertures type argilite soumises à des fluides enrichis en CO<sub>2</sub> : Impact des discontinuités naturelles et artificielles ; <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00795668>
- [2]:image de clubco2.fr
- [3]image de Houssein Nasser El Dine. Étude mathématique et numérique pour le modèle Darcy-Brinkman pour les écoulements diphasiques en milieu poreux. Analyse numérique [math.NA]. École centrale de Nantes; Université Libanaise:<https://hal.archives-ouvertes.fr/tel-01626032v3>
- [4] Image de :<http://eduterre.ens-lyon.fr/nappe/html/scenarii/TP>
- [5]Image de Pierre Bachaud. Stockage du CO<sub>2</sub> dans les aquifères profonds : étude en conditions réelles des propriétés de confinement des roches de couverture et de leur altération. Autre. Institut National Polytechnique de Lorraine, 2010. Français. ffnnt : 2010INPL084Nff. fftel-01749436f:<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01749436>
- [6] Image de :[www.news.uliege.be](http://www.news.uliege.be)
- [7] Image de:[www.ecoconso.be](http://www.ecoconso.be)
- [8] Image de :[www.lesechos.fr](http://www.lesechos.fr)
- [9]:Image de <https://fr.science-questions.org>



```
import numpy as np
import matplotlib.pyplot as plt
def c():
    De=2*10**-9
    epsilon=0.4
    x=np.linspace(-5,5,100)
    c0=10
    T=[10**i for i in range(5)]
    for t in T:
        y=c0*np.exp(-x**2*epsilon/4*De*t-x**2/2)/np.sqrt(4*De*np.pi*t/epsilon)
        plt.plot(x,y,label='t={}%s'.format(t))
        plt.xlabel("x en nano_mètre")
        plt.ylabel(" c (micro_mol/m3" )
        plt.title("concentration de CO2")
        plt.legend()

plt.show()
```

```
74 ph=f(pression).py - C:\Python32\2k5\ph=f(pression).py
File Edit Format Run Options Windows Help

import matplotlib.pyplot as plt
import numpy as np
def ph():
    p1=np.linspace(1,200)
    p2=np.linspace(0.1,10)
    y1=-0.5*np.log(10**-7.8*p1)/np.log(10)

    plt.plot(p1,y1,'o--')

    plt.xlabel("Pression(en bar) du CO2 ")
    plt.ylabel("pH")
    plt.title("pH en fonction de la pression du CO2")
    plt.grid()
    plt.cool()
    plt.show()

Ln: 10 Col: 32
```



```
7% diffusionco2.py - C:\Users\ASUS\Desktop\diffusionco2.py
File Edit Format Run Options Windows Help

import numpy as np
import matplotlib.pyplot as plt
def diff(n,p,k,t):
    if 'qt' in plt.get_backend().lower():
        try:
            from PyQt4 import QtGui
        except ImportError:
            from PySide import QtGui

    De= 2*10**-3
    epsilon= 0.4
    sigma = 2
    dt = t/k
    dx = 1/n
    dy = 1/p
    x= np.linspace(0,1,n)
    y = np.linspace(0,1,p)
    plt.figure()
    plt.ion()
    c = np.zeros((n,p))
    m= np.zeros((n,p))
    for i in range(0,k):
        m[1:-1,1:-1] = dt*De/epsilon*((c[:-2,1:-1]-2*c[1:-1,1:-1]+c[2:,1:-1])/(d
        c[1:-1,1:-1] += (m[1:-1,1:-1]+dt*sigma)
        if (i%100== 0):
            plt.pcolormesh(y,x,c,cmap='cool')
            plt.title(" concentration à t={}s".format(t))
            plt.draw()
            if 'qt' in plt.get_backend().lower():
                QtGui.QApp.processEvents()
    plt.colorbar()
    plt.show()

Ln: 32 Col: 14
```

## Démo

### Analyse

Supposons  $\exists g$  de  $\mathcal{S}'$  et intégrable sur  $\mathbb{R}$  tel que :

$$|c(x,t)| \leq |g(x)| ; \quad \left| \frac{\partial c(x,t)}{\partial t} \right| \leq |g(x)| ,$$

$$\left| \frac{\partial c(x,t)}{\partial x} \right| \leq |g(x)| \text{ et } \left| \frac{\partial^2 c(x,t)}{\partial x^2} \right| \leq |g(x)| .$$

\*  $C(k,t) = \int_{-\infty}^{+\infty} c(x,t) e^{-i2\pi kx} dx$  est bien définie car

$$|c(x,t) e^{-i2\pi kx}| \leq |c(x,t)| \leq |g(x)|$$

. soit  $h(x) = c(x,t) e^{-i2\pi kx}$ .

$\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\partial^2 c(x,t)}{\partial x^2} e^{-i2\pi kx} dx$  est aussi bien définie.  
(En utilisant l'hypothèse).

$$\begin{aligned} * \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\partial c(x,t)}{\partial t} e^{-i2\pi kx} dx &= \frac{\partial}{\partial t} \int_{-\infty}^{+\infty} c(x,t) e^{-i2\pi kx} dx \\ &= \frac{\partial C(k,t)}{\partial t} \text{ car par} \end{aligned}$$

Hypothèse :  $\left| \frac{\partial c(x,t)}{\partial t} \right| \leq |g(x)|$ , alors on peut intervertir l'intégrale et la dérivation.

\* Par une double intégration par partie.

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\partial^2 c(x,t)}{\partial x^2} e^{-i2\pi kx} dx = -4\pi^2 k^2 C(k,t).$$

$$\begin{aligned} \text{On obtient : } \frac{\partial C(k,t)}{\partial t} + 4\pi^2 k^2 C(k,t) &= 0 \\ \Rightarrow C(k,t) &= C(k,0) e^{-4\pi^2 k^2 t} \end{aligned}$$

$$c(x,t) = c(x,0) * \left( \frac{1}{\sqrt{\frac{4\pi^2 k_0^2}{\epsilon_0}}} e^{-\frac{x^2 k_0^2}{4\epsilon_0 t}} \right) \otimes 0$$

### Synthèse

On vérifie aussi que  $c(x,t)$  vérifie l'équation de diffusion

(D)