

RAPPORT D'ÉTUDE
DRS-08-95145-11842B

19/03/2010

**Etat des connaissances sur les risques liés au
stockage géologique du CO₂**

Rapport n°1 : les risques en phase d'injection

INERIS

maîtriser le risque |
pour un développement durable |

Etat des connaissances sur les risques liés au stockage géologique du CO₂.

Rapport n°1 : les risques en phase d'injection

Direction des Risques du Sol et du Sous-sol

PREAMBULE

Le présent rapport a été établi sur la base des informations fournies à l'INERIS, des données (scientifiques ou techniques) disponibles et objectives et de la réglementation en vigueur.

La responsabilité de l'INERIS ne pourra être engagée si les informations qui lui ont été communiquées sont incomplètes ou erronées.

Les avis, recommandations, préconisations ou équivalent qui seraient portés par l'INERIS dans le cadre des prestations qui lui sont confiées, peuvent aider à la prise de décision. Etant donné la mission qui incombe à l'INERIS de par son décret de création, l'INERIS n'intervient pas dans la prise de décision proprement dite. La responsabilité de l'INERIS ne peut donc se substituer à celle du décideur.

Le destinataire utilisera les résultats inclus dans le présent rapport intégralement ou sinon de manière objective. Son utilisation sous forme d'extraits ou de notes de synthèse sera faite sous la seule et entière responsabilité du destinataire. Il en est de même pour toute modification qui y serait apportée.

L'INERIS dégage toute responsabilité pour chaque utilisation du rapport en dehors de la destination de la prestation.

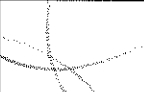




	Rédaction	Vérification	Approbation
NOM	Philippe GOMBERT Alain THORAVAL	e/ Franz LAHAIE Régis FARRET	Mehdi GHOREYCHI
Qualité	Responsable de l'unité ESEG et Ingénieur à l'unité RNOS, à la Direction des Risques du Sol et du Sous-Sol	Ingénieur à l'unité AS2G et Chef de Projet Captage et stockage du CO2, à la Direction des Risques du Sol et du Sous-Sol	Directeur des Risques du Sol et du Sous-sol
Visa	 	 	

TABLE DES MATIÈRES

1. INTRODUCTION	13
1.1 Contexte et objectif de l'étude	13
1.2 Champ du présent document	15
1.2.1 Les quatre maillons de la chaîne et leurs phases de vie	15
1.2.2 Les risques	16
2. GENERALITES SUR LE STOCKAGE GEOLOGIQUE DU CO₂.....	17
2.1 Un outil de lutte contre le changement climatique	17
2.2 La filière captage et stockage géologique du CO ₂ (CSC).....	18
2.2.1 Le captage.....	19
2.2.1.1 Postcombustion.....	19
2.2.1.2 Oxycombustion.....	20
2.2.1.3 Précombustion	21
2.2.2 Le transport	21
2.2.3 L'injection.....	22
2.2.4 Le stockage	23
2.3 Les milieux de stockage envisagés.....	23
2.3.1 Aquifères salins profonds	24
2.3.1.1 Principes du stockage	24
2.3.1.2 Sites de stockage existants ou potentiels.....	26
2.3.2 Gisements d'hydrocarbures épuisés.....	29
2.3.2.1 Principe du stockage	29
2.3.2.2 Sites de stockage existants ou potentiels.....	30
2.3.3 Gisements de charbon.....	31
2.3.3.1 Principe du stockage	31
2.3.3.2 Sites de stockage existants ou potentiels dans le charbon	33
2.3.4 Roches basiques et ultrabasiques.....	35
2.3.4.1 Principe du stockage	35
2.3.4.2 Potentialités de stockage en France métropolitaine et outremer.....	35
2.4 Nature du fluide injecté.....	36
2.4.1 Le CO ₂	36
2.4.2 Les impuretés	39
2.5 Les différentes phases de la vie de la filière.....	40
2.6 La réglementation en matière de CSC	41
2.7 Les retours d'expérience utiles pour l'évaluation des risques	43
2.7.1 Les analogues industriels	43
2.7.1.1 Le stockage de gaz naturel et d'hydrocarbures.....	43
2.7.1.2 La récupération assistée d'hydrocarbures par injection de CO ₂	43

2.7.1.3	La récupération assistée de méthane dans les veines de charbon...	44
2.7.1.4	Le stockage géologique de déchets radioactifs.....	44
2.7.2	Les analogues naturels.....	45
3.	IDENTIFICATION DES RISQUES LIES AU STOCKAGE GEOLOGIQUE DU CO₂	55
3.1	Généralités et définitions sur l'analyse des risques.....	55
3.2	Analyse de l'accidentologie	56
3.3	Les principaux phénomènes redoutés et leurs mécanismes initiateurs	58
3.3.1	Mécanismes liés aux puits d'injection	59
3.3.2	Mécanismes et effets potentiels liés au réservoir	62
3.4	Les critères de choix des sites	63
4.	ELEMENTS D'EVALUATION DES ALEAS LIES AUX FUITES DE PUIITS...	67
4.1	Description des différents types de fuites de CO ₂ par le puits.....	67
4.1.1	Fuite soudaine	67
4.1.2	Fuite diffuse	69
4.2	Perturbations mécaniques induites par le creusement du puits	70
4.2.1	Perturbations instantanées	70
4.2.2	Perturbations différés.....	70
4.2.3	Sollicitation des cuvelages lors de leur mise en place	71
4.2.4	Influence de la qualité des cimentations	72
4.3	Perturbations apparaissant lors de la phase d'injection	73
4.3.1	Corrosion des aciers.....	74
4.3.2	Réactions chimiques sur les ciments.....	78
5.	ELEMENTS D'EVALUATION DES ALEAS LIES AUX PERTURBATIONS DU RESERVOIR DANS LE PROCHE-PUIITS	83
5.1	Définition du proche-puits.....	83
5.2	Perturbations du champ de contraintes liées à l'injection du CO ₂	84
5.2.3	Evaluation du risque de rupture au toit du réservoir	89
5.2.4	Évaluation du risque de cisaillement des discontinuités	90
5.2.5	Risques sismiques et de mouvements de terrain	91
5.3	Perturbations physico-chimique liées à l'injection de CO ₂	92
5.3.1	Risque lié au CO ₂	92
5.3.2	Risque lié aux impuretés du CO ₂ injecté	94
5.3.3	Risque de remobilisation d'éléments-traces	96
5.3.3.1	Cas des fluides hydrothermaux riches en CO ₂ (analogues naturels)	96
5.3.3.2	Cas des éléments minéraux de l'analogue industriel du Frio	96
5.3.3.3	Cas de la matière organique dans l'analogue industriel de Frio	102
5.3.3.4	Autres résultats obtenus.....	103
5.4	Risque bactériologique.....	104
5.4.1	Flore bactérienne de subsurface	104
5.4.2	Flore bactérienne profonde.....	104

6. CONCLUSION ET PERSPECTIVES	105
7. BIBLIOGRAPHIE	107
8. LISTE DES ANNEXES	117
Rappel sur le comportement du CO ₂	119
Propriétés physico-chimiques	119
Comportement thermodynamique.....	119
Solubilisation du CO ₂	122
Réactions géochimiques :	123
Toxicologie.....	125
Valeurs limites d'exposition professionnelle	126
Toxicité aiguë sur l'Homme	126
Toxicité chronique sur l'Homme	126
Annexe 2 :	129
Mécanismes physico-chimiques du stockage géologique de CO ₂	129
Annexe 3 :	131
Description d'un puits d'exploitation d'un stockage de gaz naturel.....	131
Généralités.....	131
Equipement de la tête de puits.....	132
Equipements en fond de puits.....	133

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1 : Capacités théoriques de stockage de CO ₂ dans différents types de formations géologiques (IPCC, 2005)	24
Tableau 2 : Capacités de stockage géologique de CO ₂ en aquifère salin profond dans quelques pays européens (Bentham & Kirby, 2005)	28
Tableau 3 : Caractéristiques de quelques projets de récupération assistée de pétrole utilisant du CO ₂ en Amérique du Nord (Gozalpour et al., 2005)	30
Tableau 4 : Estimation des capacités théoriques de stockage de CO ₂ dans la zone Vitrolles Aix-en-Provence du Bassin Houiller de Gardanne pour une pression finale de gaz de 5 MPa (Metstor, avec participation de l'INERIS, 2008)	34
Tableau 5 : Caractéristiques de quelques fuites de réservoirs naturels de CO ₂ (Lewicki et al., 2006)	47
Tableau 6 : Caractéristiques et conséquences de quelques fuites naturelles et artificielles de gaz (Lewicki et al., 2006)	51
Tableau 7 : vitesse de corrosion des aciers (Mulders, 2007)	76
Tableau 8 : Temps (années) nécessaire pour corroder un tubage (calcul basé sur les données de Moreira, 2004).....	77
Tableau 9 : Vitesse d'avancement du front de dissolution (d'après Mulders, 2007)	80
Tableau 10 : Temps théorique nécessaire à la dissolution d'un bouchon de ciment (d'après Mulders, 2007)	81

LISTE DES FIGURES

Figure 1 : Périodes de vie d'un complexe de CSC (les durées mentionnées sont approximatives)	15
Figure 2 : Représentation des aléas relatifs à la filière CSC (Hovorka et al°, 2004)	18
Figure 3 : Schéma de principe d'une installation de captage-transport-stockage de CO ₂ (document IFP)	18
Figure 4 : Principaux procédés et systèmes de captage de CO ₂ (GIEC, 2005) ...	19
Figure 5 : Options de stockage géologique profond du CO ₂ (d'après Cook, 1999)	24
Figure 6 : Dissolution du CO ₂ dans l'aquifère salin profond d'Upsira (Torp, 2007)	26
Figure 7 : Schématisation de l'extraction de gaz et de l'injection du CO ₂ sur le site de Sleipner (IPCC, 2005)	27
Figure 8 : Localisation des principaux bassins sédimentaires de l'Europe (CO ₂ GeoNet, 2008).....	28
Figure 9 : Impact de l'injection de CO ₂ sur la production de gaz naturel du site de Weyburn (Preston et al., 2005) – BOPD = Barrels of Petrol Per Day	29
Figure 10 : Principaux sites potentiels de stockage géologique de CO ₂ en gisements d'hydrocarbures épuisés en France (de Marliave, 2007)	31
Figure 11 : Stockage géologique du CO ₂ en gisement houiller avec récupération du CH ₄ (Pokryszka, 2009)	33
Figure 12 : Le bassin de l'Arc (BRGM, IFP, INERIS, SNET, 2004 - 2005).....	34
Figure 13 : Gammes de changement d'état du CO ₂ (Span & Wagner, 1996 – le point critique correspond à T = 31°C et P = 7,4 MPa).....	37
Figure 14 : Diminution de volume du CO ₂ en fonction de la profondeur de stockage (CO ₂ GeoNet, 2008).....	38
Figure 15 : Phases de vie d'un stockage souterrain d'hydrocarbures (Charmoille & Thoraval, 2008)	40
Figure 16 : Impact en surface d'une fuite naturelle de CO ₂ (Lombardi 2007).....	48
Figure 17 : Localisation des principaux analogues naturels de stockage de CO ₂ en France (CO ₂ GeoNet, 2008).....	49
Figure 18 : Variations d'intensité du flux de CO ₂ en surface sur le site analogue naturel de Sainte-Marguerite (Pokryszka & Charmoille, 2008).....	52
Figure 19 : Localisation du puits fuyard (SL1) et impact isotopique d'une fuite de CO ₂ sur l'aquifère superficiel près de Montmiral (Lafortune, 2007)	53
Figure 20 : Représentation schématique des éléments à prendre en compte pour l'identification des enjeux au niveau d'un site de stockage géologique de CO ₂ (Bouc et al. 2006)	59
Figure 21 : Présentation de voies de fuites dans un puits d'injection de CO ₂ abandonné (Celia et al., 2004)	60
Figure 22 : Conséquences en surface d'un blow-out (Skinner, 2003).....	68

Figure 23 : Exemples de fuites diffuses de CO ₂ : (a) formation de bulle en tête d'un puits (Bachu, 2007) ; (b) apparition de bulles à la surface d'une mare au voisinage de la source thermale de Sainte Marguerite (63)	69
Figure 24 : Schéma des détériorations de la cimentation suite à sa mise en place (Huerta et al., 2007)	72
Figure 25 : Exemple de détérioration de la cimentation (Huerta et al., 2007) : (a) chenal de boue ; (b) Défaut de centrage ; (c) Microfissures radiales	73
Figure 26 : Variation de l'épaisseur du cuvelage en acier et de la vitesse de corrosion au cours du temps (Patroni, 2007).....	75
Figure 27 : Vitesse de corrosion de différents alliages en fonction de la température (150 et 175°C) à une pression partielle de CO ₂ de 0,482 MPa (d'après Moreira, 2004)	76
Figure 28 : Visualisation du front de carbonatation d'un ciment au contact du CO ₂ (Barlet-Gouédard, 2007)	78
Figure 29 : Altération de la porosité du ciment Portland d'après Barlet-Gouédard et al. (2006) cités par Randhol et al. (2007)	80
Figure 30 : Taux de carbonatation du ciment Portland (Barlet-Gouédard et al., 2006)	81
Figure 31 : Succession des fronts réactifs dans l'environnement d'un puits injecteur de CO ₂ (Azaroual et al., 2007b).....	83
Figure 32 : Zonage phénoménologique du puits et du proche puits d'injection du CO ₂ (Azaroual et al., 2007b)	84
Figure 33 : Simulation de l'évolution de la pression au cours du temps dans un aquifère salin profond (Magnier et Michel, 2007)	86
Figure 34 : Evolution de la pression en fonction du débit d'injection et de la distance au puits injecteur (Azaroual et al., 2007b).....	87
Figure 35 : Évolution simulée de la pression dans un gisement épuisé d'hydrocarbures pendant l'étape de production des hydrocarbures, puis pendant l'injection du CO ₂ , d'après Thoraval et Vidal-Gilbert. (2006).	88
Figure 36 : Analyse des ruptures dans le réservoir au droit du puits injecteur à l'aide des cercles de Mohr d'après (Thoraval et Vidal-Gilbert, 2006), cités dans (PICOREF, 2007)	90
Figure 37 : Evaluation du risque de cisaillement en fonction de l'orientation des discontinuités d'après (Thoraval et Vidal-Gilbert, 2006), cités dans (PICOREF, 2007)	91
Figure 38 : Simulation de l'évolution spatiale de la concentration molale et du pH suite à l'injection de CO ₂ dans un aquifère salin profond (Knauss et al., 2005) ...	95
Figure 39 : Concentrations en Fe et Mn dans les saumures Frio de 2004 à 2006 (Kharaha, 2006)	98
Figure 40 : pH estimé par modélisation thermodynamique et état de saturation des différents minéraux dans la saumure de la formation Frio avant l'injection de CO ₂ en fonction de la pression partielle de CO ₂ aux conditions de sub-surface (Kharaka, 2006).....	99
Figure 41 : Evolution de la concentration en carbone organique dissous (DOC) dans les saumures de Frio (Kharaka et al., 2009).....	101

Figure 42 : Changement de phase du CO ₂ selon les conditions de pression et de température régnant dans les bassins sédimentaires (Bachu, 2003).....	120
Figure 43 : Densité du CO ₂ selon la température et la pression (Bachu, 2003) .	121
Figure 44 : Densité du CO ₂ en fonction de la profondeur (Bachu, 2003)	121
Figure 45 : Solubilité du CO ₂ dans les solutions de NaCl en fonction de la concentration en NaCl de la solution à 48bar (Portier et Rochelle, 2005)	122
Figure 46 : Solubilité du CO ₂ en fonction de la pression dans les solutions de NaCl de 1 et 3 m (Portier et Rochelle, 2005).....	123
Figure 47 : Exemple de puits d'injection (Lécolier, 2007)	131
Figure 48 : Catégories de puits selon leur architecture (Patroni, 2007).....	132
Figure 49 : Descriptif technique d'une tête de puits d'injection de CO ₂	133
Figure 50 : Descriptif des éléments techniques en fond de puits d'injection de CO ₂	133

1. INTRODUCTION

1.1 CONTEXTE ET OBJECTIF DE L'ETUDE

La lutte contre le changement climatique est un des défis majeurs de notre temps. Selon le rapport spécial du GIEC¹ (2005) sur les scénarios d'émissions de gaz à effet de serre, les émissions mondiales (en équivalent-CO₂) vont augmenter de 25 à 90 % entre 2000 et 2030. Il devrait s'en suivre un réchauffement d'environ 0,2°C par décennie au cours des vingt prochaines années.

Face à ce problème d'enjeu mondial, la France s'est engagée en 2003, sur la scène internationale, à diviser par 4 d'ici 2050 ses émissions de gaz à effet de serre, dont le plus répandu est le dioxyde de carbone ou gaz carbonique (CO₂). Le Grenelle de l'environnement a par ailleurs confirmé ces objectifs et proposé plusieurs pistes d'actions.

Au delà des efforts nécessaires pour le développement massif des énergies propres, l'une des solutions aujourd'hui sérieusement envisagées pour réduire les émissions de CO₂ dans l'atmosphère consiste à le capter à la sortie d'installations industrielles particulièrement émettrices, à le transporter vers des zones propices au stockage souterrain puis à l'injecter dans des couches géologiques profondes jugées aptes à le retenir sur de très longues périodes de temps (plusieurs centaines à plusieurs milliers d'années).

Cette filière industrielle en devenir est communément appelée « captage et stockage géologique du CO₂ » (CSC) ou, en anglais, « Carbon Capture and Storage » (CCS). Le rapport du GIEC (IPCC, 2006) a permis de chiffrer que cette solution pourrait représenter 15 à 55 % de la totalité des réductions d'émissions requises d'ici à 2100 pour stabiliser le niveau de concentration de gaz à effet de serre dans l'atmosphère. Actuellement, il n'existe que quelques sites de stockage géologique de CO₂ opérationnels à travers le monde mais de nombreux projets sont à l'étude, également en France. Au delà du site en gisement épuisé de Rousse (Lacq), dont la reconversion en stockage de CO₂ est actuellement en cours, le Grenelle de l'Environnement prévoit de subventionner l'implantation d'un ou plusieurs projets démonstrateurs de captage, transport et stockage de CO₂ dans un aquifère salin profond.

Outre les questions de la faisabilité technique, de la viabilité économique et de l'efficacité environnementale d'une telle solution, se posent les problèmes de la sécurité des personnes et des biens ainsi que de l'impact sur le milieu environnant, à court et long-terme, de telles opérations.

En effet, les pratiques de captage, transport et stockage du CO₂ ne sont pas, a priori, dénuées de tout risque. L'évaluation de ces risques suscite d'ailleurs une part importante de l'effort de recherche consacré au CSC depuis plusieurs années. Cette évaluation est particulièrement délicate du fait du faible retour d'expérience disponible. Les complexes de stockage de CO₂ les plus anciens ne sont opérationnels que depuis une dizaine d'années et aucune expérimentation d'abandon, par exemple, n'a encore été menée dans ce domaine.

¹ Groupe d'experts Intergouvernemental sur l'Evolution du Climat (en anglais IPCC pour « Intergovernmental Panel on Climate Change »)

Dans ce contexte, l'évaluation des risques repose en grande partie sur les retours d'expériences acquis par l'injection de CO₂ dans les gisements pétroliers à des fins de récupération plus importante d'hydrocarbures, ou bien dans d'autres domaines, par exemple le stockage souterrain de gaz naturel et d'hydrocarbures. Concernant ces derniers, le retour d'expérience ne peut avoir qu'une représentativité limitée dans la mesure où le CO₂ présente des spécificités, en particulier :

- c'est un composé soluble dans l'eau, qui peut donc être transporté dans l'aquifère hôte sur des distances de plusieurs kilomètres ;
- lorsqu'il est dissout dans l'eau, il devient réactif et peut accroître la corrosion des matériaux constitutifs des puits (acier des cuvelages, cimentation des puits, bouchons de scellement mis en place lors de l'abandon) ;
- il peut également, par des réactions de précipitation et/ou de dissolution, générer des modifications structurelles au sein de la roche encaissante, aussi bien dans le réservoir qu'au niveau de la couverture. L'étanchéité de cette dernière peut alors s'en trouver dégradée à long-terme ;
- par ses capacités de dissolution il peut également remettre en solution, dans l'aquifère hôte, des éléments traces initialement présents à l'état solide dans la roche réservoir et dont le relargage dans l'aquifère hôte n'est pas souhaitable (métaux lourds, actinides) ;
- le CO₂ est destiné à être stocké pour une très longue période de temps, de l'ordre du millier d'années : le choix du site, la conception du stockage, les matériaux utilisés, les paramètres d'exploitation ainsi que la procédure d'abandon et de surveillance du site doivent donc être repensés dans cet objectif de pérennité ;
- un stockage de CO₂, à la différence d'un stockage de gaz ou d'hydrocarbures, s'opère uniquement dans le sens de l'injection et non par cycles d'injection/soutirage ;
- dans la plupart des options envisagées, le CO₂ sera injecté à l'état supercritique, sous une pression élevée (supérieure à 7,4 MPa) et pendant une longue durée (plusieurs décennies); l'impact d'une telle injection sur l'intégrité du puits, du réservoir et de la couverture doit donc être étudié.

Ainsi, l'évaluation des risques liés à l'injection et surtout, au stockage du CO₂ dans le sous-sol, est plus difficile à mener compte tenu des spécificités de ce produit, des échelles de temps sur lesquelles le stockage est envisagé et du faible retour d'expérience sur les interactions possibles du CO₂ avec le milieu hôte et les matériaux constitutifs des puits sur de si longues échelles de temps.

Afin d'assurer un déploiement maîtrisé de cette technologie pour la santé et pour l'environnement et de veiller à la mise en place d'une réglementation adaptée, il est essentiel pour l'Administration française de disposer d'une vision claire de l'état actuel des connaissances sur les risques.

Pour répondre à ce besoin, l'INERIS se charge d'une synthèse bibliographique complète des risques liés à l'injection et au stockage géologique du CO₂. Le présent document constitue le premier rapport d'avancement de ce travail et se limite à la phase d'injection du CO₂.

1.2 CHAMP DU PRESENT DOCUMENT

1.2.1 LES QUATRE MAILLONS DE LA CHAÎNE ET LEURS PHASES DE VIE

Un complexe de CSC est en fait une chaîne d'activités qui comprend quatre maillons (captage, transport, injection et stockage) et dont le cycle de vie s'étale sur trois grandes périodes (Figure 1):

- La période d'exploitation, d'une durée de 40 à 50 ans, elle-même divisée en :
 - o Une phase de conception, d'une durée de quelques années, qui comprend le choix du site et les premières mesures in situ destinées à l'établissement d'un « état zéro » ;
 - o Une phase d'injection pendant laquelle les quatre maillons CSC précisés ci-dessus sont en fonctionnement avec, en outre, la mise en place d'une surveillance serrée du stockage ;
 - o Une phase de fermeture où l'on procède au démantèlement des installations de surface, au comblement du puits d'injection et à la mise en place de la surveillance à long terme du stockage ;
- Deux périodes relatives au seul stockage, et totalisant une durée de l'ordre d'un millénaire :
 - o Une période de mémoire : il s'agit d'une période pendant laquelle l'humanité conserve la mémoire du stockage et des risques associés – sa durée est incertaine, mais on estime qu'elle ne saurait dépasser 300 ans ; cette période inclut la phase durant laquelle la société assure une surveillance, active ou allégée, du site ;
 - o Une période de long terme (ou d'oubli), la plus longue (700 à 800 ans), au cours de laquelle l'existence même du stockage et des risques associés aura été oubliée.

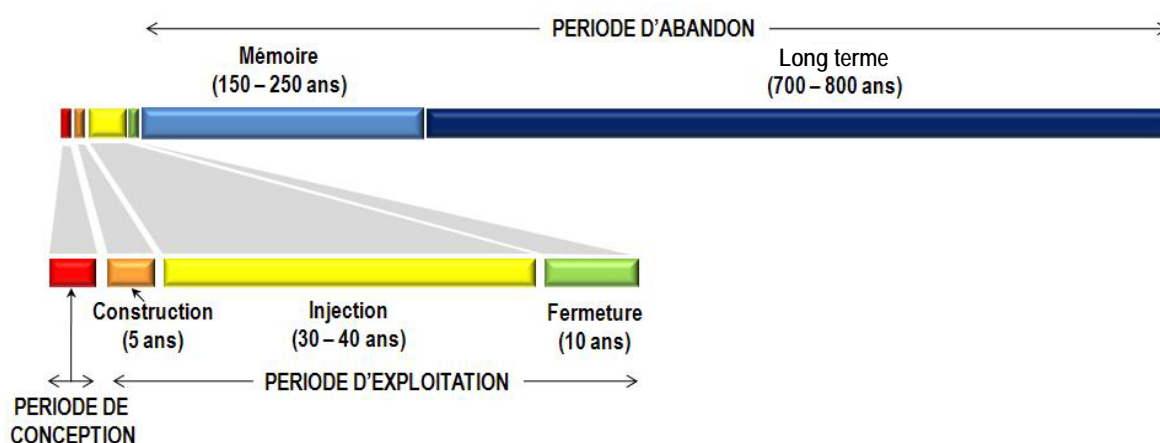


Figure 1 : Périodes de vie d'un complexe de CSC
(les durées mentionnées sont approximatives)

Le présent rapport a pour objet la période d'exploitation, et plus spécifiquement la phase d'injection (la période de conception n'est pas prise en compte, du fait de l'absence de risques). Précisons que la période d'exploitation est la seule au cours de laquelle tous les maillons de la chaîne sont sollicités : lors des périodes ultérieures, seuls les maillons « injection » et « stockage » sont à considérer – ce sera l'objet d'un rapport ultérieur de l'INERIS.

1.2.2 LES RISQUES

Précisons que ce rapport traite les quatre voies de stockage actuellement envisageables, à savoir : les aquifères salins profonds, les gisements d'hydrocarbures déplétés, les gisements houillers et les roches basiques. Toutefois, le stockage à l'état gazeux, comme cela peut être réalisé dans le charbon, sort du champ de cette étude.

En ce qui concerne l'étude des risques, l'accent est mis sur aquifères salins profonds et les gisements d'hydrocarbures déplétés, qui constituent a priori les pistes les plus prometteuses, notamment en termes de volume disponible.

Les risques concernés sont principalement :

- les risques liés aux puits d'injection (éruption de CO₂, fuites localisées ou diffuses) principalement du fait de la corrosion des cuvelages ou de la perte d'étanchéité de la cimentation ;
- les risques de perturbations THMC² et bactériologiques du réservoir dans la zone proche de la base du puits qui renferme essentiellement du CO₂ à l'état supercritique.

En outre, ce document présente les généralités sur la filière CSC, les programmes de recherches en cours ainsi que des exemples ou des projets de sites de stockage.

Un deuxième rapport prévu au 2^e semestre 2010 reprendra ces éléments et les complètera par l'évaluation des risques à moyen et à long terme liés au stockage géologique du CO₂, au cours de la phase de fermeture ainsi que de la période d'abandon, à savoir :

- le risque de fuite du CO₂ à travers le recouvrement (intègre ou fracturé) lors du développement du panache de CO₂ ;
- le risque de perturbations THMC² et bactériologiques engendrées par la propagation du panache de CO₂ au sein du réservoir ;
- dans le cas des stockages en aquifères salins profonds, le risque de migration du panache injecté sur une longue distance, du fait de l'écoulement de la nappe, et les fuites éventuelles de CO₂ par des objets éloignés (failles distantes, puits abandonnés, puits de surveillance, etc.) ;
- le risque de contamination des aquifères superficiels et des écosystèmes par des intrusions de CO₂ et/ou de saumure potentiellement chargés en éléments traces toxiques (métaux lourds, actinides) ;
- l'impact sanitaire sur l'homme de fuites potentielles à moyen et long terme.

² Thermo-Hydro-Mécano-Chimiques

2. GENERALITES SUR LE STOCKAGE GEOLOGIQUE DU CO₂

2.1 UN OUTIL DE LUTTE CONTRE LE CHANGEMENT CLIMATIQUE

Le captage, le transport et le stockage du CO₂ dans des formations géologiques profondes est une solution largement étudiée au plan international pour réduire les émissions de gaz à effet de serre.

Soutenant les efforts de recherche et développement dans ce domaine, l'Union Européenne a financé un certain nombre de programmes au cours des dernières années (Recopol, ICBM, SACS, CASTOR, ENCAP, CO₂sink). Ceux-ci couvrent tous les domaines technologiques de la filière CSC allant du captage, au transport et au stockage du CO₂.

En France, une étude prospective nationale sur la stratégie de la politique énergétique a été menée en 2001 par divers organismes de recherche (ADEME, BRGM, CEA, CNRS, IFP). Parmi les mesures de réduction des émissions de gaz à effet de serre préconisées, la priorité aux technologies de stockage géologique du CO₂ a été considérée comme une option forte face aux problèmes du changement climatique mais également pour créer de la valeur ajoutée industrielle (BRGM, 2005).

A l'heure actuelle, il n'existe qu'une dizaine de sites de stockage de CO₂ en fonctionnement dans le monde, dont les plus importants sont : Sleipner (Norvège), Weyburn et Zama (Canada), In Salah (Algérie), Snovit (Norvège), K12b (Pays-Bas), Blue Lake (Etats-Unis) et Ketzin (Allemagne). Cependant, plusieurs dizaines d'autres sites sont à l'étude dont, en France, le site de Rousse (dans le bassin de Lacq), et les sites de Claye-Souilly, de Massy-Palaiseau ou de St-Martin-de-Bossenay, dans le bassin parisien.

Bien que le site de Sleipner soit en activité depuis 1996, la technologie CSC est encore émergente. De ce fait, la problématique de l'évaluation des risques souffre d'un cruel manque de retour d'expérience et reste encore assez théorique.

La prise en compte de l'aspect sécurité (sanitaire et environnementale) dès la phase préliminaire d'un projet de stockage est pourtant nécessaire au développement durable de la filière ainsi qu'à son acceptation par la population. De nombreux travaux témoignent d'un besoin de renforcement de la recherche portant sur les risques, la sécurité et l'impact environnemental. Par ailleurs, la réglementation à venir demandera des études fiables de risque et d'impact pour l'ensemble de la filière de CSC sur lesquelles le législateur devra s'appuyer.

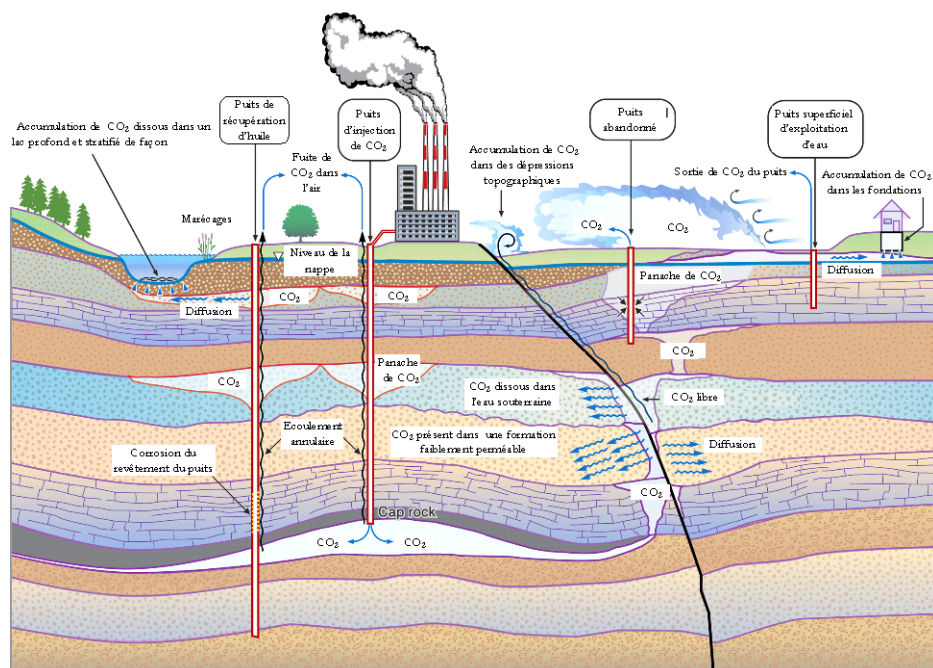


Figure 2 : Représentation des aléas relatifs à la filière CSC (Hovorka et al°, 2004)

2.2 LA FILIERE CAPTAGE ET STOCKAGE GEOLOGIQUE DU CO₂ (CSC)

Comme cela a déjà été précisé, la filière CSC peut être décomposée en quatre principaux éléments (Figure 3) : le captage, le transport, l'injection et enfin le stockage à long-terme du CO₂. Chacun de ces éléments constitue un « système fonctionnel » qu'il faudra analyser de manière spécifique en termes de risques.

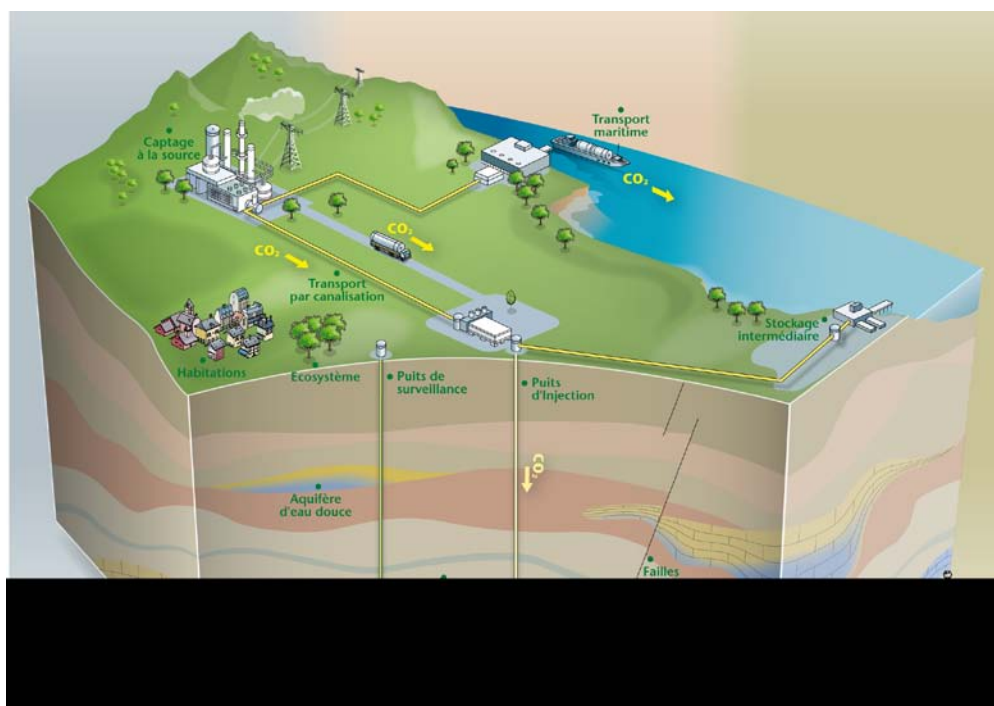


Figure 3 : Schéma de principe d'une installation de captage-transport-stockage de CO₂ (document INERIS & CorporateFiction)

2.2.1 LE CAPTAGE

Le premier chaînon de la filière CSC est le captage du CO₂ au sortir d'industries fortement émettrices : centrales électriques, centrales thermiques à combustibles fossiles (charbon, pétrole, gaz), cimenteries, raffineries, etc. Le procédé utilisé pour le captage est important pour la suite de la filière, notamment pour ce qui concerne l'évaluation des risques sanitaires et environnementaux, car il détermine la nature et la concentration des impuretés qui accompagneront le CO₂ dans le réservoir (voir chapitre 2.4.2).

Trois principaux procédés de captage sont actuellement à l'étude : la postcombustion, l'oxycombustion et la précombustion (Figure 4).

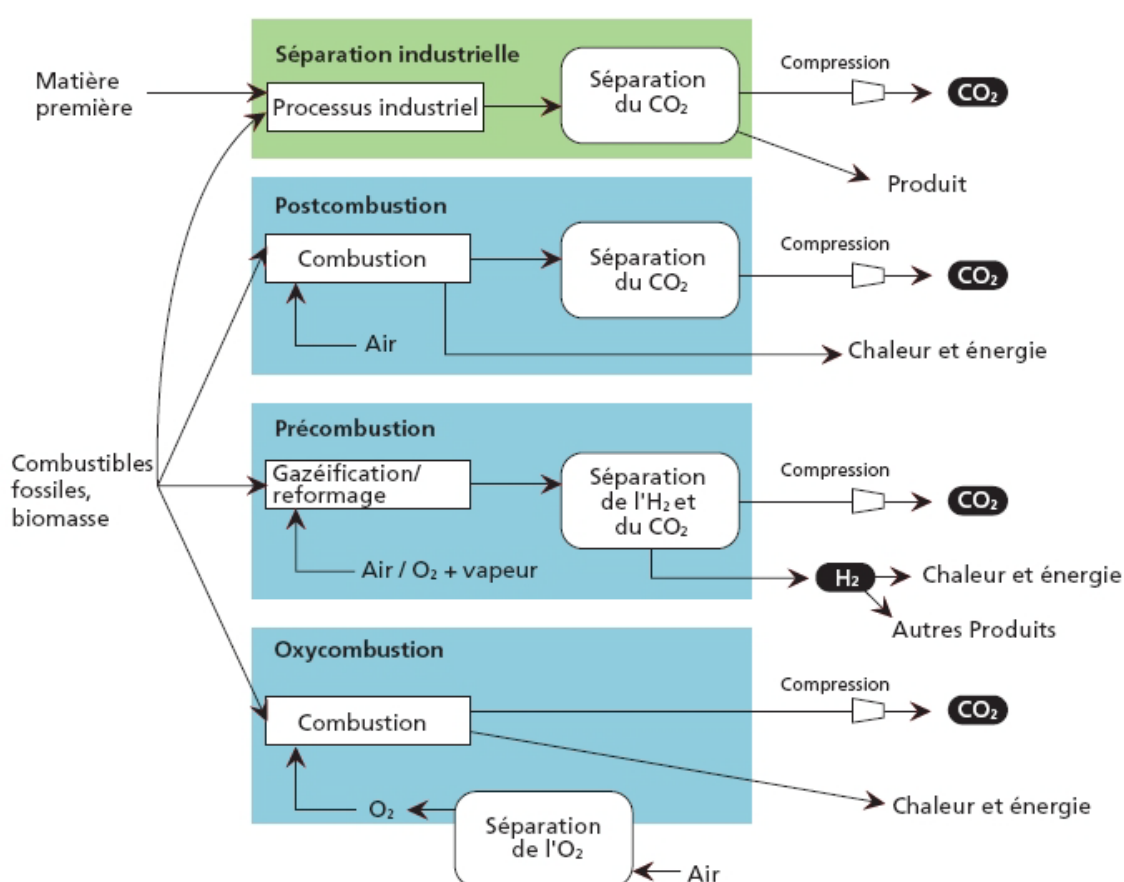


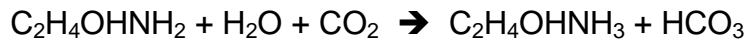
Figure 4 : Principaux procédés et systèmes de captage de CO₂ (GIEC, 2005)

2.2.1.1 POSTCOMBUSTION

Pour capter le CO₂ dans les fumées, il est possible d'utiliser des procédés analogues à ceux qui permettent de traiter le gaz naturel. Le CO₂ est alors extrait dans des colonnes de lavage grâce à un solvant chimique qui est ensuite régénéré par distillation (IFP, 2008).

Actuellement, la séparation postcombustion alliée au captage de CO₂ est testée dans une douzaine d'usines dans le monde (Cribellier et al., 2005). Le procédé de captage est basé sur l'absorption chimique : il s'agit d'un procédé où le CO₂ est absorbé dans

un solvant liquide par la formation d'un adhérent chimiquement composé. L'absorbant le plus ordinairement utilisé est le monoéthanolamine (MEA), de formule $C_2H_4OHNH_2$. La réaction fondamentale est :



Le solvant passe ensuite par une unité de régénération où il est réchauffé, généralement avec de la vapeur d'eau circulant à contre-écoulement, de façon à séparer le CO_2 . On obtient un flux de CO_2 extrêmement concentré (au delà de 99%) qui peut ensuite être condensé. Le solvant « maigre » est refroidi à 40-65°C et recyclé dans la colonne d'absorption. La présence d'oxygène résiduel dans les fumées de combustion conduit cependant à l'oxydation progressive des solutions de capture, impliquant une consommation d'amines de l'ordre de 1 à 1,5 kg par tonne de CO_2 produit, ainsi que la formation de déchets liquides acides à éliminer (Lim, 2009).

Afin de réduire les coûts et la taille des colonnes d'absorption et de régénération, de nouveaux procédés et solvants sont testés par plusieurs industriels. On peut également citer l'exemple du procédé d'absorption avec une membrane à micropores, constituée de polytétrafluoroéthylène qui filtre le gaz de combustion du dissolvant. La membrane possède le plus grand ratio « aire de contact/volume donné », mais elle ne permet pas toute seule la séparation de CO_2 du reste des gaz de combustion. C'est le solvant qui doit absorber sélectivement le CO_2 .

D'autres procédés existent pour capter le CO_2 , en postcombustion, par exemple la fracturation cryogénique et l'adsorption utilisant des tamis moléculaires. A ce jour, ces procédés sont moins rentables énergétiquement que l'absorption chimique.

2.2.1.2 OXYCOMBUSTION

Quand un carburant fossile est brûlé dans l'air, la fraction du CO_2 dans le gaz produit est de 3 à 15%, en fonction du contenu en carbone du carburant et de la quantité d'air disponible pour la combustion (Cribellier et al., 2005). La séparation du CO_2 du reste des gaz de combustion (surtout du N_2) par des moyens chimiques ou physiques est coûteuse et consommatrice d'énergie. Une alternative est donc de brûler le carburant avec de l'oxygène pur ou de l'air enrichi en oxygène : de ce fait, le gaz de combustion renfermera principalement du CO_2 et de l'eau.

Ce mode de combustion, dit oxycombustion, permet d'obtenir des fumées concentrées en CO_2 (de 95 à 98%), qu'on peut alors séparer, sous pression, à moindre coût (IFP, 2008). Les procédés envisagés impliquent la recirculation des fumées de combustion (« Flue gas recycling - FGR ») et leur mélange en amont du foyer avec l'oxygène pour contrôler et limiter la température de combustion (Lim, 2009). Le procédé de séparation de gaz le plus coûteux énergétiquement (jusqu'à 15% de la production électrique d'une usine) a lieu en amont afin de produire l'oxygène.

Ce procédé est dans un état de développement moins avancé que le captage en postcombustion, aussi est-il principalement envisagé sur de nouvelles installations. Il peut également être mis en place sur des installations existantes, moyennant des modifications importantes des chaudières et de leur cycle de fonctionnement.

On notera enfin qu'il existe des procédés alternatifs, tels le « chemical looping », pour lesquels l'oxygène n'est pas fourni directement mais par voie chimique, par exemple par réaction avec un oxyde métallique (voir exemple au 2.4.2).

2.2.1.3 PRECOMBUSTION

Une alternative à la combustion directe du combustible fossile consiste à convertir celui-ci en un gaz de synthèse (IFP, 2008). Ceci est réalisé par une étape d'oxydation partielle (gazéification du charbon, de coke pétrolier ou reformage de gaz naturel) qui produit un mélange d'hydrogène et de monoxyde de carbone. Après un traitement à l'eau, ce gaz de synthèse est alors à son tour converti en un mélange de CO₂ et d'hydrogène. Le CO₂ peut être séparé en utilisant le phénomène de pression-équilibre-absorption dans des dissolvants chimiques, tels que le méthanol ou le polyéthylène de glycol (Cribellier et al, 2005). L'hydrogène peut alors être acheminé dans une turbine pour produire de l'électricité.

La technique de précombustion s'applique communément dans les installations qui pratiquent la gazéification de charbon en cycle combiné. Actuellement, ces installations ne produisent pas d'électricité mais du gaz de synthèse et divers autres produits dérivés.

Un des plus grands obstacles au développement de cette technique est son coût : la production d'électricité est meilleur marché dans les usines à charbon pulvérisé que dans celles à gaz de synthèse. La précombustion pourrait être également exploitée quand le gaz naturel est utilisé comme combustible, cependant il n'est pas encore prouvé qu'elle soit préférable à la postcombustion. Dans ce cas, un gaz de synthèse (CO₂ et H₂) est formé en faisant réagir le gaz naturel avec la vapeur d'eau.

2.2.2 LE TRANSPORT

Les installations industrielles émettrices de CO₂ ne se trouveront pas forcément au droit d'un site géologique apte au stockage souterrain de ce gaz³. Il conviendra donc de le comprimer et de le transporter sur plusieurs dizaines à centaines de kilomètres, de préférence à l'état supercritique : en effet, dans cet état son volume est réduit (proche de celui du CO₂ liquide) tandis que sa viscosité reste proche de celle d'un gaz, ce qui limite les pertes de charges.⁴

Il n'y a pas différence majeure, sur le principe, entre le transport du CO₂ et le transport d'autres substances tels que, par exemple, le gaz naturel. Celui-ci s'opérera par canalisations, vraisemblablement enterrées, dont il conviendra de bien choisir les caractéristiques (type de matériau, diamètre, épaisseur, revêtement) en fonction des conditions de transport du CO₂ (pression, humidité, durée d'utilisation envisagée, etc.).

Les scénarios de risques associés à ce type d'installation sont bien connus et bénéficient d'un retour d'expérience important dans le domaine du transport de gaz naturel (voir par exemple GESIP, 2008).

Pour la fonction « transport » comme pour la fonction « captage », des équipements industriels spécifiques seront mis en place, ils seront utilisés seulement en période d'exploitation, puis ils seront démantelés et surtout ils ne joueront plus aucun rôle au cours des périodes suivantes (mémoire, long terme – cf. 1.2.1).

³ Le concept « captage ready » est cependant en train de voir le jour dans l'Union Européenne ; il consiste à prévoir, dans les nouvelles implantations industrielles, la place pour installer (en surface) une future unité de captage, de transport et éventuellement d'injection de CO₂.

⁴ Pour en savoir davantage sur l'état supercritique, se reporter au sous-chapitre 2.4.

2.2.3 L'INJECTION

Contrairement aux systèmes de captage et de transport, le système d'injection jouera un rôle important au cours de toutes les périodes de vie de la filière : sa fonction première est bien entendu d'injecter le CO₂ en période d'exploitation mais, une fois fermé et comblé, il demeurera présent à long terme. Comme nous le verrons ultérieurement, il aura même un rôle particulier en termes d'analyse des risques, puisqu'il traverse la couverture et sera soumis à la corrosion.

L'injection du CO₂ est probablement l'opération la plus critique de la filière CSC au plan de la sécurité. Elle s'appuiera sur des techniques pétrolières relativement éprouvées, cependant l'utilisation de ces techniques dans le contexte du stockage de CO₂ nécessitera vraisemblablement des adaptations du fait des spécificités de ce fluide (état supercritique, acidité, fort pouvoir solvant, etc.).

Sans préjuger de ses limites, on peut envisager que c'est la technologie actuelle des puits d'exploitation dans le contexte d'un stockage de gaz naturel en aquifère qui inspirera les futurs puits d'injection de CO₂— c'est d'ailleurs le cas pour les premiers sites de stockage de CO₂. Le système d'injection sera donc constitué :

- d'un cuvelage métallique, c'est-à-dire un ensemble de tubes concentriques traversant les terrains de recouvrement jusqu'au réservoir. Ce cuvelage sera cimenté aux terrains de manière à assurer la stabilité des parois du forage et à contribuer à l'étanchéité.
- d'une colonne de production (qu'on appellera plutôt dans ce cas « colonne d'injection »), située à l'intérieur du cuvelage, par laquelle le CO₂ transitera jusqu'au réservoir. Cette colonne comprendra notamment :
 - un tubage descendant jusqu'au niveau du réservoir,
 - un certain nombre d'éléments de sécurité (organe de sectionnement à sécurité positive isolant automatiquement le puits en cas de chute de pression anormale en tête de puits, obturateur annulaire permettant d'assurer l'ancrage du tubage sur le cuvelage et l'isolement de l'espace annulaire compris entre les deux avec le réservoir) ;
- d'éléments de fond comprenant notamment :
 - un dispositif de raccordement à la colonne de production,
 - des crépines permettant d'éviter l'entraînement de corps solides dans la colonne d'injection,
 - un dispositif de fermeture et d'ancrage en bas de la dernière crépine ;
- d'une tête de puits située à la surface et comportant un certain nombre de robinets manuels pour les opérations de maintenance.

Comme pour le transport en surface, il est utile d'injecter le CO₂ sous forme supercritique⁵ afin de réduire le volume à stocker comme celui à injecter, tout en limitant les pertes de charge. Ce qui implique que la profondeur du puits d'injection soit d'au moins de 800 m, profondeur à partir de laquelle la pression hydrostatique garde le CO₂ à l'état supercritique. Dans la plupart des cas, la profondeur d'injection se situera plutôt entre 1000 et 2000 m (voire plus). Le débit d'injection sera de l'ordre

⁵ Hors le cas particulier du stockage par adsorption à l'état gazeux sur du charbon, l'injection et donc le stockage se feront sous forme supercritique. Cependant, comme cela est illustré au chapitre 2.3, après formation d'une « bulle » de CO₂ supercritique; le CO₂ se dissoudra peu à peu en phase aqueuse ou sera piégé en phase minérale.

de quelques kg/s à dizaines de kg/s, ce qui nécessitera des diamètres de tubage de l'ordre de 25 cm (10").

Au-delà du (ou des) puits d'injection, il peut être également envisagé, à des fins de surveillance, de réaliser un certain nombre de puits de contrôle dans le recouvrement du stockage. Ces puits de contrôle peuvent être utilisés pour détecter, en phase d'injection voire après la fermeture du stockage, une éventuelle venue de CO₂ dans des niveaux supérieurs poreux et perméables grâce à un suivi régulier de la pression et/ou de la composition de l'eau.

2.2.4 LE STOCKAGE

Le dernier maillon de la filière CSC, qui est aussi celui qui est conçu pour durer le plus longtemps, est le stockage⁶. Du fait de sa durée (de l'ordre des milliers d'années), le stockage représentera la phase la plus délicate à gérer et nécessitera un cahier des charges très strict. Pourtant, c'est la phase sur laquelle le retour d'expérience est le moins important puisque le plus ancien site de stockage géologique de CO₂, celui de Sleipner en Norvège, n'est en fonctionnement que depuis 1996.

2.3 LES MILIEUX DE STOCKAGE ENVISAGES

L'étude des gîtes naturels de CO₂ et de gaz naturel nous a appris que - dans certaines conditions favorables - du gaz peut se trouver naturellement piégé pendant des périodes de plusieurs millions d'années (IPCC, 2005 ; Lewicki et al 2006 ; Lombardi, 2007). Ces réservoirs naturels de CO₂ peuvent être vus comme des « analogues naturels » au stockage de CO₂, la différence majeure étant que dans ce cas, le CO₂ n'est pas produit par l'activité humaine superficielle mais provient d'une activité naturelle profonde d'origine volcanique, magmatique ou hydrothermale.

Plusieurs milieux géologiques sont envisagés pour le stockage du CO₂ (Tableau 1 et Figure 5) :

- les aquifères salins profonds, susceptibles de pouvoir accueillir à eux seuls jusqu'à 10 000 GtCO₂ soit (en théorie) plus que la totalité du CO₂ qui doit disparaître du cycle atmosphérique au cours du XXI^e siècle ;
- les gisements d'hydrocarbures épuisés (jusqu'à 900 GtCO₂) ;
- les veines de charbons inexploitées (jusqu'à 200 GtCO₂) ;
- les roches basiques et ultrabasiques (potentiel non encore quantifié).

La récupération assistée d'hydrocarbures dans les champs pétrolifères (Enhanced Oil Recovery ou EOR) ou la récupération assistée de méthane dans les veines de charbons (Enhanced Coal Bed Methane Recovery ou ECBMR) offrent également des possibilités de séquestration de CO₂ dans des formations géologiques profondes bien que la finalité de ces opérations ne soit pas à proprement parler le stockage de CO₂ (voir Figure 5).

⁶ Notons que certains auteurs intègrent dans le terme « stockage » à la fois le système d'injection et le stockage proprement dit – comme nous l'avons déjà précisé, ces deux éléments ont des rôles distincts, tous deux importants, à jouer dans le long terme, notamment pour l'analyse des risques.

Reservoir type	Lower estimate of storage capacity (GtCO ₂)	Upper estimate of storage capacity (GtCO ₂)
Oil and gas fields	675 ^a	900 ^a
Unminable coal seams (ECBM)	3-15	200
Deep saline formations	1,000	Uncertain, but possibly 10 ⁴

^a These numbers would increase by 25% if 'undiscovered' oil and gas fields were included in this assessment.

Tableau 1 : Capacités théoriques de stockage de CO₂ dans différents types de formations géologiques (IPCC, 2005)

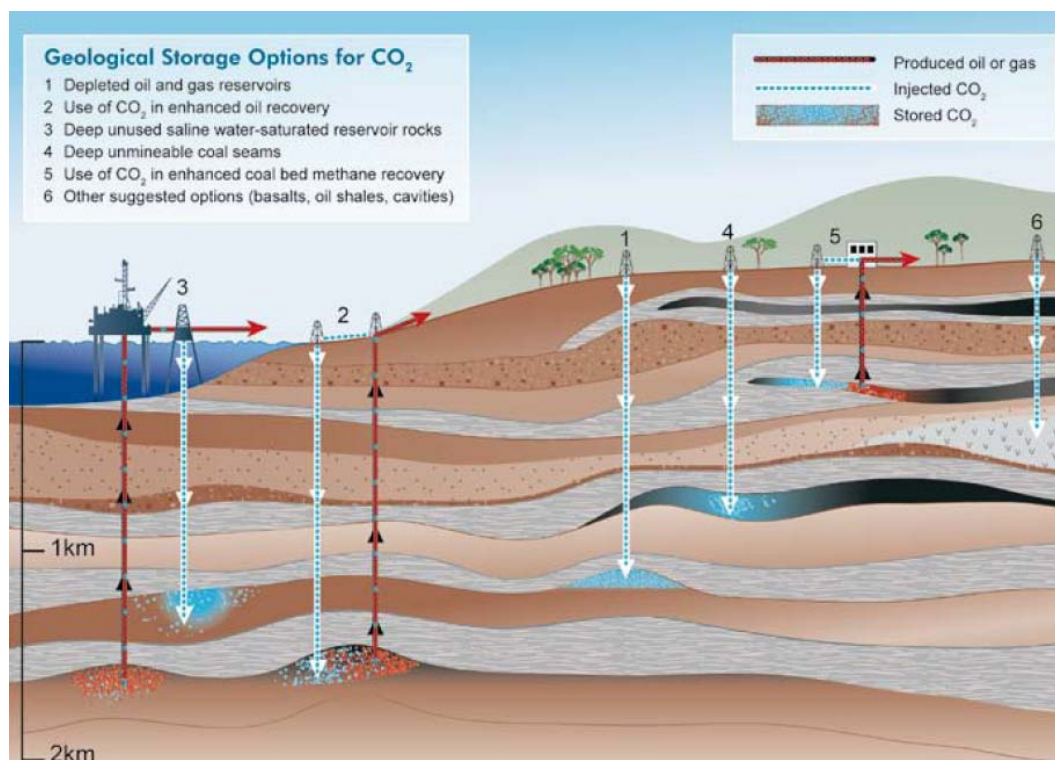


Figure 5 : Options de stockage géologique profond du CO₂ (d'après Cook, 1999)

2.3.1 AQUIFERES SALINS PROFONDS

2.3.1.1 PRINCIPES DU STOCKAGE

On appelle aquifère une formation géologique poreuse et perméable qui contient de l'eau. Les aquifères peuvent être classés en deux types suivant leur profondeur et la qualité de l'eau qu'ils renferment :

- les plus superficiels contiennent de l'eau douce et sont fréquemment utilisés pour l'alimentation en eau potable ;
- les plus profonds contiennent de l'eau salée, en l'état impropre à la consommation humaine et sont donc susceptibles de servir au stockage géologique du CO₂ ; on les classe sous l'appellation « aquifères salins profonds ».

Il se peut également que l'eau présente dans l'espace intergranulaire de la roche (porosité) soit partiellement remplacée par d'autres fluides : ces aquifères salins profonds abritent alors des gisements de pétrole, de gaz naturel ou de CO₂, d'origine profonde (volcanique, magmatique, hydrothermale).

Le principe du stockage de CO₂ en aquifères salins profonds est donc d'imiter ces analogues naturels, stables sur des millions d'années, en stockant du CO₂ dans les pores des roches. En termes de volume de stockage potentiel de CO₂, il s'agit du milieu réservoir qui renferme la plus grande capacité.

Les aquifères salins profonds seront donc la principale cible du stockage géologique du CO₂ du fait de leur extension importante, notamment au sein des grands bassins sédimentaires tels que le bassin de Paris. Ces aquifères peuvent piéger du CO₂ par trois mécanismes principaux (Bachu, 2003 ; Portier et Rochelle, 2005) :

- piégeage hydrodynamique sous forme de « bulle » de CO₂ supercritique ; ce mode de piégeage est prépondérant dans le champ dit « proche-puits » ;
- piégeage en phase aqueuse par dissolution dans l'eau de l'aquifère à plus grande distance du puits injecteur ;
- piégeage en phase minérale par interactions eau/roche au sein de l'aquifère.

La prépondérance de l'un ou l'autre de ces mécanismes dépend de la nature des roches réservoirs existantes (carbonatées, siliceuses, etc.) et du type d'aquifère hébergé (poreux, fissuré, karstifié). Cependant, quelque soit ce mécanisme, il semble évident que l'introduction massive de CO₂ dans des aquifères profonds fortement minéralisés induira une perturbation des équilibres chimiques et des propriétés thermodynamiques du système CO₂-H₂O-NaCl qui est à la base de leur fonctionnement hydrogéochimique.

Dans le cas d'un aquifère salin profond, en s'éloignant du puits d'injection, on devrait rencontrer successivement quatre zones distinctes au sein desquelles les réactions chimiques différeront (Bemer et al., 2007) :

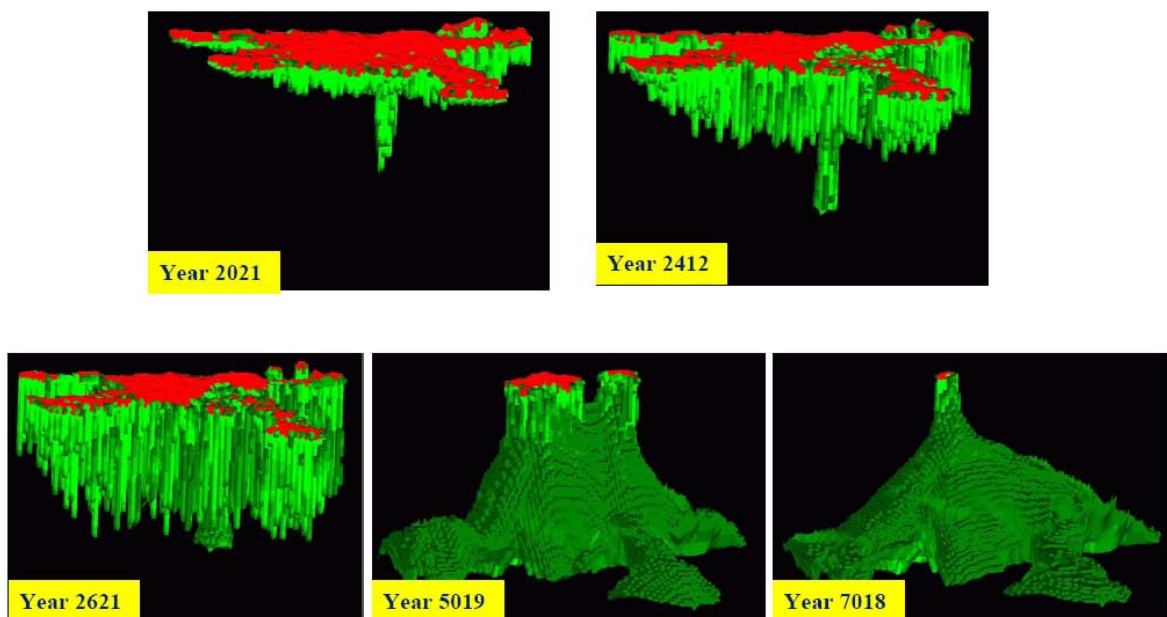
- une zone asséchée, saturée en CO₂ gazeux, renfermant des minéraux plus ou moins déshydratés ;
- une zone diphasique renfermant du CO₂ gazeux et de la saumure acidifiée car fortement chargée en CO₂, où prédominent les phénomènes de dissolution de minéraux et éventuellement de re-précipitation à une certaine distance ;
- une zone saturée par de la saumure chargée en CO₂ où se produisent encore des phénomènes de dissolution de minéraux et/ou de re-précipitation ;
- une zone intacte, saturée par de la saumure en place.

A la fin de la période d'injection, Brosse et al. (2007) décrivent les mécanismes qui se produisent dans un réservoir de stockage de CO₂ : le panache de gaz supercritique atteint sa taille maximale puis, l'injection cessant, « la solubilisation de CO₂ dans l'eau, jusqu'alors active aux marges du panache, devient dominante, et permet un retour progressif par « imbibition » de l'eau dans le réservoir, tandis que le panache s'amenuise et que les contraintes mécaniques sont relaxées ».

A terme, le CO₂ sera donc principalement dissout dans la saumure ou minéralisé sous forme de carbonates : la forme finale de la fixation du carbone présent dans le CO₂ dépendra à la fois de la durée d'observation du site et du type de réservoir impliqué

dans le stockage. Ainsi, dans un aquifère salin hébergé dans une roche réservoir carbonatée, Knauss et al. (2005) ont simulé l'injection de CO₂ pur, d'une part, et l'injection de CO₂ renfermant des impuretés (H₂S ou SO₂) d'autre part. Dans le cas du CO₂ pur ou du mélange CO₂-H₂S, environ 61% des moles de carbone stocké devraient se trouver fixées sous forme solide au bout de 100 ans alors que seulement 39% resteraient en solution dans la saumure. Ces auteurs notent cependant que l'injection conjointe de SO₂ inverse la tendance avec 53% de carbone fixé sous forme solide et 47% sous forme dissoute. Cette différence est principalement due au pH qui, même après un siècle de retour à l'équilibre, est encore trop bas dans le dernier cas pour permettre un même taux de minéralisation du carbone injecté.

Par contre, dans l'aquifère salin profond du site de Sleipner, hébergé par les sables siliceux de la formation d'Upsira, Torp (2007) a modélisé l'évolution du CO₂ (injecté pendant environ 20 ans) sur une période de 7 000 ans (Figure 6). Il apparaît que la dissolution du CO₂ dans la saumure commence à être significative à partir de 2 000 ans après l'injection et qu'elle est totale seulement au bout de 7 000 ans. Plus dense que la saumure initialement renfermée dans l'aquifère, celle qui aura été enrichie en CO₂ finira par couler à la base de la formation. Dans ces sables siliceux, la fixation du carbone par voie minérale n'a pas été étudiée.



(en rouge, le CO₂ supercritique ; en vert, le CO₂ dissous)

Figure 6 : Dissolution du CO₂ dans l'aquifère salin profond d'Upsira (Torp, 2007)

2.3.1.2 SITES DE STOCKAGE EXISTANTS OU POTENTIELS

Bien que les aquifères salins profonds représentent une option prometteuse pour le stockage du CO₂, il n'existe actuellement qu'un seul site au monde de stockage de CO₂ dans ce type de réservoir (Bentham & Kirby, 2005) : il s'agit du site norvégien de Sleipner, situé en mer du Nord Figure 7).

En fonctionnement depuis 1996, ce site d'injection de CO₂ est implanté à proximité d'un gisement de gaz naturel exploité à 2 500 m de profondeur. Le CO₂ est présent à titre d'impureté à hauteur de 9% environ dans le gaz naturel et, au lieu d'être rejeté dans l'atmosphère, il est réinjecté in situ dans une formation sableuse située à une profondeur de 1000 m environ (Figure 7). La durée prévue d'injection est de 20 ans, au débit de 1 MtCO₂/an.

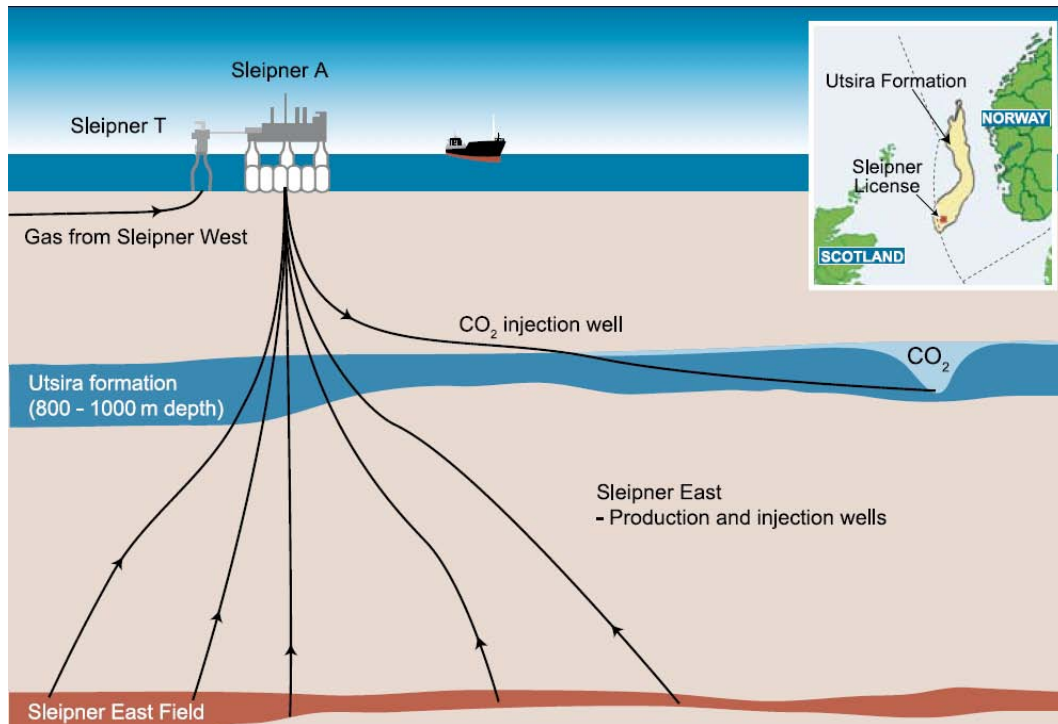


Figure 7 : Schématisation de l'extraction de gaz et de l'injection du CO₂ sur le site de Sleipner (IPCC, 2005)

Pourtant, des bassins sédimentaires susceptibles d'héberger des aquifères salins profonds existent en Europe, par exemple en Mer du Nord ou sur le pourtour des Alpes (CO₂GeoNet, 2008).

Une des plus vastes zones potentiellement aptes au stockage géologique du CO₂ est ainsi le « Bassin Permien Sud » qui s'étend de l'Angleterre jusqu'à la Pologne en traversant les Pays-Bas, le Danemark et l'Allemagne (représenté par la grande ellipse sur la Figure 8). On y trouve de nombreuses roches réservoirs carbonatées (calcaires) ou siliceuses (grès et sables) dont la porosité est remplie d'eau saline, de pétrole ou de gaz naturel.

En outre, ces roches réservoirs sont interstratifiées avec des couches argileuses, parfois très épaisses, qui sont donc a priori susceptibles de faire obstacle à la migration verticale des fluides.

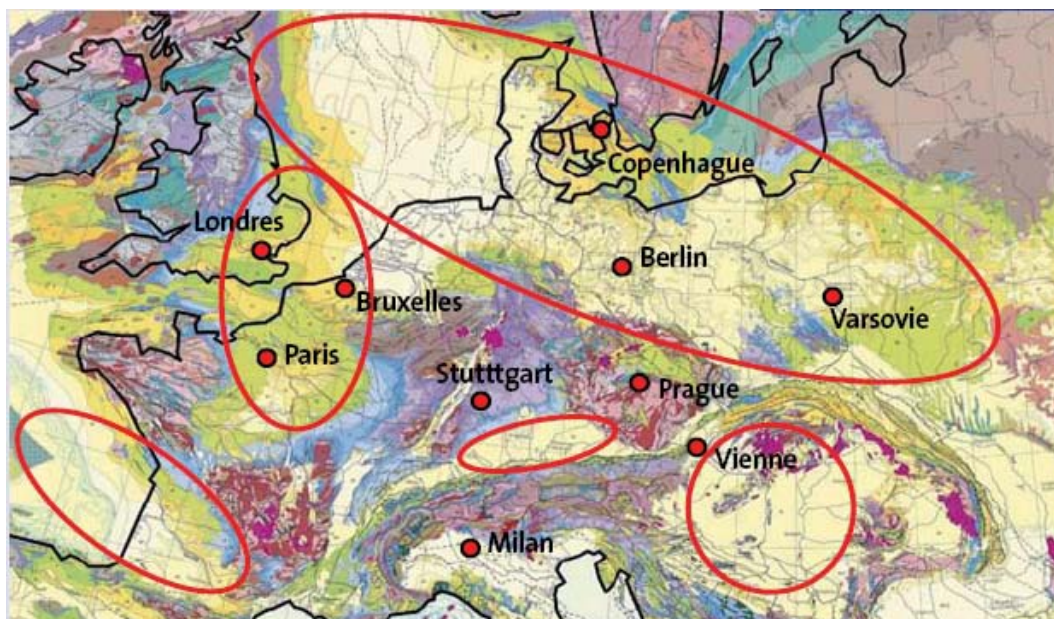


Figure 8 : Localisation des principaux bassins sédimentaires de l'Europe (CO₂GeoNet, 2008)

Deux grandes études ont ainsi été menées en 1996 (projet JOULE II) et en 2003 (projet GESTCO) dans le but d'estimer les potentialités de stockage géologique de CO₂ en aquifère salin profond dans plusieurs pays européens (Tableau 2). Pour la France, ces études montrent un potentiel de stockage compris entre 0,6 et 26 GtCO₂, essentiellement localisé dans le bassin parisien.

Country	Saline aquifer storage (Gt)	Report
United Kingdom Southern North Sea	14.7	GESTCO
Selected Onshore and near shore aquifers Denmark	16	GESTCO
Germany	23-43	GESTCO
Offshore Norway (traps)	13	GESTCO
Offshore Norway (open)	278	GETSCO
The Netherlands	1.6	GESTCO
Greece	2.2	GESTCO
Belgium (Campine Basin)	0.1	GESTCO
Paris Basin:		GESTCO
Dogger aquifer,	0.008-4	
Triassic aquifer (Keuper and Bunter)	0.6-22	
Country	Saline aquifer storage (Mt)	Report
Denmark (onshore aquifers)	5596	JOULE 11
France (onshore in traps)	1527	JOULE 11
Germany (onshore in traps)	472	JOULE 11
Italy (onshore and offshore traps)	473	JOULE 11
Netherlands (onshore traps)	1014	JOULE 11
Norway (traps)	10852	JOULE 11
Norway (open)	475887	JOULE 11
Spain (traps onshore and offshore)	1466	JOULE 11
United Kingdom (traps)	8808.94	JOULE 11

Tableau 2 : Capacités de stockage géologique de CO₂ en aquifère salin profond dans quelques pays européens (Bentham & Kirby, 2005)

En France, il n'existe pas à ce jour de site de stockage géologique de CO₂ dans des aquifères salins profonds. Toutefois, au moins deux projets pilotes sont à l'étude dans le bassin de Paris (projets démonstrateurs soumis à l'ADEME en 2009) :

- un projet de captage et de stockage intégré de CO₂, porté par Veolia sur le site de Claye-Souilly en Seine-et-Marne ;
- un projet de captage et stockage de CO₂ dans le bassin parisien, non encore précisément localisé, qui sera porté par GDF-Suez et Total.

2.3.2 GISEMENTS D'HYDROCARBURES EPUISÉS

2.3.2.1 PRINCIPE DU STOCKAGE

Des décennies d'opérations ont montré qu'il est possible d'injecter le CO₂ dans des gisements de pétrole et de gaz (Metstor, 2008) : le procédé de récupération assistée d'hydrocarbures par injection de CO₂ est couramment utilisé par l'industrie pétrolière depuis une quarantaine d'années car le CO₂ injecté aide à récupérer une partie des hydrocarbures résiduels de gisements difficiles ou en baisse de production (Gozalpour et al., 2005). Il s'agit de la technique de récupération assistée de pétrole (Enhanced Oil Recovery ou EOR.) ou de gaz (Enhanced Gas Recovery ou EGR). La Figure 9 montre ainsi l'impact de l'injection de CO₂ sur le gisement de production de gaz naturel de Weyburn au Canada : la production de gaz naturel, qui aurait dû diminuer jusqu'à environ 1 000 barils/jour en 2004, est remontée à 7 000 barils/jour au cours de l'année qui a suivi le début de l'injection du CO₂.

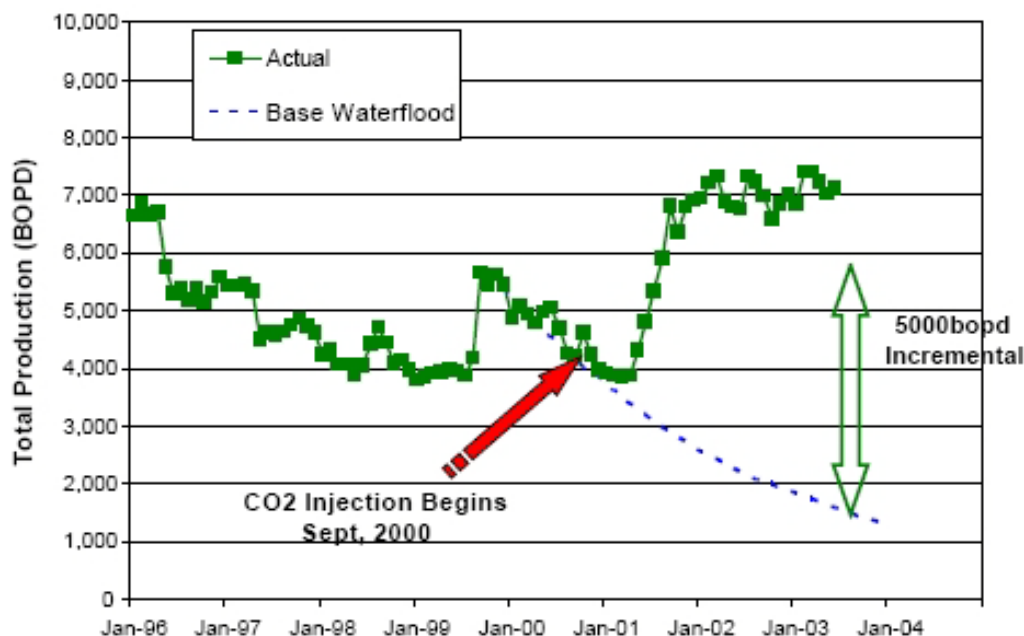


Figure 9 : Impact de l'injection de CO₂ sur la production de gaz naturel du site de Weyburn (Preston et al., 2005) – BOPD = Barrels of Petrol Per Day

La prise en compte des émissions de gaz à effet de serre dans l'atmosphère a conduit à étudier, ces dernières années, le potentiel de stockage durable du CO₂ dans des gisements épuisés⁷ d'hydrocarbures, qu'ils soient en fin d'exploitation ou abandonnés. Si les conditions de réservoirs sont adéquates, l'injection de CO₂ peut permettre à la fois d'augmenter notablement la récupération d'huile et de stocker définitivement du CO₂ dans les formations géologiques. Le potentiel de stockage du CO₂ associé à l'EOR (Enhanced oil Recovery) est important puisqu'environ 60 % du CO₂ injecté est effectivement retenu dans le réservoir. De plus, il y a peu de défis technologiques majeurs à relever, les sites concernés sont clairement identifiés leurs structures sont connues et bien étudiées (Metstor, 2008) et leur existence même montre leur étanchéité aux fluides (non agressifs). Cependant, les volumes concernés sont nettement plus faibles que dans le cas précédent des aquifères salins.

2.3.2.2 SITES DE STOCKAGE EXISTANTS OU POTENTIELS

Gozalpour et al. (2005) ont recensé quelques sites de gisements épuisés actuellement en fonctionnement sur le territoire nord-américain (Tableau 3). Par ailleurs, d'après le rapport House of Commons (2006) :

- le Canada disposerait de 30 sites d'injection de gaz acide (mélange de CO₂ et H₂S) au débit de 0,003 à 0,06 Mt/an dans des réservoirs épuisés de pétrole ;
- Abu Dhabi injecterait actuellement 0,4 Mt/an de gaz acides dans le même type de gisements.

Location	Plant type	CO ₂ supply (Mt/y)	EOR field	Operator
Oklahoma	Fertiliser	0.7	NE Purdy, Sho-Vel-Tum	Anadarko, Chaparrel Energy
Colorado	Gas processing	1.2	Rangely	ChevronTexaco
Wyoming	Gas Processing	0.6	Lost Solider, Wertz	Merit Energy
Texas	Gas Processing	1.3	Sharon Ridge	ExxonMobil
Saskatchewan	Coal Gasification	1.8	Weyburn	EnCana Energy
Alberta	Ethylene Plant	0.1	Joffre Viking	PanWest Petroleum

Tableau 3 : Caractéristiques de quelques projets de récupération assistée de pétrole utilisant du CO₂ en Amérique du Nord (Gozalpour et al., 2005)

En France, TOTAL a estimé les capacités de stockage de CO₂ en gisement d'hydrocarbures épuisés à 425 MtCO₂ dont plus de la moitié pour le seul site de Lacq (de Marliave, 2007). Un projet expérimental d'injection de 300 000 tCO₂ sur 2 ans est d'ailleurs actuellement en cours au droit du champ épuisé de Rousses dans les Pyrénées-Atlantiques (Total, 2007).

⁷ « depleted » en anglais d'où l'angliscisme « déplété » que nous n'avons pas choisi d'utiliser ici

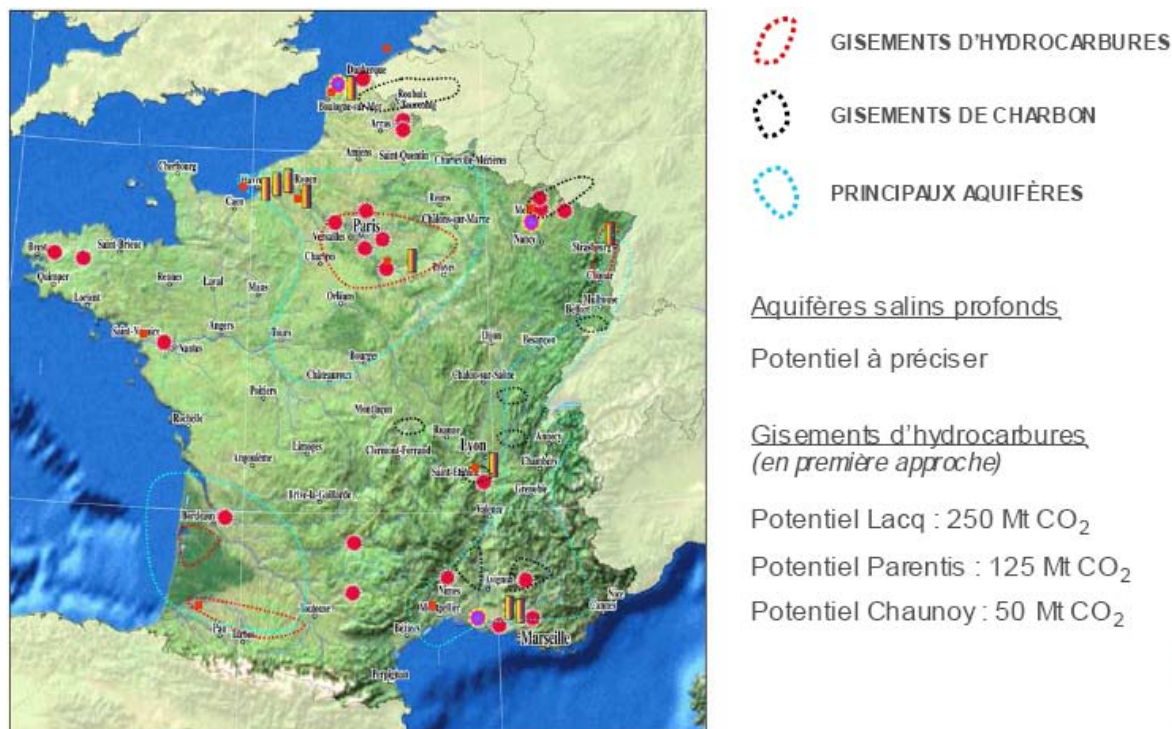


Figure 10 : Principaux sites potentiels de stockage géologique de CO₂ en gisements d'hydrocarbures épuisés en France (de Marliave, 2007)

2.3.3 GISEMENTS DE CHARBON

2.3.3.1 PRINCIPE DU STOCKAGE

Le charbon est une roche sédimentaire formée au cours des temps géologiques à partir de la macération de matières organiques. Au-delà de son caractère énergétique, le charbon est un milieu hétérogène et microporeux qui est caractérisé par une très grande surface spécifique interne, de l'ordre de 20 à 400 m²/g (Metstor, 2008 ; Pokryszka, 2009). Cette propriété lui confère un potentiel théorique important de stockage de gaz, par adsorption du gaz dans la structure interne du charbon d'une part et par emmagasinement comme gaz libre dans les vides (macroporosité, fissures, fractures...) d'autre part :

- du fait de la très grande surface interne du charbon, l'adsorption est largement prépondérante et peut représenter 90% ou plus du gaz contenu dans le gisement ;
- en fonction de la porosité du charbon et de la pression d'équilibre du gaz, le gaz sous forme libre emmagasiné dans les pores pourra représenter jusqu'à 10% voire plus du volume total de gaz contenu dans le charbon ;

En considérant des pressions de gaz injecté de l'ordre de 5 à 6 MPa, les couches de charbon peuvent potentiellement emmagasiner à long terme par adsorption jusqu'à 40 m³ voire 60 m³ de CO₂ par tonne de charbon. Cette capacité d'emmagasinement correspond à au moins 5 fois (voire 10 fois pour les gisements de charbons les plus poreux) la quantité de gaz que peut renfermer une roche réservoir classique de volume semblable dans des conditions similaires. D'autre part, le risque de fuites est réduit dans ce cas car le CO₂ reste fortement adsorbé sur le charbon (Charrière et al, 2008).

Les différentes études réalisées pour évaluer le potentiel de stockage de CO₂ dans le charbon s'intéressent aux veines situées à des profondeurs telles que l'extraction en est absolument inenvisageable (Metstor, 2008). Cette solution a pour elle la proximité de nombreux sites industriels autrefois implantés au droit des gisements de charbon exploités : c'est notamment le cas des usines sidérurgiques du Nord et de l'Est de la France ainsi que de certaines centrales thermiques au charbon (Gardanne dans le bassin houiller de Provence).

Malgré la faible perméabilité naturelle des charbons français, qui amoindrit l'injectivité en CO₂, les gisements de charbon constituent, en France et plus généralement en Europe, un potentiel théorique important de stockage de CO₂, notamment au droit de certaines industries fortement émettrices de ce type de gaz (sidérurgie, centrales thermiques).

En outre, il convient de noter que l'adsorption du CO₂ aurait pour effet de désorber naturellement le gaz présent dans le charbon (grisou), essentiellement constitué de CH₄ : en effet, le potentiel d'adsorption du CO₂ sur le charbon est généralement deux fois plus élevé que celui du CH₄ (Charrière et al., 2008) et il est admis que l'on peut, lors de l'injection de CO₂, remplacer 1 mole de CH₄ par 2 à 5 moles de CO₂.

Cette caractéristique est très importante car, dans le cas d'un gisement contenant une quantité significative de CH₄, celui-ci pourrait être récupéré à des fins industrielles en parallèle avec l'injection de CO₂ (Figure 11). Il s'agit de la technique de récupération assistée du méthane dans les veines de charbon (Enhanced Coal Bed Methane Recovery ou ECBM – voir précisions au paragraphe 2.7). Le stockage du CO₂ en gisement houiller peut alors devenir économiquement attractif, sachant que les gisements houillers en France ont classiquement des teneurs totales en méthane de l'ordre de 5 à 25 m³/tonne de charbon (Gaucher et al., 2007).

Ainsi, aux Etats-Unis, le méthane issu des veines de charbon est devenu depuis une vingtaine d'années, une source importante et non conventionnelle de gaz naturel (Shi et Durucan, 2005). L'injection de CO₂ dans les veines de charbon pour augmenter la récupération de CH₄ est une technologie qui pourrait permettre d'augmenter l'efficacité de la production de méthane tout en stockant des volumes importants de CO₂ anthropique.

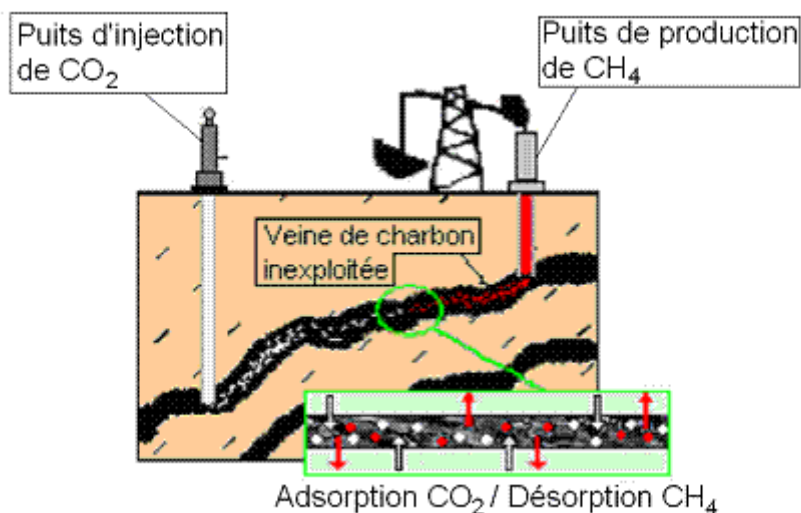


Figure 11 : Stockage géologique du CO₂ en gisement houiller avec récupération du CH₄ (Pokryszka, 2009)

2.3.3.2 SITES DE STOCKAGE EXISTANTS OU POTENTIELS DANS LE CHARBON

A ce jour, il n'existe qu'un seul cas d'application industrielle de stockage géologique de CO₂ en gisement houiller. Il concerne le bassin charbonnier de San Juan aux Etats-Unis (Nouveau-Mexique et Colorado) qui présente des perméabilités élevées. Depuis 1996, ce gisement a reçu l'injection de plus de 100 ktCO₂ avec une augmentation significative de la production conjointe de CH₄.

Au Canada, un mini-pilote d'injection a temporairement été exploité : il a montré la difficulté à prédire le comportement du gaz, notamment en raison du gonflement du charbon qui a significativement réduit sa perméabilité (Holloway, 2002).

En France, le projet Metstor (2008) s'est porté sur un exemple d'évaluation de la capacité théorique de stockage du CO₂ sur une partie non exploitée du Bassin Houiller de Gardanne, situé entre Marseille et Aix-en-Provence (Figure 12), mais aucun projet industriel de stockage géologique de CO₂ dans ce type de gisement n'est en cours.

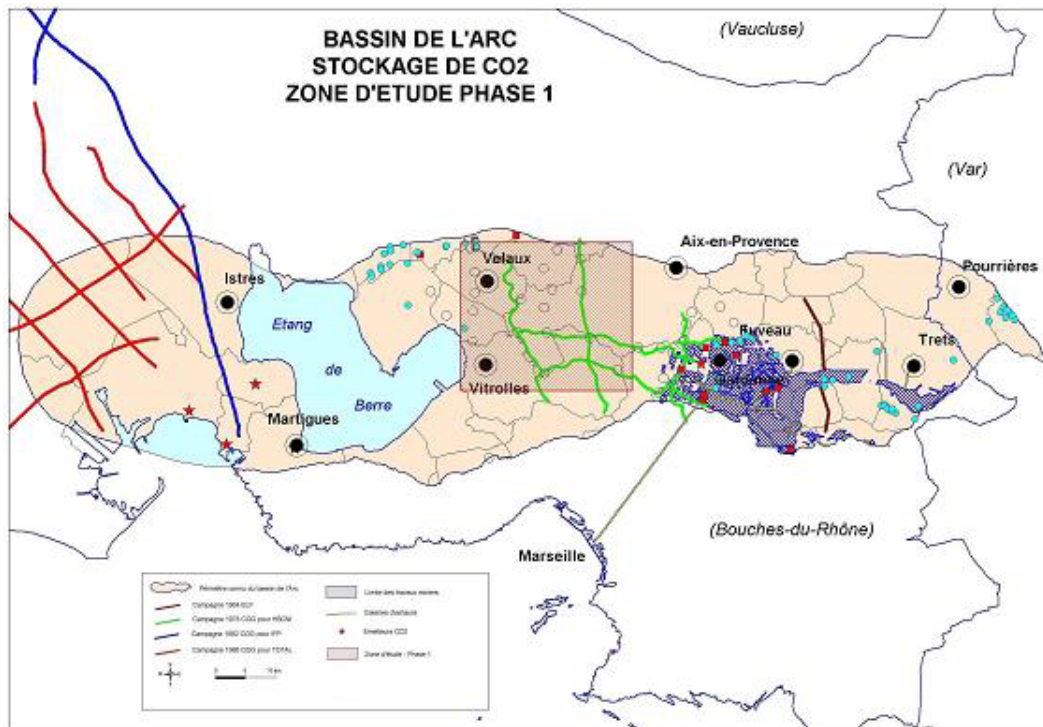


Figure 12 : Le bassin de l'Arc (BRGM, IFP, INERIS, SNET, 2004 - 2005)

L'exemple du bassin houiller de Gardanne tient compte de paramètres du gisement connus ou estimés dans le cadre du programme RTPG « Filière du charbon propre ». Le Tableau 4 présente ainsi les résultats obtenus pour certains panneaux du gisement situés entre 500 et 1 500 m de profondeur, en supposant une pression de CO₂ de 5 MPa. Pour situer l'ordre de grandeur, la capacité de stockage ainsi estimée correspond à environ 20 ans d'émission de CO₂ de la centrale thermique de Gardanne située à proximité du site de stockage analysé.

Tranche de profondeur (m)	500 à 1 000	1 000 à 1 500
Superficie du gisement (km ²)	40	89
Volume de charbon brut (Mm ³)	159	447
Volume de charbon pur (Mm ³)	143	402
Porosité moyenne du charbon (%)	10	10
Température du milieu (°C)	27	32
Pression finale de gaz (MPa)	5	5
Capacité d'adsorption du CO ₂ (t/t)	0,074*	0,070*
Capacité totale de stockage (adsorption et porosité) (Mt)	17	45

* en tenant compte de la présence de gaz originels non récupérés et de la température du gisement

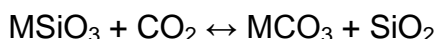
Tableau 4 : Estimation des capacités théoriques de stockage de CO₂ dans la zone Vitrolles Aix-en-Provence du Bassin Houiller de Gardanne pour une pression finale de gaz de 5 MPa (Metstor, avec participation de l'INERIS, 2008)

2.3.4 ROCHES BASIQUES ET ULTRABASIQUES

2.3.4.1 PRINCIPE DU STOCKAGE

De gigantesques formations de roches basiques et ultrabasiques existent dans de nombreux endroits du monde. Elles jouent un rôle majeur dans le cycle du carbone, notamment en réagissant naturellement avec le CO₂ (Metstor, 2008). Ces interactions impliquant la roche et le CO₂ atmosphérique produisent des carbonates au détriment des silicates présents dans les minéraux constitutifs des roches basiques et ultrabasiques. Ce phénomène de minéralisation est susceptible de retenir le carbone pendant plusieurs millions d'années, soit un temps largement compatible avec un rééquilibrage de l'atmosphère terrestre.

Le principe est donc d'injecter du CO₂ dans des terrains potentiellement donneurs de cations, en milieu acide, afin de provoquer la précipitation de carbonates ou « carbonatation ». Cette carbonatation est régie par une réaction minérale simple qui s'écrit sous la forme (Metstor, 2008) :



où M est un cation (généralement divalent : Mg²⁺, Fe²⁺, Ca²⁺, etc.). A haute température, cette réaction peut se produire directement par interaction avec les fluides mais à basse température, ce qui serait le cas des conditions réelles de stockage de CO₂, plusieurs étapes sont nécessaires pour aboutir à l'apparition des phases carbonatées susceptibles de piéger le CO₂.

Contrairement au cas des aquifères salins profonds, les formations sédimentaires adaptées à ce type de stockage sont peu nombreuses. Par contre, les roches d'origine mantellique contiennent en quantité des minéraux silicatés riches en Ca, Fe et Mg, et sont donc des candidats potentiels pour la minéralisation du carbone : ce sont principalement l'olivine, l'orthopyroxène, le clinopyroxène et la serpentine. La quantité stockée peut atteindre – voire dépasser – 1200 kgCO₂/m³ de roche soit, par exemple, 80 fois plus que les grès formant certains aquifères salins profonds (Xu et al., 2004). D'autres phases minérales sont également susceptibles de réagir avec le CO₂ comme les spinelles, les feldspaths et les verres basaltiques.

Sur le plan pétrographique, les roches candidates devront être riches en cations, ce qui va généralement de pair avec une pauvreté en silicé. On distingue ainsi les roches basiques (basaltes, phonolites, ophiolites, gabbros, etc.) et les roches ultrabasiques, encore plus pauvres en silice, comme les péridotites ou les serpentinites.

2.3.4.2 POTENTIALITES DE STOCKAGE EN FRANCE METROPOLITAINE ET OUTREMER

Depuis le Précambrien, la France a connu de nombreux épisodes magmatiques et volcaniques qui ont produit des roches basiques. Le Massif Central constitue la portion du territoire où le magmatisme a été le plus actif et où l'on retrouve les terrains volcaniques les plus étendus à l'affleurement. On peut estimer à 9 300 km², soit 1,7 % du territoire, la superficie totale couverte par les formations basiques et ultrabasiques en France continentale.

En Corse, la carte géologique montre un paysage magmatique contrasté. Alors que la Corse centrale et méridionale est essentiellement granitique, la pointe nord renferme des terrains basiques et ultrabasiques (ophiolites, serpentinites).

Outremer, les roches basaltiques sont majoritairement présentes en Polynésie, dans les Antilles et à l'île de la Réunion alors que la Nouvelle Calédonie présente de vastes domaines de roches ultrabasiques (péridotites, serpentinites, etc.). Sur l'île principale de la Grande Terre, ces roches recouvrent ainsi près d'un tiers des territoires émergés soit 5 500 km², le Grand Massif du Sud étant l'un des plus grands massifs ultrabasiques au monde.

En outre, suite à l'exploitation minière intensive dans ces massifs, des terrils de roches ultrabasiques ont été (et sont encore) massivement produits : ils pourraient être utilisés par des procédés de carbonatation du CO₂.

Cependant, l'absence de données pétrophysiques, géophysiques et hydrogéologiques suffisamment précises sur ces formations, notamment à grande profondeur, rend actuellement délicate l'estimation de leurs capacités réelles en termes de volume de stockage pour le CO₂ (Metstor, 2008).

En outre, les volumes stockables sont probablement réduits par rapport aux autres types de réservoirs, en particulier en France métropolitaine. Cette solution pourrait néanmoins être intéressante localement pour les territoires riches en roches ultrabasiques (La Nouvelle Calédonie, localement la Corse) ou basiques (La Réunion, la Corse et dans une moindre mesure le Massif Central).

2.4 NATURE DU FLUIDE INJECTE

2.4.1 LE CO₂

Le fluide injecté sera essentiellement composé de CO₂. Celui-ci pourra se trouver dans deux états différents selon le type de réservoir géologique ciblé :

- CO₂ gazeux essentiellement pour les gisements de charbon inexploités, du fait de la forte capacité d'adsorption de ce gaz par le charbon ;
- CO₂ supercritique pour les aquifères salins profonds, les gisements épuisés d'hydrocarbures et les roches basiques/ultrabasiques du fait de la profondeur des réservoirs ciblés.

L'état supercritique est intermédiaire entre l'état gazeux et l'état liquide (voir Annexe 9.1) : un fluide supercritique se caractérise par une masse volumique comparable à celle d'un liquide mais avec des propriétés de transport (viscosité) comparables à celles d'un gaz. Dans le cas du CO₂, ce changement d'état survient à partir d'un « point critique » situé aux alentours de 31°C et de 7,4 MPa (Figure 2).

En ce qui concerne la toxicité, le CO₂ n'est pas à proprement parler un gaz toxique (sauf à forte concentration, voir Annexe 1) mais il a néanmoins des effets directs sur la santé humaine. Avant tout, c'est un gaz inerte pouvant se substituer à l'oxygène de l'air : une atmosphère sous oxygénée peut conduire à la mort par asphyxie si la teneur en oxygène se raréfie. Le dioxyde de carbone est également le régulateur de la respiration. Une augmentation de la teneur en CO₂ de l'air inhalé cause une accélération importante du rythme de la respiration entraînant rapidement la perte de

conscience, puis l'arrêt irréversible des centres nerveux et des fonctions respiratoires et cardiaques.

Plusieurs valeurs seuils sont mentionnées dans la littérature. En France, celles qui sont recommandées par le Ministère sont les suivantes : 10% pour les premiers effets létaux (1% de létalité) et 5% pour les effets irréversibles (il s'agit de % de volume dans l'air).

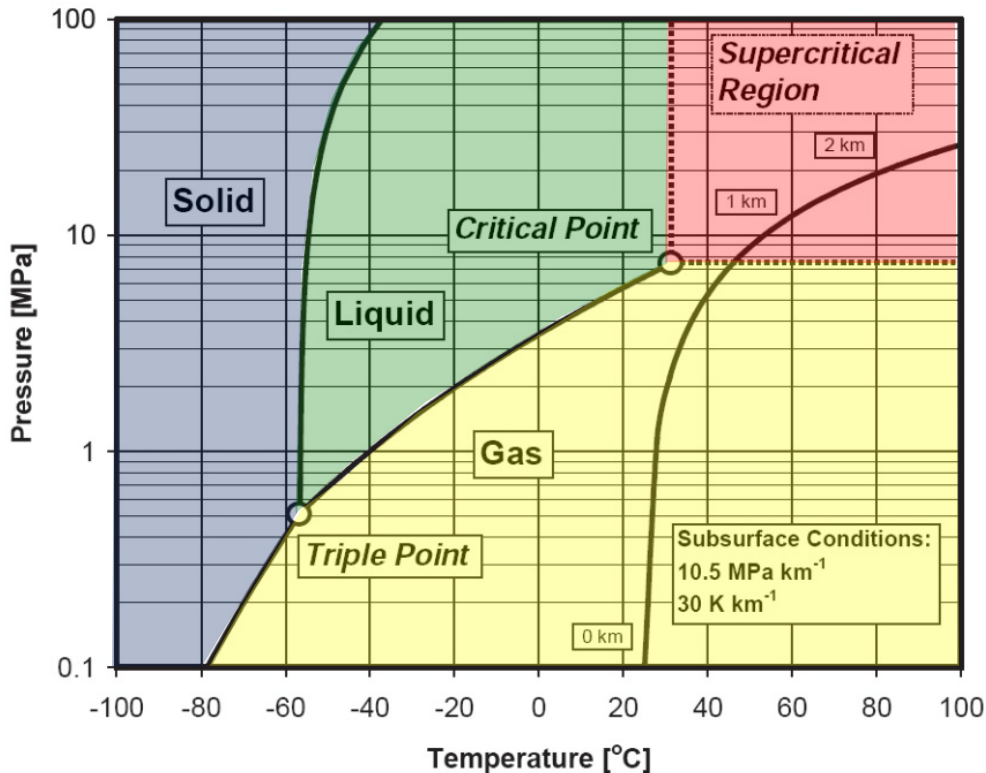


Figure 13 : Gammes de changement d'état du CO₂ (Span & Wagner, 1996 – le point critique correspond à $T = 31^{\circ}\text{C}$ et $P = 7,4 \text{ MPa}$)

L'intérêt d'injecter et de stocker le CO₂ sous forme supercritique est la réduction drastique de volume qui accompagne ce changement de phase . Ainsi, un volume de 1 000 m³ de CO₂ gazeux en surface se réduit à seulement 3,8 m³ de CO₂ supercritique. Dans le sous-sol, en conditions hydrostatiques, le CO₂ sera à l'état supercritique à partir de 800 m de profondeur (voir Figure 14).

Ce volume diminue encore légèrement jusqu'à 2 000 m de profondeur, pour atteindre 2,7 m³, puis la diminution de volume devient négligeable (alors que le coût d'injection augmente significativement).

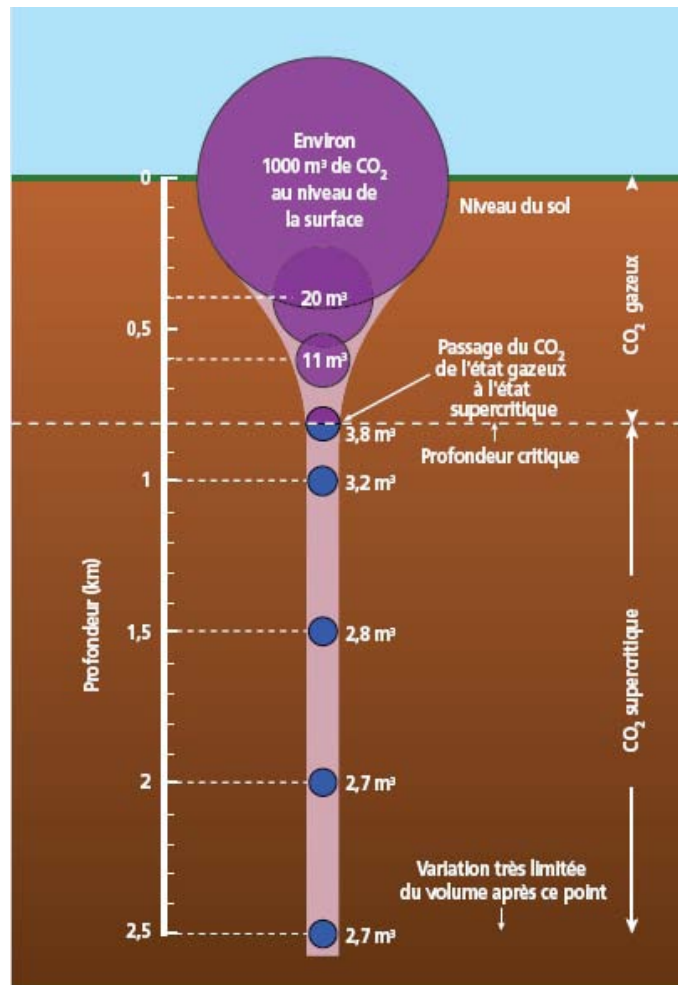


Figure 14 : Diminution de volume du CO₂ en fonction de la profondeur de stockage (CO₂GeoNet, 2008)

Les conditions de pression et de température nécessaires pour maintenir le CO₂ à l'état supercritique à toutes les phases de la filière sont les suivantes :

- en surface, le CO₂ devra être artificiellement maintenu à au moins 7,4 MPa et 31°C pour pouvoir être transporté et injecté à l'état supercritique ;
- en profondeur, viendra s'ajouter une pression hydrostatique d'environ 10,5 MPa/km et un gradient géothermique de l'ordre de 30°C/km (BRGM, 2004).

Ainsi, à titre d'exemple, les conditions d'équilibre seront :

- à 1000 m. de profondeur, de 60°C et 18 MPa environ ;
- à 2000 m. de profondeur, de 90°C et 28 MPa environ.

2.4.2 LES IMPURETES

Sur le plan législatif, la directive européenne 2009/31/CE relative au stockage géologique du dioxyde de carbone stipule dans son article 12 : « Un flux de CO₂ est majoritairement composé de dioxyde de carbone. À cet effet, aucun déchet ni autre matière ne doit y être ajouté en vue de son élimination. Cependant, un flux de CO₂ peut contenir des substances qui se sont accidentellement associées dès la source ou lors des opérations de captage ou d'injection et des substances traces peuvent y être ajoutées afin d'aider à contrôler et à vérifier la migration du CO₂. Les concentrations de ces substances sont inférieures aux niveaux qui seraient susceptibles :

a) de compromettre l'intégrité du site de stockage ou des infrastructures de transport appropriées ;

b) de présenter un risque significatif pour l'environnement ou la santé humaine ; ou

c) d'enfreindre les dispositions de la législation communautaire applicable ».

Jacquemet et al. (2007) précisent que le gaz en provenance d'une unité productrice d'électricité est « un CO₂ impur » et que la nature et la teneur des impuretés « seront fonction du type de combustible employé, du type de procédé de conversion énergétique de la centrale et du type de procédé de captage ».

Ainsi, dans le cas de l'oxycombustion il y aura environ 10% d'impuretés dans le CO₂ produit dont « le triplet N₂+O₂+Ar, les SO_x et les NO_x » ainsi que de l'eau. Or, on sait qu'à partir du SO₂, il peut se produire de l'acide sulfurique (après dissolution-dissociation et oxydation dans l'eau), ce qui peut engendrer – pour les injections en aquifère – une attaque sulfatique des ciments des puits d'injection ainsi que du réservoir dans le champ proche-puits.

En ce qui concerne les rejets industriels, Lachet et al. (2007) indiquent que le CO₂ capturé contiendra également des contaminants comme SO₂, NO_x, H₂S, N₂, O₂, Ar, H₂O, etc. Leur concentration pourra atteindre 0,2% à 10% en volume.

Dans le cas des procédés de post-combustion, le CO₂ capté contiendra nécessairement une part de l'absorbant utilisé (ex : une amine). Cependant, des impuretés peuvent également être observées dans le cas de l'oxycombustion, par exemple des complexes métalliques. Hoteit et al (2007) ont ainsi testé un procédé de combustion aux oxydes métalliques recyclables qui prévoit une combustion en boucle chimique (« chemical looping ») grâce à l'oxygène fournie par un oxyde métallique (ici le NiO-NiAl₂O₄) au lieu de l'oxygène de l'air. Au final, on obtient des fumées « composées majoritairement de gaz carbonique et de vapeur d'eau d'une part, et de l'oxyde métallique réduit, d'autre part ».

Le captage du CO₂ étant actuellement le chaînon le plus coûteux de toute la filière CSC, la course au rendement énergétique risque de se traduire par un recours plus important aux solvants, donc par un degré d'impuretés plus fort du CO₂ obtenu. Ainsi, Camy-Portenabe & Bouillon (2007) signalent-ils déjà que l'utilisation d'un solvant plus concentré en amine (40% au lieu de 30%) engendrera un gain énergétique de 6% dans le coût de captage postcombustion du CO₂.

Enfin, une étude INERIS en cours montre que les rejets issus d'installations de combustion, comme de tout procédé de traitement des hydrocarbures, contiennent des composés inorganiques (métaux principalement : Pb, Cd, etc.) et des composés organiques (COV : composés organiques volatils, HAP : Hydrocarbures aromatiques polycycliques) dotés d'un certain potentiel toxique. Les quantités sont a priori très faibles, mais il conviendra d'en étudier le devenir à long terme.

2.5 LES DIFFERENTES PHASES DE LA VIE DE LA FILIERE

Comme défini au 1.2.1 (voir également Figure 1), les principales périodes de vie d'une filière CSC complète sont :

- La période de conception

Préalablement à la réalisation d'un stockage géologique, lorsque les études de pré faisabilité puis de faisabilité technique ont validé le choix du site, la première étape consiste en la réalisation d'un « état zéro ». Dans le cas du stockage géologique de CO₂, une partie importante de cet état zéro concernera la mesure du flux de CO₂ naturellement émis par le site, préalablement à toute injection.

- La période d'exploitation, d'une durée de 40 à 50 ans environ, elle-même subdivisée en une phase d'injection suivie d'une phase de fermeture.

La « période d'exploitation », telle que définie en 1.2.1, commencera par le creusement du (ou des) puits d'injection – vraisemblablement en parallèle à la construction des unités de captage. Le forage terminé sera ensuite équipé par un cuvelage métallique, destiné à prévenir tout risque d'éboulement des terrains traversés, qui devra être cimenté sur toute sa hauteur afin d'assurer une parfaite étanchéité. L'équipement du forage sera complété par des vannes et une tête de forage destinée à son raccordement sur la canalisation d'amenée du CO₂.

A ce stade, la phase d'injection pourra débuter par la réalisation préalable de tests d'injectivité afin de régler le débit et la pression d'injection en fonction des caractéristiques du site. La durée d'injection prévisible sera de l'ordre de quelques dizaines d'années (20 à 50 ans a priori, au vu des potentiels des sites de stockage et du retour d'expérience sur les stockages souterrains d'hydrocarbures). Les quatre maillons de la chaîne CSC fonctionnent alors (captage, transport, injection, stockage) avec, en outre, la mise en place d'une surveillance serrée du stockage.

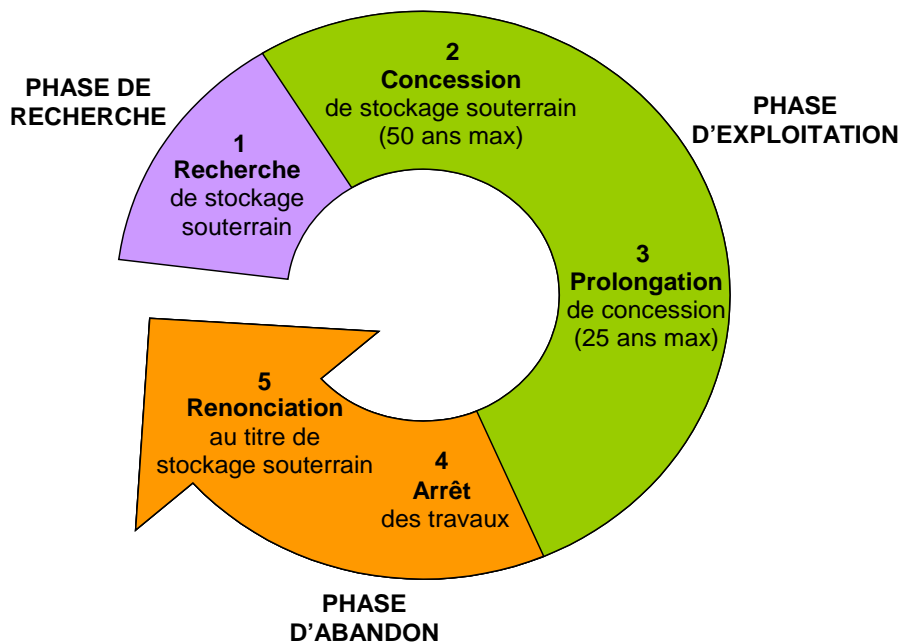


Figure 15 : Phases de vie d'un stockage souterrain d'hydrocarbures (Charmoille & Thoraval, 2008)

A la fin de cette période, le (ou les) puits d'injection seront fermés et comblés par un matériau inerte sur toute leur hauteur. Commencera alors la phase de fermeture du site qui devrait durer une à deux dizaine(s) d'années.

- La période d'abandon, d'une durée de l'ordre d'un millénaire,

A la suite de la période d'exploitation, le site sera abandonné et sa responsabilité sera transférée à une autorité administrative compétente qui devra en assurer la surveillance pendant plusieurs dizaines d'années. Commence alors la période d'«abandon» – qui sera également subdivisée en deux phases :

- Une phase de mémoire pendant laquelle l'humanité conserve la mémoire du stockage et des risques associés et peut de ce fait continuer à assurer une surveillance, active ou allégée, du site ;
- Une phase de long terme (ou d'oubli), la plus longue (700 à 800 ans) au cours de laquelle l'existence même du stockage et des risques associés aura été oubliée.

2.6 LA REGLEMENTATION EN MATIERE DE CSC

Du point de vue réglementaire, on doit distinguer les activités de surface et souterraines. Les premières (captage et transport du CO₂) ne comportent pas de spécificités majeures par rapport aux autres activités industrielles et peuvent donc sans difficulté être encadrées en France par les dispositions du Code de l'Environnement. En revanche, la réglementation en matière de stockage géologique du CO₂ proprement dit est toujours en cours d'élaboration. A priori, elle combinera les usages relatifs au Code Minier et ceux relatifs au Code de l'Environnement.

Actuellement deux principaux textes ont été élaborés (voir Annexe 9) : la Directive européenne 2009/31/CE du 23 avril 2009 et un texte français communément appelé « Grenelle 2 ». Les points fondamentaux de la Directive sont les suivants :

- Elle concernera les stockages de CO₂ de capacité supérieure à 100 kt⁸ situés dans les pays de l'Union Européenne et leur Zone Economique Exclusive (ZEE) ; le CO₂ est destiné à être « confiné parfaitement et en permanence » (rédaction du projet de fin 2008 : « indéfiniment confiné »).
- Elle affirme le principe des permis d'exploration pour chercher les sites de stockage potentiels dans une zone donnée, puis des permis de stockage . Pour ces derniers, le dossier de demande et le permis émis devront inclure une caractérisation du site de stockage, une évaluation de la sécurité et de l'impact environnemental, les mesures de surveillance, les mesures correctives en cas de problème, les mesures à mettre en place au moment de la fermeture.⁹
- Le flux de CO₂ injecté devra être majoritairement composé de CO₂ sans ajout d'autres matières, à l'exception des impuretés produites lors du processus de combustion, de captage ou d'injection et des éléments ajoutés pour faciliter la surveillance du site (traceurs).
- Des « utilisateurs » (producteurs de CO₂) pourront avoir accès à un réseau de transport et à des sites de stockage qui seront opérés par des « exploitants ».

⁸ En-deçà de ce seuil, on se place dans le cadre d'une installation de recherche.

⁹ La Directive affirme en son article 1 que « l'objectif du stockage géologique du CO₂, en toute sécurité pour l'environnement, est le confinement permanent du CO₂ de façon à prévenir et, lorsque cela est impossible, à supprimer le plus possible les effets néfastes et tout risque pour l'environnement et la santé humaine. »

- La fermeture d'un site sera prononcée à l'arrêt définitif de l'injection de CO₂ mais l'opérateur en restera responsable et devra en assurer la surveillance pendant une période à définir.
- Le transfert de responsabilité à une autorité compétente (qui devra en assurer la surveillance) aura lieu après démantèlement des installations d'injection, condamnation des puits et versement d'une somme correspondant au coût de la surveillance pendant une certaine période.

Au niveau national, la loi « Grenelle 1 » (21/10/2008) a créé un groupe de travail sur la lutte contre les changements climatiques et a prôné une division par quatre des émissions françaises de gaz à effet de serre d'ici 2050 ; elle prévoit l'amplification des efforts de recherche et de développement pour expérimenter le captage et le stockage industriel du CO₂, comprenant le financement de la mise au point des pilotes pour la filière CSC et la validation des orientations technologiques à prendre par la suite. Le second texte, intitulé « Loi d'engagement national pour l'environnement » (dit « Grenelle 2 »), est encore à l'état de projet mais a été examiné à l'Assemblée et au Sénat ; il contient un article 28 spécifique pour la filière CSC :

- Contrairement à la Directive, ce texte vise uniquement les sites pilotes, en précisant qu'ils ne devront pas excéder 500 000 tonnes (ni 5 ans d'exploitation).¹⁰
- Les sites devront respecter à la fois les intérêts du Code Minier et ceux du Code de l'Environnement. L'acte d'autorisation sera délivré après enquête publique et le dossier de demande comprendra une étude des dangers. Un mécanisme de garantie financière est prévu, afin d'assurer à la fois la surveillance du site et le maintien en sécurité de l'installation, en incluant la remise en état après fermeture.
- L'acte d'autorisation déterminera la composition du gaz injecté, la durée d'injection et la masse injectée (< 500 000 t), les caractéristiques du site de stockage (périmètre et formations géologiques concernées), ainsi que d'autres éléments qui seront à préciser par un décret en Conseil d'Etat.
- Les autorités compétentes pourront imposer des études complémentaires, en amont ou durant l'exploitation et, au moment de la fermeture, des travaux ou des mesures de surveillance
- Un bilan d'exploitation sera fourni chaque année ; parallèlement un comité local d'information et de concertation sera mis en place.
- Une déclaration d'utilité publique est possible si le titulaire de l'autorisation n'est pas le propriétaire du sol. Parallèlement, le transport par canalisation constitue une opération d'intérêt général – comme pour d'autres produits.

¹⁰ Le titre précise «sites pilotes de stockage », mais il semble bien que c'est l'ensemble de la filière qui est concerné : captage et transport, notamment. Par ailleurs, ce texte sera vraisemblablement complété par un autre qui encadrera l'usage des sites définitifs de stockage, et qui transcrira notamment la Directive.

2.7 LES RETOURS D'EXPERIENCE UTILES POUR L'EVALUATION DES RISQUES

2.7.1 LES ANALOGUES INDUSTRIELS

2.7.1.1 LE STOCKAGE DE GAZ NATUREL ET D'HYDROCARBURES

Les sites industriels de stockage de gaz (gaz naturel ou gaz carbonique) peuvent être considérés comme des analogues industriels des futurs sites de stockage géologique du CO₂. De nombreuses similarités existent en effet (transport du gaz, technique de forage, prospection du réservoir, modélisation, surveillance des fuites) mais des différences majeures sont à noter :

- le CO₂ est un gaz agressif vis-à-vis des tubages en acier et des ciments classiquement utilisés (en revanche il n'est ni inflammable ni explosif) ;
- les sites de stockage géologique de CO₂ seront mis en pression pendant toute la durée d'injection alors que les sites de stockage de gaz ou d'hydrocarbures sont généralement remplis et vidés de manière cyclique ;
- les sites de stockage géologique de CO₂ seront abandonnés une fois remplis alors que les sites de stockage de gaz ou d'hydrocarbures sont vidés autant que possible avant leur abandon ;
- la durée de vie d'un site de stockage géologique de CO₂ devra être de plusieurs centaines à milliers d'années alors qu'elle n'est pas destinée à excéder a priori une centaine d'années dans le cas d'un stockage de gaz.

L'Agence Internationale de l'Energie (IEA en anglais) a estimé que 340 milliards de m³ de gaz naturel sont actuellement stockés dans le monde au sein de 634 installations souterraines de stockage réparties dans 25 pays (IEA, 2006) : ce volume est l'équivalent de 910 Mt de CO₂. La plupart des stockages de gaz naturel du monde se font en gisements épuisés d'hydrocarbures (83,5%) et en aquifères (12,6%). En France cependant, du fait du manque de gisements d'hydrocarbures, 79% des stockages de gaz naturel sont réalisés en aquifère. Au nombre de 14, ils sont situés entre 400 et 1 630 m de profondeur et seulement le tiers d'entre eux dépasse la profondeur de supercriticité du CO₂. La capacité de ces stockages de gaz en milieu poreux (aquifères et gisements épuisés d'hydrocarbures) en France varie de 475 à 7 000 Mm³ de gaz, soit l'équivalent de 1 à 15 MtCO₂ (Charmoille & Thoraval, 2008).

En prenant en compte à la fois les analogues industriels et les analogues naturels (voir § 2.7.2), on dispose d'un retour d'expérience qui concerne les puits de CO₂ et de CH₄ dans des réservoirs naturels de CO₂ ou dans des sites de stockage souterrain de gaz.

La durée cumulée de stockage dans les différents sites mondiaux est de l'ordre 20 000 ans alors que le nombre d'accidents recensés depuis 1970 est de 17 (IEA, 2006). La fréquence des accidents est donc de $8,39 \cdot 10^{-4}$ site⁻¹ an⁻¹ soit une durée de retour de 1 192 ans par site. En tenant compte du nombre de puits, on arrive à une probabilité d'accident de $2,02 \cdot 10^{-5}$ puits⁻¹ an⁻¹ et une durée de retour de 49 505 ans par puits. Lewicki et al. (2006) font cependant remarquer que, d'une façon générale, les fuites sont assez peu relatées dans la littérature.

2.7.1.2 LA RECUPERATION ASSISTEE D'HYDROCARBURES PAR INJECTION DE CO₂

Il existe plus de 70 sites de récupération assistée d'hydrocarbures dans le monde (EOR et EGR, Enhanced Oil (resp. Gas) recovery) dont 59 dans le seul état américain du Texas (House of Commons, 2006). Le site le plus connu est celui de Weyburn au Saskatchewan (Canada) dans lequel il est prévu d'injecter 20 MtCO₂ entre 2000 et

2015, parallèlement à l'extraction de 122 millions de barils de pétrole. Cependant, le site de Rangely (Etats-Unis) a déjà donné lieu à une injection de 25 MtCO₂ depuis sa mise en fonction en 1986 et le site de West Pearl Queen (Etats-Unis) 2,1 MtCO₂ depuis 2002.

On notera également le projet néerlandais CRUST qui a débuté en 2004 afin de faciliter la récupération de gaz naturel. Il prévoit d'injecter approximativement 8 MtCO₂ au rythme de 0,02 à 0,50 MtCO₂/an. Le CO₂ est injecté par GDF-Suez dans le réservoir sableux offshore à l'aide du puits dénommé K12B.

2.7.1.3 LA RECUPERATION ASSISTEE DE METHANE DANS LES VEINES DE CHARBON.

En ce qui concerne la récupération assistée de méthane au sein des gisements de charbon (ECBMR, déjà présenté au paragraphe 2.3.3), il n'existerait à ce jour que des projets pilotes d'après le rapport britannique House of Commons (2006) :

- projet COAL-SEQ dans un charbon particulièrement perméable du Nouveau-Mexique (USA) ;
- projet RECOPOL en Pologne qui, en 2003, a injecté 10tCO₂ dans un charbon du Carbonifère à raison de 1t/jour ; cet essai a montré que les gisements européens de charbons de l'ère Primaire nécessiteraient un stade préalable de fracturation artificielle afin d'augmenter leur perméabilité ;
- projet pilote d'injection dans le bassin de Qinshui dans l'Est de la Chine ; ce micro-pilote¹¹ d'injection a permis d'injecter 200 tCO₂ en 1 mois afin de modéliser la récupération assistée de méthane (Jianping et al. 2007).

Cependant, depuis 2003, le Japon dispose également d'un pilote à petite échelle d'injection de CO₂ en gisement de charbon à 900 m de profondeur : il s'agit du site démonstrateur de Yubari où seulement 200 tCO₂ ont été injectés, à raison de 10t/jour dans un charbon du Tertiaire.

On notera qu'en 1998, le Canada a disposé d'un petit site démonstrateur à Fenn Big Valley où 200 tCO₂ ont été injectées dans un charbon du Crétacé.

Enfin, un site expérimental d'injection de 1500 à 2000 tCO₂ va être mis en place dans une mine de charbon espagnole dans le cadre du programme RFCS¹² « Carbolab » qui a débuté en 2009.

2.7.1.4 LE STOCKAGE GEOLOGIQUE DE DECHETS RADIOACTIFS

La problématique du stockage géologique de déchets radioactifs présente un certain nombre de similitudes avec celle du stockage géologique du CO₂ (Benson et al., 2002) :

- nécessité d'une longue phase de sélection préalable du site de stockage pressenti, justifiée par des études pluridisciplinaires (géologiques, environnementales, sanitaires et sociétales) ;
- caractérisation de l'environnement rapproché et éloigné du site sur plusieurs dizaines à centaines de km² (hydrogéologie, géophysique, géochimie, mécanique des roches, mesures en laboratoire, tests *in situ*, analyse de données, modélisation mathématique, etc.) ;

¹¹ ce micro-pilote fait partie d'un vaste projet de récupération assistée de méthane qui a débuté en 2005 et qui prévoit, d'ici 2010, le creusement de 400 puits et la production de 5 Mm³ de méthane.

¹² Research Fund for Coal and Steel

- nécessité de développer une méthodologie d'analyse de risques à long terme comme la méthode FEPs¹³ (mise au point pour l'industrie nucléaire notamment aux Etats-Unis), les méthodes probabilistes, etc. ;
- questionnement quant à la pertinence des modèles mathématiques utilisés pour simuler l'écoulement et le transport sur une période de temps (quelques millénaires), largement supérieure à celle pour laquelle ils ont été conçus et testés ;
- nécessité de créer une législation spécifique et pluri-générationnelle pour la gestion à long terme de ces sites.

De ce fait, Abou Akar et al. (2005) considèrent que les méthodes d'évaluation des risques pour les stockages de déchets radioactifs « sont les plus pertinentes et disponibles pour l'évaluation des risques du stockage de CO₂ ». Il précise également que le rôle de la modélisation à long terme (plusieurs milliers d'années) des phénomènes couplés thermo-hydro-mécano-chimiques est crucial dans les deux cas. Or, cette modélisation est bien développée et avancée pour les stockages de déchets radioactifs.

Cependant, il existe également des différences sensibles qui font que la technologie mise au point pour l'étude des sites de stockage de déchets radioactifs ne sera pas directement transposable à la technologie CSC (Benson et al., 2002) :

- Contrairement aux radionucléides, le CO₂ n'est pas considéré comme un produit toxique à faible concentration et il ne présente pas d'effet cumulatif à long terme sur les organismes.
- Les sites de stockage de déchets radioactifs seront limités à quelques uns dans les pays industriels disposant d'une technologie basée sur le nucléaire alors qu'il devrait y avoir, à terme, plusieurs milliers de sites de stockage géologique de CO₂ répartis dans le monde.
- Le stockage de déchets radioactifs est basé sur le concept des barrières multiples. Ainsi, le premier niveau de sécurité des stockages de déchets radioactifs est artificiel et consiste en la mise en place de barrières actives (vitrification des déchets, stockage dans des conteneurs en acier ou en béton). Pour sa part, le stockage géologique du CO₂ devra reposer uniquement sur une sécurité naturelle de type passif (étanchéité des parois du réservoir souterrain).

2.7.2 LES ANALOGUES NATURELS

Certains formations souterraines renferment naturellement du CO₂ depuis des milliers voire des millions d'années : il s'agit de formations poreuses surmontées de terrains étanches (argiles, argilites, schistes) et alimentées par du CO₂ profond d'origine magmatique ou provenant de la décomposition thermique des carbonates lors de l'enfouissement à forte profondeur des roches sédimentaires (parfois des deux à la fois).

¹³ les « FEPs » pour « Features-Events-Processes » (dispositifs-événements-processus) ont été mis au point pour aider à l'analyse des risques dans le domaine nucléaire ; ils ne constituent pas à proprement parler une méthode, mais permettent d'identifier et de hiérarchiser tous les paramètres et événements impliqués dans le processus de stockage, tels que les caractéristiques d'un site, les techniques de confinement ou bien encore le comportement humain (Wagner & Kirkes, 2002 ; Abou Akar et al., 2005).

Ces formations peuvent donc être considérées comme des « analogues naturels » des futurs sites de stockage géologique de CO₂, d'autant plus que la plupart d'entre eux sont (ou on été) exploités par forages profonds et qu'un certain nombre fuient naturellement ou artificiellement. Pour Abou Akar et al. (2005), les analogues naturels permettent d'ailleurs d'étudier les différents aspects du dégagement de CO₂ en surface. Ce sont d'excellents sites de tests des techniques de mesure et de surveillance de la migration de CO₂ vers la surface.

En dépit de ces fuites, ces sites conservent du CO₂ du fait d'une productivité régulière en provenance des profondeurs. Lewicki et al. (2006) font cependant remarquer que certains de ces analogues naturels ont une vitesse de remplissage nettement inférieure aux futurs débits d'injection des sites de stockage géologique de CO₂ : ils ne pourront donc pas systématiquement fournir d'information sur les processus transitoires liés à la rapidité de l'injection comme les dommages géomécaniques localement induits par la (sur)pression.

Lewicki et al. (2006) ont recensé une douzaine d'analogues naturels étudiés dans le monde dans le but de caractériser les risques de fuites liés aux futurs sites de stockage géologique de CO₂ (Tableau 5). Lorsqu'elles parviennent en surface, les fuites naturelles sont généralement faibles et diffuses. C'est également ce que montre Lombardi (2007) en Italie, pays caractérisé par une intense activité volcanique et hydrothermale. Dans des conditions favorables, le CO₂ peut être piégé dans des réservoirs souterrains pendant plusieurs centaines de millions d'années et les fuites sont essentiellement dues aux failles actives ou récemment activées. En analysant plus de 16 000 échantillons de gaz du sol au droit de 4 000 km² de zones tectoniquement actives d'Italie, caractérisées par la présence de nombreuses sources carbogazeuses, Lombardi (2007) a obtenu une concentration volumique de CO₂ supérieure à 20% dans 0,15% des échantillons, ce qui représente 6 km².

Site	CO ₂ source	Geologic model for accumulation	Event triggering leakage	Pathway for leakage	Type of surface leakage
A1. Mammoth Mountain, CA USA	Magmatic + thermal decomposition of carbonates	Accumulation at ~2 km depth in porous/fractured rock under caprock	Seismic activity and reservoir pressurization	Faults and fractures	Fast, diffuse, vent, spring
A2. Solfatara, Italy	Magmatic + thermal decomposition of carbonates	Relatively shallow zone of fractured rock contains gas phase and overlies aquifers, then magma body at several km depth	No specific leakage event captured	Faults and fractures	Diffuse and vent
A3. Albani Hills, Italy	Magmatic + thermal decomposition of carbonates	Deep pressurized reservoirs in structural highs of sedimentary bedrock	Slow releases with several sudden large releases also occurring, possibly triggered by seismic activity	Faults and fractures	Diffuse, vent, spring/well, 1995 and 1999 events fast
A4. Clear Lake, CA, USA	Thermal decomposition of metasedimentary rocks, minor magmatic component	CO ₂ derived from liquid-dominated geothermal reservoir hosted in marine metasedimentary rocks	No specific leakage event captured	Faults and fractures	Gas vents, springs
A5. Latera caldera, Italy	Thermal decomposition of carbonates, magmatic component	CO ₂ accumulates in liquid-dominated, carbonate geothermal reservoir capped by hydrothermally altered volcanics	No specific leakage event captured	Faults and fractures	Diffuse, vent, spring
A6. Mátraderecske, Hungary	Geothermal/copper-zinc mineralization	CO ₂ accumulates in karst water reservoir (~1 km depth)	No specific leakage event captured	Faults and fractures	Diffuse, vent, spring
A7. Dieng, Indonesia	Magmatic	Unknown	Volcanic, possibly "pneumatic", eruptions	Fissure	Eruptive, gas vents, springs
A8. Southern Negros, Philippines	Geothermal	Unknown	Unknown	Faults	Gas vents, springs, diffuse (kaipohans)
A9. Rabaul, Papua New Guinea	Magmatic	Unknown	Unknown	Fractures	Fast, vent
A10. Lakes Monoun and Nyos, Camaroon	Magmatic	Accumulation in deep lake and stable stratification	Rapid lake turnover triggered at Monoun by landslide; Nyos trigger unknown	NA	Eruptive (limnic)
A11. Laacher See, Germany	Magmatic	NA	Seasonal lake overturn and mixing	NA	Diffusive and bubbling from lake surface, diffuse from lake shore
A12. Paradox Basin, UT, USA	Thermal decomposition of carbonates	Reservoirs are vertically stacked, sandstone units, in fault-bounded anticlinal folds, capped by shale/siltstone units	No specific leakage event captured	Faults and fractures	Diffuse, gas seeps, springs
A13. Florina Basin, Greece	Thermal decomposition of carbonates	Reservoirs are vertically stacked, limestone and sandstone units (upper unit at 300 m depth), capped by silts and clays.	No specific leakage event captured	Slow leakage along rock discontinuities	Springs, gas seeps

NA not applicable

Tableau 5 : Caractéristiques de quelques fuites de réservoirs naturels de CO₂ (Lewicki et al., 2006)

Les conclusions tirées par Lombardi (2007) quant aux processus de fuite sont les suivantes :

- Dans ces analogues naturels, la perméabilité du réservoir peut être faible à grande profondeur ; de ce fait, les migrations de gaz y sont parfois difficiles et seule joue la diffusion, phénomène lent agissant à l'échelle géologique ;
- une migration significative de gaz peut néanmoins survenir par transport lié à la différence de pression ; il suffit pour cela que le gaz soit, dans le réservoir profond, à une pression égale à la pression lithostatique (ou proche) de

manière à créer son propre chemin de migration à travers le recouvrement par le biais de fractures ouvertes.

D'autre part, le principal impact d'une fuite concentrée de CO₂ en surface est de stimuler la végétation puis, dès lors que la teneur en CO₂ dépasse 20 à 30% dans l'atmosphère, de la faire dépérir sur une petite superficie. Sur la Figure 16, on voit bien apparaître une auréole de dépérissement de la végétation autour du point d'émission de CO₂ mais on constate également que la croissance de la végétation redevient normale à quelques mètres de distance seulement.



Figure 16 : Impact en surface d'une fuite naturelle de CO₂ (Lombardi 2007)

Il existe également une dizaine d'analogues naturels en France, essentiellement localisés dans le sud-est de la France (voir Figure 17) ainsi que dans le Massif Central (notamment le site de Sainte-Marguerite dans le Puy-de-Dôme). Certains sont captés par forages profonds comme le site de Montmiral dans la Drôme. De même, les nombreuses sources carbo-gazeuses de notre territoire sont également l'indice de zones de production de CO₂ avec accumulation naturelle dans un aquifère profond, le plus souvent en relation avec la surface par le biais d'accidents tectoniques (failles).

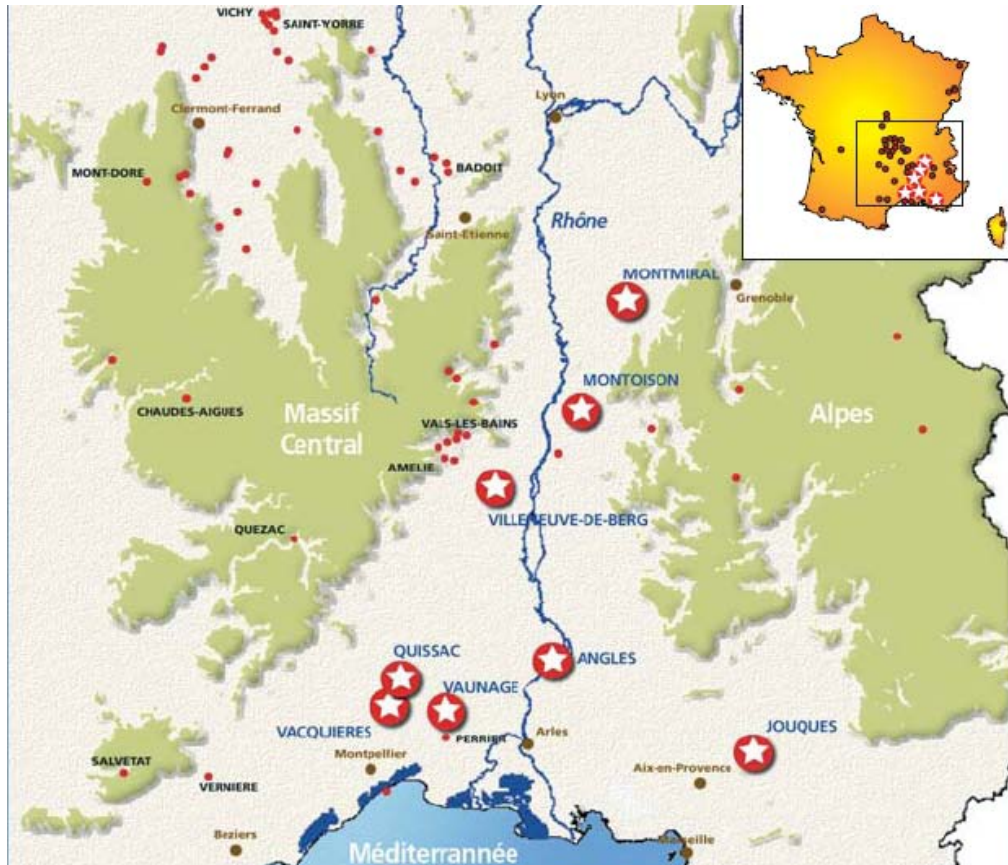


Figure 17 : Localisation des principaux analogues naturels de stockage de CO₂ en France (CO₂GeoNet, 2008)

Bien que nombre de ces sites soient exploités par forages profonds, Lewicki et al. (2006) font remarquer que les fuites résultant de leur exploitation industrielle sont assez peu fréquentes et que la plupart d'entre elles proviennent des phases de creusement des forages d'exploitation : peu d'entre elles résultent de l'abandon de ces forages après la phase d'exploitation. Cependant, ces informations sont biaisées par le faible retour d'expérience dont nous disposons sur le comportement des puits après l'abandon (quelques années à dizaines d'années au maximum) et par l'absence de généralisation des mesures de surveillance des sites après leur abandon. De ce fait, ces sites ne peuvent servir d'analogues aux futurs sites de stockage géologique de CO₂ que dans le court terme et le moyen terme.

Que ce soit dans des analogues naturels en exploitation ou dans des stockages souterrains de gaz autres que du CO₂ (gaz naturel par exemple), il existe des exemples de fuites en surface par les forages. Lewicki et al. (2006) ont ainsi recensé quelques cas types dont les fuites atteignent la surface sous la forme de geysers de gaz ou de fuites diffuses à travers le sol, les plans d'eau ou les fractures du terrain (voir Tableau 6).

L'importance et les conséquences des fuites dépendent fortement du site étudié voire même - à l'intérieur d'un même site - du secteur considéré. Lewicki et al. (2006) ont synthétisé les principales caractéristiques des fuites observées en surface au droit des sites analogues précédemment décrits (Tableau 6) : leur intensité varie en général de

10 à 1500 tonnes/jour¹⁴ et la surface affectée peut atteindre 500 000 m². Plusieurs cas de décès ont été rapportés mais la plus grande catastrophe liée à une fuite de CO₂ résulte du dégazage naturel brutal du lac Nyos au Cameroun (1700 morts).

Bien que les caractéristiques des fuites soient spécifiques à chaque réservoir, il est possible d'identifier quelques types majeurs d'événements à l'origine de fuites :

- la survenue d'événements naturels qui stimulent les fuites comme un séisme ou une activité volcanique ;
- l'existence de zones fracturées ou de failles permettant des relations directes entre le réservoir souterrain et la surface ;
- la présence de forages mal construits ou mal abandonnés qui peuvent devenir les vecteurs de fuites importantes.

¹⁴ excepté le cas exceptionnel du Lac Nyos (Cameroun) avec 240 000 tonnes dans une journée

Site	Geographic setting/land use	Magnitude of surface CO ₂ or CH ₄ leakage	Consequences of release	Monitoring and remedial measures
A1. Mammoth Mountain, CA USA (N)	Recreational area (US national forest, ski resort)	~250 t day ⁻¹ from 480,000 m ² area	Formation of tree kill areas, one person with symptoms of asphyxiation, four people killed	Temporal and spatial monitoring of CO ₂ concentrations and fluxes in tree kill areas; measurements of groundwater chemistry; public education
A2. Solfatar, Italy (N)	Recreational area (private park/campground) surrounded by urban area	1,500 t day ⁻¹ from 0.5 km ² area	No vegetation in degassing area	Temporal and spatial monitoring of soil CO ₂ fluxes, monitoring of heat release; monitoring of fumarole gas chemistry; seismic and deformation monitoring; public education
A3. Albani Hills, Italy (N)	Urban area	74 t day ⁻¹ as surface gas emissions (61,000 m ² area) and 506 t day ⁻¹ as dissolved CO ₂ in shallow ground water	High CO ₂ concentrations in homes; deaths of livestock (1999 event); past human deaths	Measurements of soil CO ₂ fluxes and concentrations; monitoring groundwater chemistry; identification of residential areas at risk, development of zoning bylaws, and development of public education programs
A4. Clear Lake, CA, USA (N)	Rural	~1 t day ⁻¹	Four people killed	Measurements of soil and vent CO ₂ fluxes and concentrations, mineral pool closed to public
A5. Latera caldera, Italy (N)	Rural, small towns	Unknown	Vegetation stress or kill	Soil gas concentration surveys, hazard mapping
A6. Mátradereske, Hungary (N)	Rural area, village	Average CO ₂ flux ~200–400 g m ⁻² day ⁻¹ (total degassing area unknown)	High CO ₂ concentrations in homes, death of several people	CO ₂ detection and control devices installed in homes, demolition of homes with hazardous CO ₂ levels, public education
A7. Dieng, Indonesia (N)	Rural	Unknown	~145 people killed, vegetation stress or kill	Vent gas chemical analysis
A8. Southern Negros, Philippines	Rural	Unknown	Vegetation stress or kill, animals killed	Vent and diffuse gas chemical analysis
A9. Rabaul, Papua New Guinea	Rural	Unknown	Three people killed, birds killed	NA
A10. Lakes Monoun and Nyos, Cameroon (N)	Rural, villages	Nyos: 240,000 t CO ₂ in eruptive event	Loss of human (~1800 combined) and animal life (e.g., thousands of cattle),	Controlled lake degassing using pipes, monitoring of lake chemistry, public education
A11. Laacher See, Germany (N)	Rural	~14 t day ⁻¹	NA	Monitoring CO ₂ fluxes and concentrations from lake surface and shore
A12. Paradox Basin, UT, USA (N)	Rural	Soil CO ₂ fluxes up to 100 g m ⁻² day ⁻¹ ; total emission rate unknown	NA	Measurements of soil CO ₂ fluxes; monitoring groundwater chemistry
A13. Florina Basin, Greece (N)	Rural, small towns	Unknown	NA	Measurements of groundwater chemistry
B1. Sheep Mountain, CO, USA (I)	Rural	Unknown	NA	Dynamic injection of drag-reduced brine followed by mud
B2. Paradox Basin, UT, USA (I)	Rural	Crystal Geyser: ~33 t day ⁻¹	NA	Measurements of atmospheric CO ₂ concentrations
B3. Florina Basin, Greece (I)	Rural, small towns	Unknown	Death of one person	Leakage area closed off to people
B4. Torre Alfina geothermal field, Italy (I)	Rural	~25,000 t	NA	Cementation of exploration well; borehole installation to focus subsurface gas flow and vent CO ₂ at height in atmosphere; atmospheric CO ₂ concentration monitoring
B5. Travale geothermal field, Italy (I)	Rural	Unknown	NA	Well allowed to discharge fluid, monitoring of fluid temperature, pressure, and chemistry
B6. Yaggy gas storage facility, KA, USA	Small town	Unknown	Gas explosions, two people killed, buildings damaged	Geophysical monitoring, wells plugged
B7. Leroy gas storage facility, WY, USA	Rural	~1.8 × 10 ⁷ m ³	NA	Tracer tests, decreased injection pressures
B8. Kingfisher, OK, USA	Rural	Unknown	NA	Geophysical, geochemical monitoring. Well plugged.

NA not analysed

Tableau 6 : Caractéristiques et conséquences de quelques fuites naturelles et artificielles de gaz (Lewicki et al., 2006)

En France, sur l'analogue naturel de Sainte-Marguerite, Pokryszka & Charmoille (2008) ont mis en évidence à l'INERIS des variations spatio-temporelles très importantes de flux de CO₂ en surface (voir également Battani et al., soumis). Elles se marquent non seulement d'un secteur à l'autre mais aussi, pour un secteur donné, d'une année sur l'autre (Figure 18). Ce site est un réservoir de CO₂ d'origine volcanique profonde et des variations très significatives des flux de CO₂ mesurés en surface ont été mises en évidence d'une année sur l'autre sans qu'une hypothèse crédible sur l'origine de ces variations ait pu être émise et validée. Les flux mesurés varient ainsi d'un minimum relativement stable à $2,3 \cdot 10^{-8} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$ (ou $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$) jusqu'à un maximum variant de $5 \cdot 10^{-6}$ à $46 \cdot 10^{-6} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$ suivant l'année considérée¹⁵.

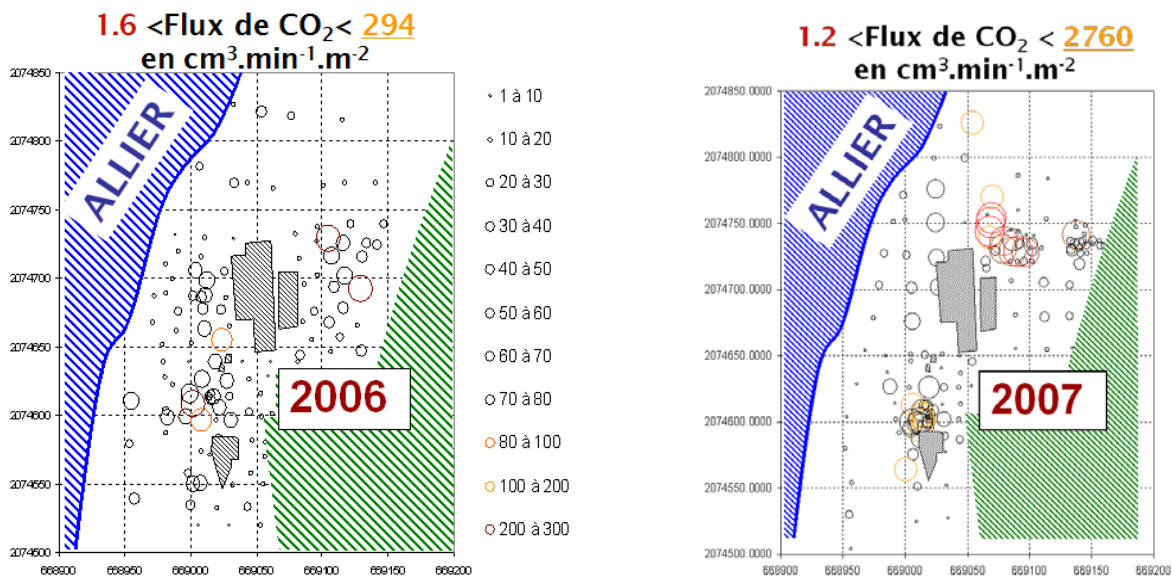


Figure 18 : Variations d'intensité du flux de CO₂ en surface sur le site analogue naturel de Sainte-Marguerite (Pokryszka & Charmoille, 2008)

Nota : $1 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1} = 1 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-2} = 6 \cdot 10^7 \text{ cm}^3 \cdot \text{min}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$

En outre, au droit des sites où une surveillance de la chimie des eaux souterraines a été mise en place, (cf. analogues A1, A3, A11 et A12 du Tableau 6), des modifications ont été observées suite à des fuites de CO₂ : il s'agit d'une acidification des eaux souterraines et d'interactions avec la roche encaissante. Mais les eaux sont restées potables dans tous les cas.

Abou Akar et al. (2005) ont cependant constaté, au droit du site de Weyburn (Canada), « une certaine corrélation entre le flux de CO₂ et la teneur en Sr [strontium] et B [bore] » de l'eau souterraine. De même, en posant des capteurs à charbons au droit de l'analogue naturel de Vorderrhön (Allemagne), le BRGM a montré que « les composés métalliques de minéralisations en profondeur peuvent être transportés vers la surface » par un flux de CO₂. Ainsi, le rapport systématique entre les anomalies sol-gaz (CO₂, hélium ou radon) et le contenu métallique anormal emprisonné par le charbon actif démontre que les signaux anormaux en métal repérés en surface sont liés au flux de gaz naturel. La capacité de ces gaz à se déplacer vers la surface

¹⁵ les mesures sont toujours en cours en 2009.

dépend des types de roches et particulièrement de la présence de voies préférentielles, telles que les fractures ».

Lafortune (2007) a étudié la contamination d'un aquifère superficiel au droit de l'analogue naturel de Montmiral dans la Drôme. Les fuites dues au mauvais colmatage d'un ancien forage d'exploitation se répercutent dans l'aquifère jusqu'à une quinzaine de kilomètres de distance mais seulement sous la forme d'une faible perturbation du rapport isotopique helium/néon (Figure 19).

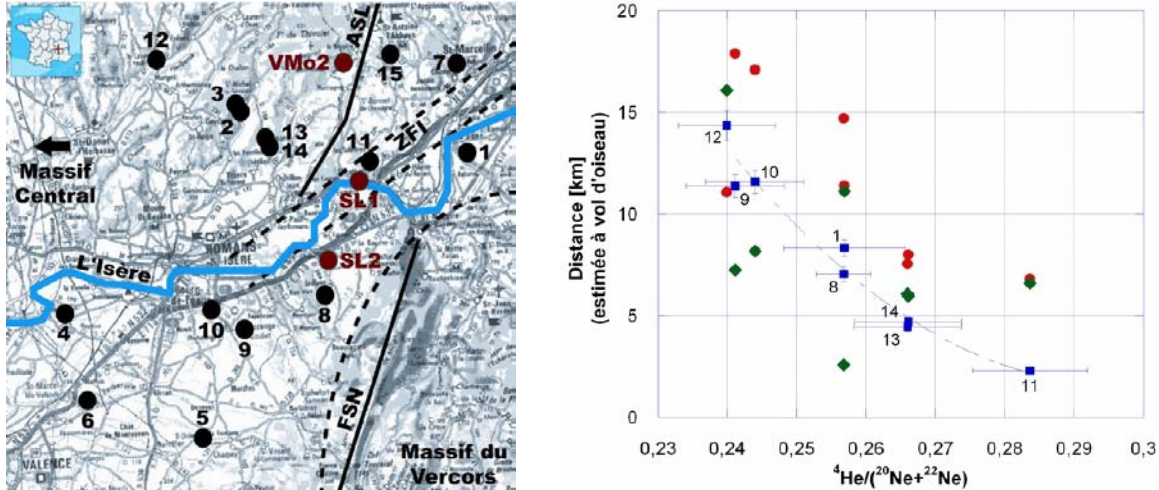


Figure 19 : Localisation du puits fuyard (SL1) et impact isotopique d'une fuite de CO₂ sur l'aquifère superficiel près de Montmiral (Lafortune, 2007)

Enfin, un autre intérêt des analogues naturels est l'étude des conditions à long terme de stockage du CO₂ dans le sous-sol (BRGM, 2005). Les méthodes géophysiques et l'analyse des carottes des roches du réservoir et du recouvrement rendent en effet possible une meilleure compréhension des interactions chimiques et physiques à long terme entre le gaz stocké et les roches encaissantes.

3. IDENTIFICATION DES RISQUES LIES AU STOCKAGE GEOLOGIQUE DU CO₂

3.1 GENERALITES ET DEFINITIONS SUR L'ANALYSE DES RISQUES

L'évaluation et la maîtrise des risques, au cours de l'injection ou après la fermeture du site, sont des éléments clefs pour envisager le développement à l'échelle industrielle des sites d'injection et de stockage géologique du CO₂.

Rappelons en premier lieu la définition du risque : selon le guide ISO/CEI 73, il s'agit de la « combinaison de la probabilité d'un événement et de ses conséquences ». Classiquement, on mesure donc le risque selon deux dimensions : d'une part, la gravité (ou sévérité¹⁶) des conséquences et, d'autre part, la probabilité d'occurrence.

Précisons qu'il s'agit là d'une définition très technique du risque, qui ne doit pas être considérée comme une réponse absolue au « sentiment de sécurité » dont notre société exprime le besoin de manière plus générale. Elle est cependant utilisée de manière très courante pour gérer la sécurité des personnes et des biens ou la protection de l'environnement de la façon la plus objective possible : dans le domaine du risque technologique (ou sécurité industrielle), dans le domaine du risque naturel (inondations, séismes, etc.) ou dans le domaine de l'impact environnemental et sanitaire (rejets industriels, stockages de déchets, etc.)

Dans le cas particulier de la filière CCS, il est légitime et nécessaire d'analyser la chaîne dans son ensemble, avec ses quatre maillons –captage, transport, injection stockage– à la fois pour la sécurité et pour l'impact environnemental ou sanitaire. Pour cela il faut considérer plusieurs échelles de temps – depuis le court terme, à savoir la phase de conception et d'exploitation, jusqu'au long terme à l'horizon d'au moins un millier d'années. Il semble légitime d'appliquer (ou de développer si besoin) une méthode d'analyse structurée et systématique, qui s'appuie à la fois sur la pratique du monde industriel et sur celle des stockages souterrains (notamment le confinement des déchets), en mettant en avant les MMR ou « barrières de sécurité ».

Nous nous intéressons aux impacts sur les deux « **cibles** » que sont l'homme et l'environnement. Une cible donnée est susceptible d'être impactée par des « **phénomènes impactants** »¹⁷, lesquels se traduiront par des « dommages » (ou conséquences). Il s'agira ici de :

- i) l'impact sanitaire pour l'homme,
- ii) la contamination des aquifères superficiels susceptibles d'être exploités,
- iii) les impacts possibles sur les écosystèmes.

En pratique, un phénomène impactant correspond à la libération, dans un compartiment donné de l'environnement, d'un « **potentiel de danger** » : dans notre cas il s'agit avant tout du CO₂, mais également de la saumure potentiellement chargée en éléments traces toxiques - ces éléments pouvant être d'une part les impuretés du

¹⁶ Le terme « gravité » renvoie généralement à un impact immédiat sur l'homme ; ici, ce terme englobe également les impacts sur l'environnement et les impacts à plus long terme – et on peut lui préférer le terme « sévérité » qui correspond mieux à la traduction en anglais (severity).

¹⁷ Ce terme de « phénomène impactant » est proposé ici, par parallélisme avec celui de « phénomène dangereux » qui est utilisé dans les études de dangers pour les risques technologiques, avec la volonté d'inclure les impacts à long terme et/ou les impacts environnementaux.

fluide injecté, d'autre part les métaux lourds ou actinides mis en solution dans le sous-sol.

Chaque « phénomène impactant » peut avoir plusieurs causes (ou événements initiateurs) possibles, et chaque cheminement depuis une cause donnée, incluant les événements intermédiaires, est appelé « **scénario de risque** ».

Nous utiliserons également ci-après la notion d'« **aléa** » : il s'agit d'un événement, survenant en un lieu donné, caractérisé par son **intensité** et par sa **probabilité** d'occurrence (laquelle inclut la probabilité de ses différentes causes). L'aléa est considéré indépendamment de la présence des cibles potentiellement impactées, et donc de la gravité réelle des impacts : en fait, c'est la combinaison de l'aléa et de la **vulnérabilité** de la cible qui donne une mesure du risque.¹⁸

L'objet de « l'analyse des risques » est de permettre d'identifier les scénarios possibles puis de les caractériser ou de les mesurer (en probabilité et gravité notamment), de la manière la plus objective possible. De manière schématique, l'analyse de risques est donc un processus qui doit permettre de répondre à quatre questions (Kirchsteiger, 1999) :

- a) Qu'est-ce qui peut mal tourner ?
- b) Quelle est la probabilité que cela se produise ?
- c) Si cela se produit, quelles en seront les conséquences (donc la gravité) ?
- d) Quelle confiance peut-on accorder au résultat obtenu ?

La réponse à la question (a) consiste à identifier les scénarios de risques, elle se fonde sur les avis d'expert et sur la connaissance des phénomènes possibles et déjà observés, c'est-à-dire le retour d'expérience (accidentologie). Afin de caractériser plus précisément ces risques, il faut répondre aux questions (b) et (c), ce qui nécessite d'identifier les causes possibles de dysfonctionnement et leurs conditions. Pour la question (c), on utilise le plus souvent un modèle numérique, qui va permettre d'estimer l'intensité du phénomène : en couplant cette intensité à la vulnérabilité de la cible, on peut en estimer la gravité. La prise en compte de la question (d) appelle au traitement - formel ou informel - des incertitudes, qui sort du cadre du présent rapport.

Enfin, cette analyse doit aider à proposer des améliorations, par le choix de « mesures de maîtrise des risques » (MMR) appropriées, qui vont idéalement empêcher le scénario de se dérouler, ou en réduire fortement la probabilité ou bien la gravité.

3.2 ANALYSE DE L'ACCIDENTOLOGIE

La première démarche permettant d'appréhender la nature et l'importance des aléas qui peuvent survenir sur un site de stockage géologique de CO₂ consiste à étudier l'accidentologie recensée dans ce domaine ou dans des domaines proches.

¹⁸ Ceci revient à donner définition plus complète de la mesure du risque :

$$\text{Risque} = 1.\text{Probabilité} \times 2.\text{Intensité} \times 3.\text{Vulnérabilité de la cible.}$$

Au sein de cette relation : $1.\text{Probabilité} \times 2.\text{Intensité} = \text{Aléa}$ (donc $\text{Risque} = \text{Aléa} \times 3.\text{Vulnérabilité}$), et par ailleurs : $2.\text{Intensité} \times 3.\text{Vulnérabilité} = \text{Gravité}$ (donc $\text{Risque} = 1.\text{Probabilité} \times \text{Gravité}$, comme précisé dans la définition initiale).

On peut par ailleurs noter que le concept d'aléa est également utilisé d'une manière différente, spécifique à la gestion en France des risques de nature accidentelle (formalisée dans le cadre des Plans de Prévention des Risques Miniers / Naturels / Technologiques) : on ne parle plus d'un aléa comme d'un événement, mais d'une notion spatialisée destinée à être cartographiée : en un point donné du plan, l'aléa est la probabilité qu'un phénomène d'une intensité donnée y soit observé.

Dans le domaine du stockage géologique du CO₂, l'accidentologie est pour l'instant peu fournie, voire inexistante, du fait du faible nombre de stockages (ou pilotes industriels) opérationnels dans le monde et du fait de leur faible durée d'existence à ce jour : le site de stockage géologique de CO₂ le plus ancien est en effet celui de Sleipner (N) qui ne date que de 1996.

Dans le cadre du projet PICOREF l'INERIS a effectué une recherche sur la base des données française ARIA du Ministère en charge de l'Ecologie, qui recense les incidents et accidents industriels (Roux et al, 2009) : y sont rassemblés les cas d'accidents documentés dans la littérature concernant les stockages de gaz. Ici nous reprenons simplement les enseignements de cette recherche, en l'illustrant avec des éléments qui nous semblent constituer un retour d'expérience intéressant pour l'analyse des aléas liés au stockage géologique du CO₂.

Pour des activités similaires du type transport et stockage de produits chimiques et combustibles gazeux, on trouve un exemple de fuite notable en 2001 à Hutchinson aux Etats-Unis : du gaz, provenant d'un stockage souterrain en site naturel, s'est infiltré à travers les anfractuosités du terrain et les failles et a provoqué l'éruption de plusieurs geysers. Cependant, Cela montre que, dans des conditions spécifiques, des phénomènes d'occurrence soudaine peuvent avoir lieu, bien qu'étant initiés par des mécanismes dans le sous-sol, à cinétique plutôt lente.

En France, une seule éruption de puits dans le contexte d'un stockage souterrain a été décrite ; elle est intervenue en 1989 lors d'une intervention technique sur un puits d'exploitation du stockage de Chémery (41). L'intervention consistait en un remplacement de crépine, organe destiné à retenir les particules solides, essentiellement du sable. Un phénomène de pistonnage a entraîné l'éruption du puits, prenant la forme d'une fuite importante de gaz naturel sous pression (150 000 m³/h pendant 50h). L'intervention d'une société spécialisée a permis d'arrêter la fuite après 2 jours.

La grande majorité des accidents recensés concernent les installations de surface, à savoir : i) des ruptures de canalisations dues à des chocs externes (exemple : accident de chantier) ou à de la corrosion, ii) des incendies ou autres accidents sur les équipements connexes (de type compresseurs, local électrique, etc.) et iii) des fuites de gaz - qui s'enflamme ou non - sur les postes de chargement ou de déchargement, principalement suite à la rupture de raccords souples ou d'éléments de bras articulés.

L'IEA (2006) a également recensé 9 incidents avant 1970 et 8 sur la période 1980-2004 dans les sites de stockages souterrains de gaz naturel dont un dans un stockage en aquifère et un en gisement épuisé. D'après Bouc et Auclair (2007), les fuites catastrophiques sont plutôt liées aux cavités minées alors que celles survenant dans les réservoirs poreux sont plutôt diffuses. Par ailleurs, ces accidents sont surtout liés à des défaillances ou à des pertes de contrôle des puits.

Sans prétendre à une analyse précise de chaque cas, qui dépasse l'objectif de ce document, on peut souligner que la typologie des accidents ainsi relevés consiste essentiellement en :

- des éruptions de gaz en surface (phénomène appelé « blowout ») ;
- des pollutions d'eaux souterraines ou superficielles.

Il n'y a pas de cas recensés de mouvements critiques au niveau de la surface du sol, de type séisme, induit par le stockage¹⁹.

En ce qui concerne les causes ou facteurs ayant participé à l'occurrence de ces accidents et qui sont pertinents pour les stockages géologiques de CO₂, on relève principalement les suivants :

- une dégradation (voire une absence) du cuvelage et/ou de la cimentation des puits ;
- une dégradation de la couverture ;
- un défaut d'étanchéité au niveau des vannes régulatrices du débit de gaz.

En dehors du domaine industriel, des accidents d'origine naturelle peuvent également se révéler riches d'enseignement pour le stockage géologique du CO₂. C'est le cas, par exemple, de l'accident qui s'est produit au lac Nyos au Cameroun en 1986 (Bouc *et al.*, 2006) : 240 000 tonnes de CO₂ d'origine profonde se sont brutalement échappées de ce lac volcanique et se sont dispersées sur 14 km aux alentours. L'accumulation du CO₂ dans les vallées confinées a provoqué la mort par asphyxie de 1700 personnes et de dizaines de milliers d'animaux.

Cet échappement de CO₂ est cependant à comparer aux 11,5 MtCO₂ émises lors de l'éruption du volcan Pinatubo, survenue aux Philippines en 1991 : du fait de la dispersion de ce gaz dans l'atmosphère, aucun problème de ce type n'a été observé. En accord avec Benson *et al.* (2002), on constate donc que les problèmes posés par un échappement naturel de CO₂ semblent plus dépendre de la nature du phénomène, en particulier de la dispersion du gaz, que du volume relâché.

3.3 LES PRINCIPAUX PHENOMENES REDOUTES ET LEURS MECANISMES INITIATEURS

En phase d'injection (objet du présent rapport), les risques seront principalement limités au puits d'injection et au « proche-puits », c'est-à-dire à la portion du réservoir située dans l'environnement rapproché du puits d'injection (nous ne traitons pas les phénomènes accidentels propres aux installations de surface, telles les canalisations). En phase d'abandon, les risques concerneront l'ensemble du réservoir et pourront impliquer d'éventuels ouvrages présents à une certaine distance (puits de contrôle, autres puits et forages profonds comme ceux exploitant, par exemple, les gîtes géothermiques) voire les compartiments les plus superficiels de la géosphère.

Les principaux « phénomènes impactants » (au sens de la définition du 3.1) liés à la phase d'injection sont :

- les éruptions de CO₂ (ou fuites massives),
- les fuites plus diffuses ainsi que les contaminations de compartiments de l'environnement,
- les phénomènes de sismicité induite et les mouvements de terrain.

En amont, les principaux mécanismes possibles (causes) de déclenchement de ce type de phénomènes peuvent être regroupés en deux grandes catégories, et sont présentés ci-après :

1. la corrosion des éléments constitutifs des puits d'injection : cimentation, tubage, cuvelage, équipements ;

¹⁹ toutefois des résultats récents mais non encore publiés feraient état d'une surrection des terrains de l'ordre du centimètre au droit du site d'injection de CO₂ de In Salah en Algérie

2. les mécanismes de perturbations THMC, voire bactériologiques, du réservoir dans la zone proche de la base du puits - cette zone renfermant essentiellement du CO₂ à l'état supercritique au cours de la phase d'injection.

Ces principaux mécanismes seront davantage détaillés aux chapitres 4 et 5 afin de permettre une première appréciation de leur occurrence et de leur intensité²⁰.

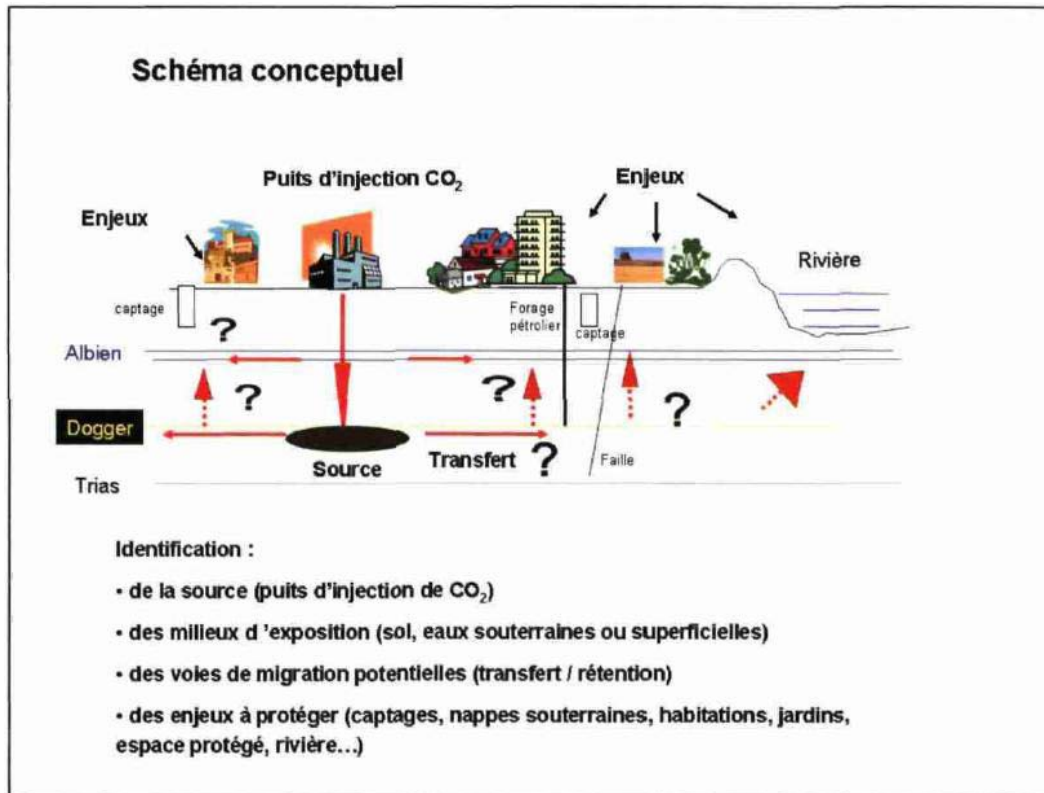


Figure 20 : Représentation schématique des éléments à prendre en compte pour l'identification des enjeux au niveau d'un site de stockage géologique de CO₂ (Bouc et al. 2006)

3.3.1 MECANISMES LIES AUX PUIITS D'INJECTION

Les puits d'injection de CO₂ sont à ce jour d'une conception très proche de celle des puits d'exploitation que l'on peut trouver dans le contexte des stockages souterrains de gaz naturel (voir Figure 47, page 131).

Le risque de fuite dans un puits d'injection de CO₂ dépend de plusieurs facteurs :

- l'adéquation globale de l'architecture du puits à l'environnement géologique, c'est-à-dire son adaptation en termes de protection des horizons les plus vulnérables ;
- l'étanchéité à long terme de chaque élément constitutif du puits. La Figure 21 schématise les différentes possibilités de fuites le long d'un puits abandonné, en distinguant celles qui apparaissent dans le ciment, dans le cuvelage

²⁰ c'est-à-dire pour caractériser les aléas correspondants, sans chercher à caractériser la gravité des impacts sur les cibles (environnement, personnes).

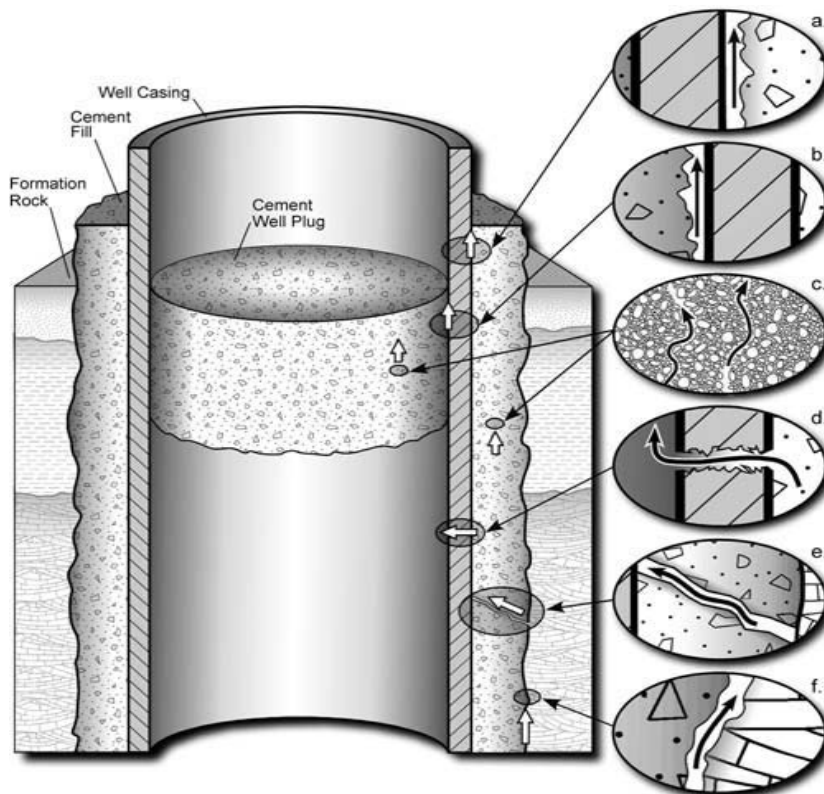
(casing), dans le bouchon, dans la roche ainsi qu'aux interfaces entre ces éléments²¹.

Les valves en tête de puits et les collerettes doivent être adaptées aux conditions plus contraignantes de l'injection de CO₂ afin de résister à des pressions élevées et à l'environnement corrosif dû au CO₂.

Les technologies à mettre en œuvre ont déjà été développées dans le cadre des opérations de récupération assistée d'hydrocarbures (EOR et EGR) et d'injection de gaz acide. En particulier, des puits horizontaux injecteurs de CO₂ ont déjà été mis en œuvre dans le cadre du stockage de Weyburn au Canada ou de Sleipner en Norvège.

D'une façon générale, les équipements employés doivent présenter les particularités suivantes (Jarrel et al., 2002):

- être en adéquation avec les pressions, volumes et températures maximales envisagées,
- être composés de matériaux compatibles avec l'injection de CO₂.



Légende : fuites entre le ciment et le cuvelage acier (a et b), à travers le ciment (c et e), à travers le cuvelage (d), entre le ciment et la roche (f).

Figure 21 : Présentation de voies de fuites dans un puits d'injection de CO₂ abandonné (Celia et al., 2004)

²¹ En particulier, il convient de ne pas négliger l'interface roche-ciment, qui constitue un chemin d'écoulement privilégié du fait de l'endommagement des parois du puits induit, d'une part, par le creusement de celui-ci et renforcé, d'autre part, par les sollicitations (variations de pression et de température) qui s'appliquent au puits au cours de la phase d'injection (Roegiers, 2002 ; Heffer, 2002 ; Oldenburg, 2007).

Le CO₂ devient corrosif en milieu humide. Or l'eau sera presque toujours présente dans un site de stockage géologique de CO₂, soit à l'état d'impureté présente dans le CO₂ injecté, soit dans la roche réservoir qu'il s'agisse bien sûr d'un aquifère salin ou d'un gisement épuisé d'hydrocarbures, voire de veines de charbon (qui peuvent renfermer jusqu'à 5% d'humidité). Dans ce contexte corrosif, seuls les aciers inoxydables sont alors utilisables (bien que tous les aciers dits « inox » ne soient pas inoxydables à long terme). Cotiche et al. (2007), cités dans PICOREF (2007), ont montré, sur le site de St-Martin-de-Bossenay, qu'un CO₂ contenant plus de 100 ppm d'eau était susceptible de corroder l'acier au carbone généralement employé pour les tubages par formation d'acide carbonique. L'utilisation d'un acier inoxydable avec 13% minimum de teneur en chrome est cependant possible (bien qu'elle augmente le coût d'investissement d'un facteur 3,5 à 4).

En ce qui concerne les ciments, une étude bibliographique réalisée par Cotiche et al. (2007), cités dans (PICOREF, 2007), montre que les matériaux conventionnels utilisés pour la cimentation des tubages des puits de production de pétrole ou de gaz reposent sur des bases de ciment Portland, qui sont connus pour être thermodynamiquement instables et non durables dans des environnements riches en CO₂. En effet, le CO₂, notamment sous forme supercritique et en l'absence d'eau, pénètre dans les pores du béton et se dissout dans l'eau interstitielle qui s'y trouve. Il peut alors réagir avec le ciment et former des carbonates au détriment de l'hydroxyde de calcium (chaux) voir du silicate de calcium hydraté qui assurent la cohésion mécanique du ciment : c'est le phénomène de carbonatation qui commence donc à la surface du béton située en contact avec le CO₂ et se développe sur une certaine épaisseur dite profondeur de carbonatation. Le silicate de calcium hydraté étant le minéral qui compose principalement le ciment des puits, sa transformation minéralogique en carbonates néoformés peut notamment accélérer son processus de dégradation et conduire à son vieillissement prématuré (Jacquement, 2006) . De ce fait, une résistance complète et durable du ciment à la carbonatation du CO₂ ne peut pas être obtenue avec un système constitué de ciment Portland du fait de la présence dans ce ciment d'hydroxyde de calcium. Des études réalisées en laboratoire ou sur des puits montrent que le processus de réaction de carbonatation peut être ralenti en diminuant la proportion de ciment Portland et en ajoutant en contrepartie des additifs qui permettent de réduire la perméabilité du ciment, augmentant ainsi sa densité (Bonijoly et al., 2003 ; Cotiche et al., 2007 ; Carpenter & Gardner, 2008 ; Fabbri et al., 2008). D'autres études montrent également qu'une résistance complète pourrait être obtenue en utilisant un ciment fortement enrichi en alumine qui lui confère alors une résistance aux environnements gazeux corrosifs et aux hautes températures (Barlet-Gouédard et al., 2008).

L'utilisation de ces ciments de nouvelle génération implique de prendre de nombreuses précautions pour leur mise en œuvre notamment en ce qui concerne le stockage des additifs, le mélange des différents composants, la prévention de la contamination lors de leur mise en œuvre, le contrôle de la qualité du produit final, etc.

Enfin, on notera qu'à température ambiante, le CO₂ est compatible avec la plupart des élastomères et matières plastiques utilisées dans l'industrie du forage.

3.3.2 MECANISMES ET EFFETS POTENTIELS LIES AU RESERVOIR

Le champ dit « proche-puits » correspond à la portion du réservoir fortement influencée par la présence d'un puits injecteur. Son extension exacte n'est pas définie et semble dépendre à la fois des conditions d'injection (pression, température, durée, nature du fluide) mais également des caractéristiques intrinsèques du réservoir (porosité, perméabilité, nature de la roche).

Les aléas liés au réservoir d'un stockage géologique de CO₂ peuvent être regroupés en cinq catégories (Damen et al., 2006 ; IPCC, 2006), auxquelles s'ajoute une sixième suggérée par le retour d'expérience récent :

1. Fuite de CO₂ : il s'agit d'une migration du gaz injecté du réservoir vers les formations voisines et éventuellement vers la surface jusqu'à l'atmosphère ;
2. Fuite du gaz natif : l'injection de CO₂ dans des réservoirs contenant du méthane et/ou des alcanes légers (gisements pétroliers épuisés, veines de charbon) peut provoquer la désorption des gaz initialement en place et entraîner ainsi leur fuite, avec des conséquences locales potentielles (contamination des nappes d'eau potables, danger d'accumulation dans les zones confinées telles que des caves, risque explosif...) mais aussi globales (le méthane étant également un gaz à effet de serre) ; la prise en compte des fuites de méthane doit donc être intégrée dans le bilan d'un site de stockage de CO₂ afin d'en déterminer l'impact réel sur la limitation des rejets anthropiques de gaz à effet de serre ;
3. Sismicité induite : l'injection du CO₂ conduit à augmenter la pression du fluide dans le réservoir, ce qui peut conduire à un déséquilibre du champ des contraintes mécaniques, principalement à proximité du puits d'injection (champ proche-puits) ; dans un cas extrême, cela peut provoquer l'apparition d'une fracturation - voire même l'activation de failles – qui se manifesterait par l'intermédiaire de secousses sismiques pouvant dégrader la couverture ou l'étanchéité des puits ; les dégâts ainsi occasionnés peuvent atténuer la capacité de confinement du réservoir de stockage et fragiliser éventuellement les infrastructures de surface ;
4. Mouvement de la surface du sol : l'ajout de matière (CO₂ supercritique), l'activation de failles, ou bien la compaction de la roche réservoir sous le jeu de la dissolution chimique de l'encaissant provoquée par l'injection du CO₂, pourraient entraîner des mouvements de la surface du sol. Allant dans le sens d'une remontée du sol (surrection) ou de son enfoncement (subsidence) de l'ordre du mm ou du cm, ces mouvements seraient probablement à l'origine d'une activité microsismique éventuellement perceptible en surface ;
5. Impact hydraulique : par le jeu des modifications de pression, les écoulements hydrauliques en sous-sol sont susceptibles d'être perturbés, tandis que le niveau de certaines nappes proches de la surface pourrait être modifié.²²
6. Contamination des aquifères et autres réservoirs avoisinants : sous cette catégorie se cachent en réalité trois principaux types de causes, donc d'aléas :

²² Suggéré par le retour d'expérience récent, cet impact a fait l'objet en 2009 de plusieurs présentations dans des congrès scientifiques ; il n'est cependant pas relevé dans l'article qui a inspiré majoritairement le présent sous-chapitre.

- premièrement, au CO₂ injecté sont associées des impuretés qui s'accumulent dans le réservoir et dont certaines sont potentiellement polluantes ;
- deuxièmement, il est possible que l'injection du CO₂ et des impuretés associées (oxygène, eau, produits organiques, etc.) modifie localement les caractéristiques physico-chimiques de la saumure en place (pH, température, potentiel rédox) et entraîne la dissolution de métaux lourds initialement fixés à l'état de précipités, ou d'autres éléments traces ;
- troisièmement, une hypothèse est en train d'émerger sur le rôle potentiel des micro-organismes de subsurface qui seront involontairement injectés avec le CO₂ (de Gennaro et al., 2007) ; ces micro-organismes sont en effet capables de s'adapter très rapidement à des conditions environnementales changeantes et d'avoir à leur tour une influence sur la géochimie ; d'autre part, on ne connaît pas la réponse des micro-organismes présents dans la biosphère profonde aux injections de CO₂ (Dupraz et al., 2007)

Il apparaît que ces mécanismes multifactoriels sont peu étudiés, notamment les deux derniers, et méritent d'être mieux analysés à l'avenir en termes d'analyse des risques.

On peut préciser que les conséquences de ces aléas sont susceptibles de s'exprimer à plusieurs niveaux différents :

- Contamination des aquifères profonds : en premier lieu celui qui sert de réservoir, au sein duquel les mécanismes sont initiés, et qui peut être de grande étendue ;
- Contamination des aquifères superficiels : des produits toxiques en provenance du CO₂ injecté (impuretés) ou du réservoir profond initialement visé (métaux lourds) pourraient être entraînés et remonter dans le sous-sol par le biais de zones de faiblesses du recouvrement (failles, changement de faciès) ou de puits abandonnés ; de même, des saumures pourraient être déplacées et augmenter la salinité des aquifères plus superficiels, utilisables pour l'alimentation en eau potable ;
- Contamination d'autres réservoirs : les mêmes substances pourraient également migrer vers d'autres réservoirs souterrains voisins du site de stockage, en risquant d'affecter ces réservoirs utilisés potentiellement à d'autres fins (tels que les sites géothermiques ou de stockage de gaz naturel par exemple) et en réduisant éventuellement l'intérêt de zones potentiellement exploitables par contamination des réserves en place.

3.4 LES CRITERES DE CHOIX DES SITES

Avant de réaliser une analyse des risques plus spécifique des sites de stockage, il convient de citer ici les critères techniques qui doivent être pris en compte en amont, lors du choix du site : ces critères sont généralement basés sur des considérations de sécurité ou d'impact environnemental, et sont le plus souvent propres à être déclinés selon des paramètres techniques décrivant le contexte du stockage – par exemple la perméabilité ou les propriétés mécaniques.

Comme au chapitre 2, il est intéressant de raisonner ici par analogie en rappelant les critères du choix de site pour deux types de stockage souterrain de nature anthropique : celui de déchets radioactifs et celui de gaz et hydrocarbures en aquifère.

Pour le stockage de déchets radioactifs, l'enjeu majeur est « la sûreté à long terme ». Le milieu géologique est la principale barrière (appelée barrière géologique) en termes de confinement de déchets. Il existe bien entendu d'autres barrières comme les conteneurs, les barrières ouvragées (en bentonite notamment), le scellement, le serrement ou encore le remblai.²³ En tenant compte de ces particularités, l'opérateur s'efforce de choisir un site présentant les caractéristiques suivantes :

- a) Stabilité géologique d'un point de vue tectonique : absence de mouvement de terrain, pas d'érosion forte ni d'activité sismique. Par exemple, en France, toute région sismique est immédiatement écartée (Alsace, PACA).
- b) Hydrogéologie : d'une part une très faible perméabilité de la formation d'accueil, incluant notamment l'absence de discontinuité : pas de faille susceptible de faciliter les transports de matière ; d'autre part un faible gradient hydraulique, limitant tout transport y compris dans les zones à topographie très marquée.
- c) Sécurité par rapport aux activités humaines : le milieu géologique d'accueil ne doit pas faire partie d'une zone qui pourrait présenter un intérêt en termes de ressources minérales (éviter le risque d'intrusion pour la recherche minérale) ; dans le même esprit, on respectera une profondeur minimale, de manière à ce que le stockage ne soit pas affecté de manière notable par une intrusion humaine –ni par des phénomènes d'érosion dus à des mécanismes naturels.
- d) Propriétés mécaniques de la roche réservoir : les effets du stockage doivent être compatibles avec les attentes en termes de sûreté, de stockage à long terme et de réversibilité – y compris les effets thermiques.
- e) Propriétés géochimiques de la roche réservoir : définition des critères d'altération de la roche et de migration des flux ; par exemple, on s'assurera que même en cas de dysfonctionnement d'un nombre plausible de colis radioactifs, les modifications des propriétés de la roche n'autoriseront que des relâchements de radioactivité limités vers l'environnement.

Pour le stockage de gaz naturels et d'hydrocarbures liquides ou liquéfiés, les critères de choix du site sont définis comme suit :

- a) Absence de discontinuités (failles), particulièrement celles qui seraient ouvertes. Il est possible de vérifier ce dernier point par une campagne sismique selon la même procédure que celle suivie pour le stockage de déchets radioactifs.
- b) Existence d'une couverture étanche, à base d'argile en principe (marnes, argilites).
- c) Existence d'une couche géologique suffisamment épaisse présentant des propriétés adéquates sur le plan hydraulique (porosité, perméabilité) et mécanique pour le stockage en cavité saline ou minée.
- d) Structure en anticlinal pour le stockage en aquifère permettant le maintien du gaz (dans le cas d'un stockage de gaz naturel).
- e) Existence d'une nappe au toit de cavités minées permettant d'assurer le confinement du produit stocké par le choix d'un gradient hydraulique convergent vers la cavité (dans ce cas, la pression de stockage doit être inférieure à celle de la nappe). En l'absence de nappe, on doit alors réaliser un rideau d'eau ayant la même vocation, l'idée étant de s'appuyer sur le gradient

²³ Ceci illustre combien le domaine du déchet nucléaire met en avant le concept de « barrières », comme déjà précisé au paragraphe 3.1. Cela est à mettre en parallèle avec la notion de « barrière de sécurité » sur des installations industrielles à risque.

hydraulique plutôt que sur l'imperméabilité du milieu qui est bien souvent difficile à assurer à l'échelle d'un stockage étendu, étant donné les discontinuités du massif rocheux.

- f) Etanchéité du cuvelage et de son environnement immédiat (roche, ciment rapporté, etc.) afin de maîtriser les migrations vers la surface.

En se basant sur les caractéristiques des sites de stockage examinés ci-dessus, il est donc possible d'engager une première réflexion sur les critères de choix d'un site de stockage géologique de CO₂. Les remarques suivantes doivent alors être prises en considération :

1. La stabilité géologique d'un point de vue tectonique devra évidemment être recherchée, de même qu'une géométrie la plus adaptée possible au fluide stocké et au volume injecté : quelles sont les dimensions envisagées à terme (en incluant ou non d'éventuelles marges d'erreur) ? Quel est le périmètre d'un stockage et quelle est son évolution dans le temps ? Faut-il rechercher une structure de type anticlinal comme pour le stockage de gaz naturels ?
2. Concernant l'étanchéité et l'imperméabilité de la roche couverture:
 - On doit rechercher une couverture autant que possible étanche.
 - On doit rechercher une zone où il y a le moins possible de discontinuités préexistantes : failles connues, anciens puits, etc.
 - Une étanchéité nulle étant exclue à l'échelle du temps géologique, il convient de préciser une certaine tolérance, en terme de fuites, aussi bien diffuses (milieu géologique) que localisées (discontinuités). Ainsi, si l'on admet que chaque année une certaine proportion du CO₂ injecté peut sortir du stockage, deux cas de figure peuvent se présenter : soit cette quantité sort d'une manière uniforme sur toute la superficie du stockage (et dans ce cas, quelle perméabilité globale du milieu est exigée ?), soit cette même fuite est localisée sur quelques discontinuités (et dans ce cas, à quelle conductivité hydraulique ou perméabilité équivalente cela correspond-il ?).
 - La même question se pose pour les discontinuités d'origine anthropique, notamment les forages d'accès pour l'injection, voire les forages pour la surveillance ; la différence est qu'on peut agir sur les caractéristiques de ces ouvrages, en adaptant les techniques de forage ou de complétion. En revanche, le cas des forages anthropiques antérieurs (notamment en cas de gisement d'hydrocarbure épuisé) est différent car il est difficile d'intervenir dessus a posteriori ; de plus leur existence même peut avoir été oubliée.
3. Un compromis sera à rechercher au niveau de la perméabilité au sein du réservoir. Pour le stockage du CO₂ en aquifère, la cinétique d'injection comme la capacité de stockage dépendent de la porosité de l'aquifère. Or une porosité importante va souvent de pair avec une perméabilité importante, ce qui serait de nature à favoriser le transport horizontal du produit stocké sur de grandes distances (au moins à long terme). La question de la vitesse de transport se pose alors : en termes de gradient hydraulique, est-il ou non préférable d'avoir

un transport très lent du CO₂ et de ses impuretés associées ? Quels gradients faut-il éviter, ou au contraire retenir ?²⁴

4. Il conviendra d'étudier les propriétés mécaniques, tant pour la roche-réservoir qu'à l'interface avec la couverture : quelles caractéristiques minimales sont à rechercher afin d'éviter une fracturation induite par la surpression ? – ou à l'inverse, comment adapter la technique d'injection et la pression du stockage à la roche ? L'impact des phénomènes thermiques sera également à considérer, par exemple en cas d'injection de fluide plus froid que la roche ou en cas de détente voire de changement de phase du fluide, susceptibles d'induire un refroidissement localisé, et donc une rétractation de la roche.
5. En termes d'interactions géochimiques :
 - Comment le fluide injecté va-t-il interagir avec la roche, et à quelle échelle de temps ? Cela est-il susceptible d'influer sur les propriétés mécaniques de la roche ? Y a-t-il également un risque de remobilisation d'éléments traces potentiellement toxiques, présents dans le réservoir à l'état stable ?
 - Par ailleurs, si l'on admet que le CO₂ contient des impuretés (plus ou moins connues), quelle exigence de nature du milieu géologique doit-on réclamer ? Par exemple, on peut s'interroger sur les avantages et inconvénients d'un aquifère formé de grès/sables par rapport à un autre formé de calcaire : lequel est le plus favorable pour retenir ou laisser transiter des substances non désirées ?
 - On devra également s'interroger sur ces mêmes processus (mobilisation d'éléments traces, transit des différentes impuretés) au niveau de la couverture voire des recouvrements supérieurs. De même, entre les divers types de stockage (aquifère, gisements pétroliers, roches basiques), lequel est le plus favorable ou défavorable à la circulation des substances non désirées ?
6. Enfin, des critères spécifiques seront à considérer par rapport aux activités humaines et à l'utilisation du milieu :
 - D'une part éviter toute intrusion ultérieure, en choisissant une zone assez profonde et dépourvue d'intérêt en termes de ressources minérales
 - D'autre part, est-il possible de limiter la vulnérabilité en surface, par exemple en réglementant l'occupation du sol ? si oui, sur quelle échelle de temps ?

Ces nombreuses interrogations font actuellement l'objet d'études par de nombreux acteurs, elles seront développées et approfondies dans un rapport ultérieur de l'INERIS.

²⁴ La résistance au transfert horizontal est ici considéré indépendamment de la résistance au transfert vertical, qui lui sera gouverné par la roche-couverture : voir point 2 ci-avant.

4. ELEMENTS D'ÉVALUATION DES ALEAS LIES AUX FUTITES DE PUIITS

Après avoir recensé, d'une manière succincte mais relativement exhaustive, les scénarios de risque et les mécanismes qui peuvent être liés aux activités de stockage géologique du CO₂, nous allons dans ce chapitre nous intéresser de manière plus spécifique aux aléas²⁵ liés aux puits, en nous fondant sur l'état des connaissances actuelles. Nous aborderons principalement les aléas liés aux puits d'injection (ceux spécifiques aux puits de surveillance et aux puits abandonnés traversant ou avoisinant le stockage de CO₂ ne seront pas abordés dans ce rapport).

Comme on l'a vu au chapitre précédent (§ 3.2.1), le puits apparaît comme un chemin d'écoulement potentiel du CO₂ du stockage vers la surface ou les aquifères sus-jacents. Suivant leur origine, les fuites de CO₂ à travers le puits peuvent être lentes et diffuses ou soudaine et concentrée. Ces fuites sont principalement consécutives :

- à une mauvaise conception de l'architecture du puits qui ne serait pas en adéquation avec l'environnement géologique et ne permettrait pas la protection des horizons les plus vulnérables (nappes aquifères, niveaux évaporitiques potentiellement très solubles) ;
- à un défaut d'étanchéité des cuvelages et des cimentations. Celui-ci peut apparaître à moyen ou long terme du fait d'une altération des matériaux utilisés, éventuellement accélérée par les interactions entre ceux-ci et le gaz injecté ;
- à une erreur opératoire lors d'une intervention sur puits.

Il convient donc de distinguer les fuites apparaissant après la réalisation des puits (fuite liée à un défaut de conception), au cours des opérations d'injection (fuite soudaine apparaissant au niveau de la tête de puits), ou encore à plus long terme (fuite diffuse apparaissant en surface).

Nous allons dans les paragraphes suivants fournir un certain nombre d'éléments d'analyses et de références bibliographiques qui nous ont semblé être utiles à l'évaluation du risque de fuite par un puits dans le contexte d'un stockage géologique de CO₂.

4.1 DESCRIPTION DES DIFFERENTS TYPES DE FUTITES DE CO₂ PAR LE PUIITS

4.1.1 FUIITE SOUDAINE

Les fuites soudaines qui peuvent se produire au niveau des puits lors de leur creusement ou de leur maintenance sont classiquement dénommées « éruptions de puits » ou, en anglais « well blow-out ».

²⁵ Rappelons que, selon la définition du chapitre 3, l'**aléa** est un événement survenant en un lieu donné, caractérisé sa **probabilité** d'occurrence et par son **intensité** - les aléas donc considérés ici sans avoir l'ambition d'estimer la gravité réelle de leurs impacts sur les cibles (environnement, personnes susceptibles d'être présentes), ce qui serait à réaliser lors d'une analyse complète du risque.

Cette éruption est soudaine et inattendue et s'accompagne généralement de l'expulsion de tout le matériel situé dans le corps du puits et en particulier des boues de forage. La soudaineté de cet événement ne permet généralement pas à un opérateur seul de réagir suffisamment vite pour éviter une perte de pression. La détente brutale du gaz s'accompagne d'un refroidissement soudain dont les conséquences en surface peuvent être (Figure 22) :

- l'expulsion de particules de glace susceptibles de blesser le personnel ;
- l'expulsion de fluides (eau, CO₂) ;
- la réduction de la visibilité résultant de la condensation de l'eau.

et en profondeur, une fracturation des terrains situés à la base et le long du puits.

a) Débris de glace en surface



b) Expulsion de fluide



c) Condensation de vapeurs d'eau limitant la visibilité



Figure 22 : Conséquences en surface d'un blow-out (Skinner, 2003)

Cette détente brutale du gaz peut survenir suite à une surpression dans le réservoir ou à une erreur commise par un opérateur.

Des systèmes existent pour éviter la survenue de ce type d'événement. Il s'agit principalement d'un système de vannes placé en tête de puits et désigné sous l'acronyme de BOP (Blow-Out Preventor ou Bloc Obturateur de Puits, en français).

Outre ces équipements, les éruptions de puits peuvent être évitées ou traitées dans la mesure où les bonnes pratiques de forage sont respectées pendant la phase de creusement, d'équipement ou d'intervention sur puits.

La survenue d'éruption de puits en cours de fonctionnement de l'injection est a priori moins probable car il faudrait que se produise de façon conjointe :

- un défaut d'étanchéité au niveau d'un joint ou d'une bride sur la tête de puits,

- et une défaillance de la vanne de sub-surface.

L'analyse de la survenue de ces événements en phase de travaux peut être réalisée selon des approches classiques d'analyse de risques.

Compte tenu du peu de retour d'expérience pour les puits d'injection de CO₂, la probabilité d'occurrence de ce type d'événement est difficile à évaluer. L'analyse menée sur les puits d'injection relative à l'exploitation ou au stockage de gaz naturel révèle que la probabilité annuelle d'une fuite soudaine pour un puits est de l'ordre 1,8.10⁻⁵. Cette valeur pourrait être retenue sous réserve que les données concernant ces gaz soient transposables au cas du CO₂ à l'état supercritique.

4.1.2 FUITE DIFFUSE

Les fuites diffuses apparaissent suite à un défaut de conception ou suite à une lente dégradation des caractéristiques de résistance et de perméabilité des éléments constitutifs du puits. La recherche des mécanismes d'apparition des fuites diffuses au voisinage des puits est essentielle afin de pour pouvoir analyser et maîtriser ces fuites. Ces mécanismes sont liés à des perturbations mécaniques, hydrauliques, thermiques ou chimiques survenant au cours du creusement et de l'équipement du puits ou pendant les phases d'injection (et de post-injection) du CO₂. On décrit dans les paragraphes suivants, les mécanismes à l'origine de ces dégradations.

Les conséquences de ces fuites (en sub-surface et en surface) sont les suivantes :

- une acidification des eaux des aquifères plus superficiels, voire des eaux de surface, jusqu'à un pH de 4 ou 5 (Damen et al., 2006) ;
- une accumulation de CO₂ (et éventuellement d'autres gaz) dans des lieux non ventilés, pouvant entraîner des impacts sur l'homme et l'environnement.

En surface, les fuites diffuses peuvent se manifester directement par l'apparition de bulles, comme dans le cas du puits fuyard présenté en *Figure 23a*. On notera que des bulles de CO₂ ont également été observées à la surface des mares au droit de sites analogues naturels comme celui de Sainte-Marguerite dans le Puy-de-Dôme (*Figure 23b*) où les flux de CO₂ mesurés pouvaient atteindre en certains points 4,7 10⁻⁵ m³/s/m² (Pokryszka & Charmoille, 2008).



Figure 23 : Exemples de fuites diffuses de CO₂ : (a) formation de bulle en tête d'un puits (Bachu, 2007) ; (b) apparition de bulles à la surface d'une mare au voisinage de la source thermique de Sainte Marguerite (63)

4.2 PERTURBATIONS MECANIQUES INDUITES PAR LE CREUSEMENT DU PUIITS

Le creusement d'un puits induit nécessairement une perturbation du milieu dans son voisinage proche. Cette perturbation se traduit par une réorganisation du champ de contraintes pouvant s'accompagner de ruptures du massif rocheux. A titre d'exemple, suite au creusement du puits d'accès du laboratoire souterrain de Bure, dans les argilites de l'Est du Bassin Parisien, il a été observé l'apparition de perturbations instantanées et différées (Miehe, 2004).

4.2.1 PERTURBATIONS INSTANTANEEES

La perturbation mécanique instantanée la plus marquante est la rupture ou la fracturation de la roche. Celle-ci induit de très fortes augmentations de perméabilité qu'il est d'ailleurs difficile de quantifier dans l'état actuel des connaissances. Les essais en laboratoire montrent qu'il existe deux types de déformations avant la rupture, qui se traduisent toutes les deux par une modification de la perméabilité : il s'agit de la compaction, dans un premier temps, puis de l'endommagement à l'origine du développement d'une micro-fissuration. Ainsi, lorsque la roche subit un chargement, même largement inférieur à sa résistance à la rupture, une microfissuration diffuse se développe à partir des différents défauts et hétérogénéités et elle se développe jusqu'à l'apparition de fissures macroscopiques. Ce mécanisme est fortement irréversible (du Suau de la Croix, 2006).

L'anisotropie de l'état de contraintes initial du site ainsi que l'anisotropie structurelle de la roche encaissante jouent un rôle important dans l'occurrence et la répartition des zones en rupture autour de l'ouvrage.

4.2.2 PERTURBATIONS DIFFERES

Le comportement mécanique différé (dans le temps) est quant à lui lié au déconfinement causé par le creusement du puits qui va modifier l'équilibre mécanique existant (Miehe, 2004). Dans le cas des tunnels, dont le diamètre est d'ordre métrique et qui est en général ventilé (naturellement ou artificiellement), le massif rocheux se désature progressivement avec le temps, cherchant à se rééquilibrer hydriquement avec l'atmosphère du tunnel (du Suau de la Croix, 2006). Une zone désaturée apparaît assez rapidement autour de l'ouvrage, juste après son creusement, avec un gradient intense si la roche est très peu perméable. Si la roche est suffisamment gonflante et les contraintes orthoradiales en paroi assez faibles, son retrait en paroi induit une rupture par traction parallèle à la stratification.

Ce phénomène a pu être observé, par exemple, dans certaines galeries creusées dans les argilites du site de Tournemire, où une zone endommagée d'environ 1 m d'épaisseur, constituée de fractures ouvertes en « pelures d'oignon » parallèles aux parois, a été observée uniquement autour du tunnel datant du XIX^e siècle et non autour des galeries creusées plus récemment (en 1996 et en 2003).

Il semblerait donc que cette fracturation soit apparue de manière différée. Comme les modèles de comportement viscoplastiques, poromécaniques et de gonflement ne permettent pas d'expliquer son apparition, il est probable que cette zone en rupture ait pour origine la dégradation avec le temps de la résistance de la roche en paroi du tunnel. Cette dégradation peut être induite par les cycles successifs de désaturation/resaturation au cours du temps (Ben Slimane et al., 2008).

En ce qui concerne les puits d'injection de CO₂, Roegiers (2002) signale que l'épaisseur de la zone endommagée et l'intensité de l'endommagement dépendent des propriétés mécaniques du milieu considéré, des contraintes initiales dans le massif, du diamètre et de l'orientation du puits, de la méthode de foration utilisée et de la pression dans le puits.

L'évaluation de l'épaisseur de la zone endommagée, ainsi que la relation entre l'endommagement de la roche et la variation de sa perméabilité sont importantes pour l'analyse de risque car la zone endommagée est présente sur toute la longueur du puits et se présente donc comme un chemin d'écoulement préférentiel entre le réservoir et la surface. Elle nécessite notamment une caractérisation mécanique des différentes formations traversées par le puits.

4.2.3 SOLLICITATION DES CUVELAGES LORS DE LEUR MISE EN PLACE

L'intégrité des cuvelages peut être compromise lors de leur mise en place, lorsque les aciers sont soumis à des sollicitations mécaniques (courbure, pression de pore) mais également chimiques (présence d'H₂S). Il faut également noter que de simples chocs lors de leur manipulation peuvent également être à l'origine d'un affaiblissement localisé de leurs propriétés.

Rappelons que l'arrêté du 22 mars 2000 (publié au JO n°73 du 26/03/2000 <http://www.industrie.gouv.fr/sdsi/dtss/regl/cdrgie/fo.htm>) décrit les dispositions applicables aux cuvelages des sondages et des puits²⁶ :

- caractéristiques du cuvelage choisies en fonction des sollicitations maximales et selon les gradients de pression auxquels ils peuvent être soumis ;
- calcul des contraintes de traction ;
- cimentation du cuvelage et vérifications de la qualité de sa mise en place (notamment des hauteurs de remontée de ciment derrière le cuvelage) ;
- essais d'étanchéité du cuvelage sur la base d'une étude tenant compte des caractéristiques du gisement, des particularités des terrains traversés et des pressions de fluide susceptibles d'exister.

²⁶ Le domaine d'application de cette arrêté est précisé dans l'article 2 comme suit : « Les travaux de recherche par forage sont réalisés dans le but de découvrir ou de reconnaître une formation géologique. Au sens du présent titre ne sont considérés comme travaux de recherche par forage que ceux conduits à partir de la surface de la terre, ou exécutés en mer. Le titre ne concerne pas les travaux de forage destinés à reconnaître un gisement par des méthodes géophysiques telle la sismique, par exemple, dans la mesure où ces travaux ne sont pas destinés à atteindre le gisement ; dans le cas contraire, réalisation de panneaux sismiques dans le gisement par exemple, le titre s'applique. De même, le titre ne s'applique pas aux travaux de forage conduits, à partir du fond, dans le cadre d'une exploitation souterraine classique. Les travaux de forage et autres travaux, rendus nécessaires pour l'exploitation du gisement, ne sont soumis au titre que s'ils sont menés à partir de la surface de la terre ou exécutés en mer, et destinés à extraire le gisement sous forme de fluides. Ne sont pas visées les opérations de dégazage conduites dans les mines souterraines de charbon. Les fluides gazeux ou liquide, visés par le titre, sont notamment ceux des gisements : géothermiques ; d'hydrocarbures liquides ou gazeux ; de gaz associés aux combustibles minéraux solides ; de gaz carbonique, à l'exception du gaz naturellement contenu dans les eaux qui sont ou qui viendraient à être utilisées pour l'alimentation humaine ou à des fins thérapeutiques. Sont également soumises, les exploitations du gisement en place s'effectuant par dissolution, liquéfaction, gazéification, lixiviation et tout autre procédé d'extraction par l'intermédiaire d'un fluide. »

4.2.4 INFLUENCE DE LA QUALITE DES CIMENTATIONS

La qualité de la cimentation joue un rôle fondamental dans l'étanchéité d'un puits. On considère qu'un ciment de très bonne qualité et correctement mis en place possède une perméabilité de l'ordre de 10^{-5} milliDarcy²⁷ (Nelson, 1990). Une telle perméabilité limiterait fortement la circulation des fluides et donc la possibilité de fuites (Randhol et al., 2007).

En revanche, cette perméabilité est fortement accrue dès qu'une zone dégradée apparaît. Pour illustration, une zone dégradée de 1 mm d'épaisseur au niveau des interfaces roche-ciment ou ciment-cuvelage aboutit à un accroissement significatif de la perméabilité, qui peut alors atteindre jusqu'à 100 Darcy (Celia et al., 2004). Par ailleurs, si le fluide est corrosif, l'ouverture de la fuite peut s'accroître au cours du temps et donc également son débit (Scherer et al., 2004).

Les interfaces ciment-cuvelage, ciment-roche hôte ou ciment-ciment se présentent comme des chemins préférentiels de fuite. Les opérations de cimentation du cuvelage sont donc cruciales pour assurer le maintien de l'intégrité du puits et de limiter le nombre d'interfaces entre les matériaux. Les problèmes de cimentation à l'origine des fuites de gaz sont les suivants :

- la création de chenaux (« mud channels ») au sein du ciment suite à une mauvaise évacuation des boues avant ou pendant la cimentation (voir *Figure 24a* et *Figure 25a*) ;
- l'apparition de ruptures de retrait au sein du ciment ou, au contraire, d'un gonflement du ciment suite à une hydratation (*Figure 24c*) ;
- la perte de ciment dans des fractures de l'encaissant ou par des ouvertures induites par des gradients de pression trop importants ou encore par la succession de cycles de pression-température ; ces discontinuités peuvent induire une perte de contact entre le ciment et le tubage ;
- la déviation des puits qui peut également affecter la mise en place du ciment lorsque l'espace annulaire devient insuffisant (*Figure 25b*).

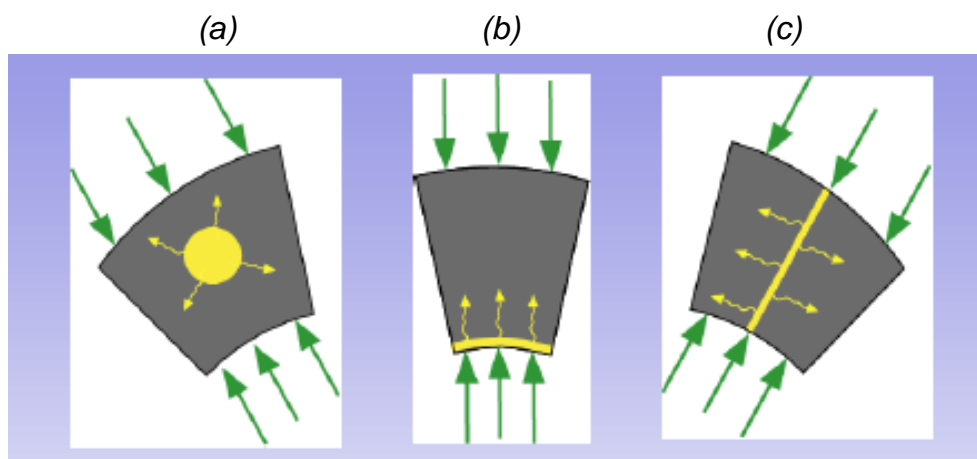


Figure 24 : Schéma des détériorations de la cimentation suite à sa mise en place (Huerta et al., 2007)

²⁷ Le Darcy est la perméabilité d'un milieu qui laisse passer, par seconde, 1 cm^3 de liquide de viscosité égale à celle de l'eau à 20°C (voisine de $10^{-3} \text{ Pa}\cdot\text{s}$) sous l'effet d'une différence de pression de 1 atm. ($1 \text{ Darcy} = 10^{-12} \text{ m}^2 = 10^{-5} \text{ m/s}$).

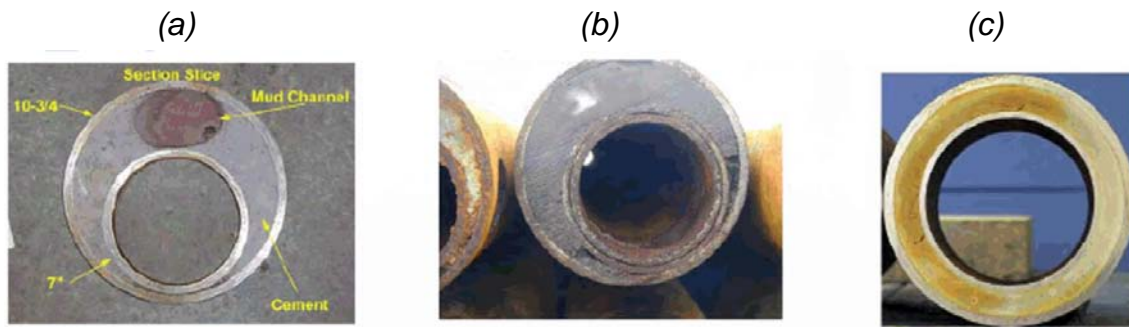


Figure 25 : Exemple de détérioration de la cimentation (Huerta et al., 2007) :
 (a) chenal de boue ; (b) Défaut de centrage ; (c) Microfissures radiales

Pour limiter ces phénomènes, il est nécessaire de s'assurer que :

- la boue de forage possède la densité appropriée ;
- la boue de forage est bien chassée lors de la phase de cimentation ; le nettoyage du forage est donc essentiel avant la mise en place du ciment pour éviter la création de chenaux de boue mais également pour limiter la perte de résistance du ciment consécutive à son mélange avec la boue ;
- la couche de protection des cuvelages est bien enlevée lors de la cimentation pour assurer une bonne adhérence du ciment ;
- le cuvelage est bien centré au sein du puits ;
- les manœuvres de tubes évitent tout effet de pistonage.

4.3 PERTURBATIONS APPARAISSANT LORS DE LA PHASE D'INJECTION

L'injection de CO₂ à l'état supercritique dans un réservoir géologique est de nature à induire des perturbations du cuvelage, de la cimentation et du massif rocheux dans le proche-puits. On peut distinguer ces perturbations suivant qu'elles sont d'origine thermique, hydraulique mécanique ou chimique, tout en sachant qu'il existe des couplages entre ces différents processus.

Les éléments constitutifs du puits (cuvelage, complétion et cimentation) ainsi que la roche endommagée par le creusement du puits, seront soumis au cours de l'injection à :

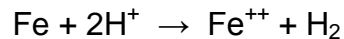
- des variations de contraintes effectives liées à l'augmentation locale des pressions de pore à proximité de la zone d'injection (Krilov et al., 2000) ;
- des variations de contraintes d'origine thermique induites, soit par le refroidissement dû à la détente du CO₂ supercritique à proximité du puits d'injection, soit par la différence de température entre le CO₂ injecté et la roche réservoir (Heffer, 2002 ; Oldenburg, 2007) ;
- des variations d'origine chimique liées à une dissolution ou à une précipitation de matière induisant une modification de la structure géométrique et des caractéristiques de résistance et de perméabilité du ciment et/ou de la roche.

En outre, la phase de fermeture du puits induit de nouvelles modifications THMC caractéristiques d'une évolution lente vers un nouvel état d'équilibre. Cette phase, qui débute lors de l'interruption de l'injection et/ou la mise en place d'un bouchon de scellement, a donc été distinguée de la phase d'injection et sera traitée dans le deuxième rapport qui complètera le présent document.

4.3.1 CORROSION DES ACIERS

Mécanismes initiateurs

Le processus principal de dégradation de l'acier du cuvelage au cours du temps est la corrosion. Dans un environnement acide et réducteur, quelle qu'en soit son origine, les aciers peuvent être corrodés selon la réaction suivante :



Le fer est alors transformé en ion ferreux et la surface de l'acier apparaît corrodée. Le facteur principal de corrosion est le pH de la solution au contact de l'acier. Dans le cas du stockage de CO₂, les facteurs déterminant la corrosion sont indirectement la température et la pression partielle de CO₂, paramètres qui conditionnent sa mise en solution et donc l'acidité du milieu.

Les aciers classiques au carbone sont susceptibles d'être attaqués par les saumures et les fluides riches en CO₂ (Scherer et al., 2005). En effet, leurs propriétés ne leur permettent pas de résister aux attaques acides dans les conditions normales régnant dans les puits.

Pour accroître la résistance du cuvelage à la corrosion, on utilise des aciers inoxydables. L'utilisation d'un acier inoxydable au chrome est également possible (bien qu'elle augmente le coût d'investissement d'un facteur 4) : ainsi, une teneur de 13% en chrome permet de résister à des températures allant jusqu'à 90°C et un pH de 3,5 (Havlik et al., 2007). Les oxydes qui se forment en surface de l'alliage renferment alors une forte proportion d'oxyde de chrome de type (Cr₂O₃) qui gêne la progression de l'oxygène et/ou le transfert d'électrons nécessaire à l'oxydation : on parle alors de passivation. Toutefois, la corrosion n'est pas annulée mais simplement ralentie de quelques ordres de grandeur. L'effet protecteur du chrome croit en général avec sa teneur et un minimum de 12 % apparaît nécessaire. Toutefois, les aciers destinés à des environnements agressifs, par exemple en présence de chlorures ou en milieu acide, ont des teneurs pouvant atteindre 25 % en poids. Le film protecteur d'oxydes de chrome étant progressivement détruit au fur et à mesure de l'accroissement de la température (Zhang et al., 2005), certains alliages plus performants intègrent également du nickel et du molybdène (Moreira, 2004).

Vitesses de corrosion

La cinétique de corrosion dépend à la fois des caractéristiques propres de l'acier et des facteurs extérieurs (thermiques, chimiques, biologiques²⁸) auxquels il est soumis (Charmoille & Thoraval, 2008). Plusieurs auteurs ont tenté de déterminer des lois (empiriques ou théoriques) exprimant la vitesse de corrosion en fonction du temps dans différents types de conditions.

²⁸ En l'absence d'oxygène, la corrosion de l'acier peut être favorisée par la présence de bactéries. C'est ce qu'on appelle la " Microbiologically Influenced Corrosion - MIC " (Yeager et al, 1994).

A titre d'exemple, une étude coordonnée par Gaz de France, citée par Patroni (2007), propose d'exprimer la perte d'épaisseur P du cuvelage au cours du temps sous la forme d'une loi de puissance du type $P = k t^n$, où k et n sont des paramètres déduits de l'expérience. Cette loi empirique implique une vitesse de corrosion très importante durant les premières années, qui tend ensuite à se stabiliser vers des valeurs significativement plus faibles (Figure 26).

Patroni (2007) fournit ainsi des valeurs de 50 à 100 $\mu\text{m}/\text{an}$ pour une corrosion uniforme et de 100 à 150 $\mu\text{m}/\text{an}$ pour une corrosion localisée. Ces valeurs, déterminées expérimentalement dans le cas d'un cuvelage non traité (sans protection cathodique²⁹) mis en contact avec un terrain corrosif, sont vraisemblablement majorantes (et d'ailleurs considérées comme telles par l'auteur), mais possibles dans des circonstances particulièrement défavorables.

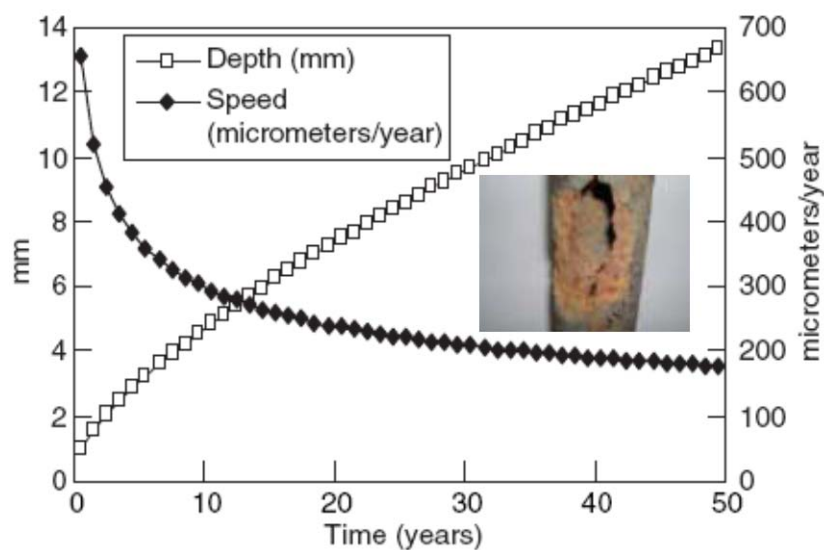


Figure 26 : Variation de l'épaisseur du cuvelage en acier et de la vitesse de corrosion au cours du temps (Patroni, 2007)

Selon les sources bibliographiques, les vitesses de corrosion des aciers en contexte de stockage de CO_2 sont beaucoup plus fortes (Tableau 7).

²⁹ La protection cathodique est utilisée pour protéger les structures métalliques de la corrosion, notamment l'acier. Le principe de base est de porter le potentiel d'un métal à un niveau dit de passivation.

Source	Vitesse de corrosion
Carvalho et al. (2005) ³⁰	Environ 0,3 à 0,9 mm/an
George (2003) ³¹	< 6,3 mm/an
De Waard & Lotz (1993)	< 20 mm/an
Cui et al. (2004)	< 30 – 25 mm/an

Tableau 7 : vitesse de corrosion des aciers (Mulders, 2007)

Les vitesses de corrosion peuvent être très variables en fonction des conditions de pression et température (Cailly et al., 2005) :

- 25 mm/an à 65°C et sous une pression de CO₂ de 1 MPa
- 250 mm/an à 82°C et sous une pression de CO₂ de 16 MPa

Pour des alliages, ces vitesses sont très significativement réduites comme le montre la Figure 27 qui présente l'évolution des vitesses de corrosion de plusieurs alliages en fonction de la température (Moreira, 2004).

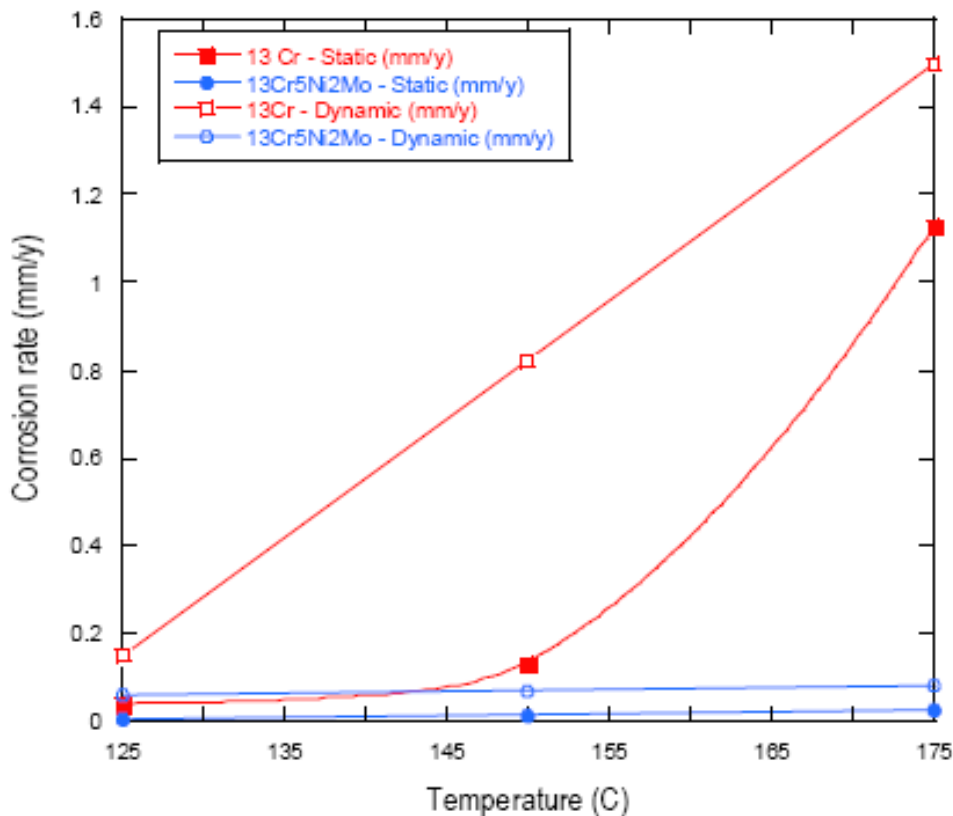


Figure 27 : Vitesse de corrosion de différents alliages en fonction de la température (150 et 175°C) à une pression partielle de CO₂ de 0,482 MPa (d'après Moreira, 2004)

³⁰ Référence citée par Mulders (2007), mais non retrouvée.

³¹ Référence citée par Mulders (2007), mais non retrouvée.

Ces éléments permettent de calculer le temps nécessaire pour corroder un cuvelage standard de 244 mm de diamètre (9 5/8”) et de 14 mm d’épaisseur en fonction de la température et de la nature de l’acier (*Tableau 8*). Si l’acier dit « 13Cr » conduit à des performances intéressantes pour des températures inférieures à 150°C, il faut noter qu’il présente des limites à hautes températures et dans des environnements particuliers, notamment en présence de H₂S. Les résultats présentés dans le tableau permettent d’estimer que le temps nécessaire à une corrosion varie d’une dizaine d’années à quelques siècles. Cela signifie que l’intégrité du cuvelage ne peut être assurée qu’à court et moyen terme.

Température (°C)	Statique (sans écoulement)		Dynamique (avec écoulement)	
	13Cr	13Cr ₅ Ni ₂ Mo	13Cr	13Cr ₅ Ni ₂ Mo
125	357	2 858	95	238
150	110	1 299	17	204
175	13	550	10	179

*Tableau 8 : Temps (années) nécessaire pour corroder un tubage
(calcul basé sur les données de Moreira, 2004)*

Le choix de la nature du matériau pour le tubage doit être réalisé en intégrant tous les environnements auxquels le puits sera soumis pendant sa vie. Une bonne qualité des aciers lors de l’installation des différents éléments des puits permet éviter une ruine prématurée de l’ouvrage. Enfin, il est essentiel de veiller à l’emploi de matériaux de même nature pour les différents composants du puits, ceci afin d’éviter toute corrosion galvanique.

Figures de corrosion

La corrosion des cuvelages peut être uniforme ou localisée.

Dans le cas d’une corrosion uniforme, il est possible d’estimer la vitesse de corrosion et de surdimensionner l’épaisseur des aciers ou encore d’associer des composants limitant la corrosion. Néanmoins, la meilleure solution - mais la plus coûteuse - reste d’employer des alliages résistants à la corrosion.

Pour ce qui est de la corrosion localisée, il est distingué deux types : la formation de fissures et le piquage, figure de corrosion caractéristique des aciers. Il semblerait (Moreira, 2004) qu’un piquage des aciers soit plus communément observé dans le cas de puits d’injection de CO₂.

Périodes favorables à la corrosion

La corrosion induite par du CO₂ sec à l’état supercritique est très faible (Cailly et al., 2005), voire théoriquement nulle. Ainsi, au cours de la phase d’injection, les risques de corrosion des aciers constituant le puits semblent limités dans la mesure, où en principe, le CO₂ injecté ne contient pas d’eau (sauf éventuellement sous forme d’impuretés) et où des adjuvants inhibiteurs sont utilisés en complément.

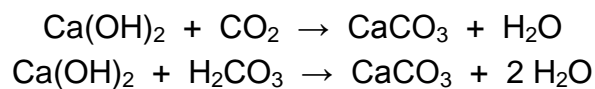
Après la phase d'injection, en revanche, le CO₂ supercritique présent à proximité du puits devrait se réhydrater et se dissoudre dans la nappe existante (voir chapitre 5) ; les aciers des cuvelages (voir § 4.3.2) sont donc susceptibles d'être corrodés à long terme par des fluides acides.

4.3.2 REACTIONS CHIMIQUES SUR LES CIMENTS

On distingue deux types principaux de réactions sur les ciments : la carbonatation et la dissolution.

Carbonatation

Les ciments contiennent de l'hydroxyde de calcium Ca(OH)₂ qui peut réagir avec le CO₂ gazeux ou certains de ses dérivés aqueux (comme l'acide carbonique H₂CO₃) selon les réactions suivantes :



Ces deux processus conduisent à la précipitation de carbonate de calcium (CaCO₃) et forment ce qu'on appelle la carbonatation (*Figure 28*). Il en résulte une réduction de la porosité du ciment car le précipité de carbonate de calcium néoformé est plus volumineux que l'hydroxyde de calcium initialement en place.

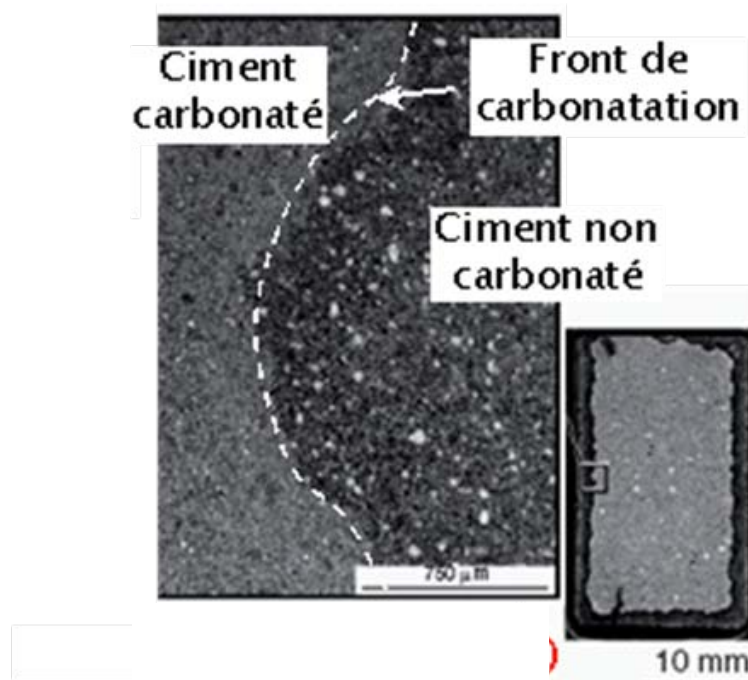
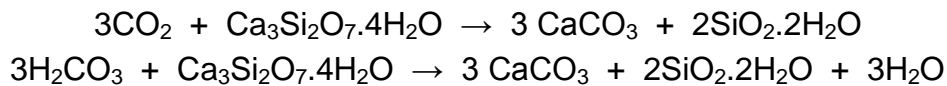


Figure 28 : Visualisation du front de carbonatation d'un ciment au contact du CO₂ (Barlet-Gouédard, 2007)

Dissolution

La percolation d'acide carbonique au sein d'un ciment s'accompagne de réactions chimiques modifiant la structure du ciment et entraînant une réduction de ses propriétés mécaniques. En particulier, il s'agit de la réaction entre le CO₂ et les silicates de calcium hydratés. Ces derniers, en présence de CO₂ gazeux ou de ses produits aqueux, peuvent se transformer en calcite (CaCO₃) avec cette fois une perte de volume et donc un accroissement de la porosité :



En outre, lorsque le pH est faible, le CaCO₃ néoformé peut même se dissoudre, induisant un accroissement supplémentaire de la porosité (Randhol et al., 2007 : voir *Figure 29*).

Cette destruction des ciments dépend principalement de la pression partielle en CO₂, de la température (Onan, 1984) et dans une moindre mesure de la saturation en eau. Il est à noter que la teneur en silicates influence également la vitesse d'avancement du front de dissolution. En particulier, il a été mis en évidence qu'à une température de 150°C et sous 0,8 MPa de pression partielle de CO₂, les échantillons contenant des silicates étaient dégradés plus en profondeur que ceux qui n'en contenaient pas (Milestone et al., 1986). Cela pourrait être lié à l'augmentation de porosité qui survient lorsque la silicate réagit avec le CO₂ et qui permet au CO₂ de pénétrer plus en profondeur.

Pour fixer les idées, des ordres de grandeur des vitesses d'avancement du front de dissolution sont données dans le *Tableau 9* ci-après pour un ciment Portland (le plus employé dans l'industrie).

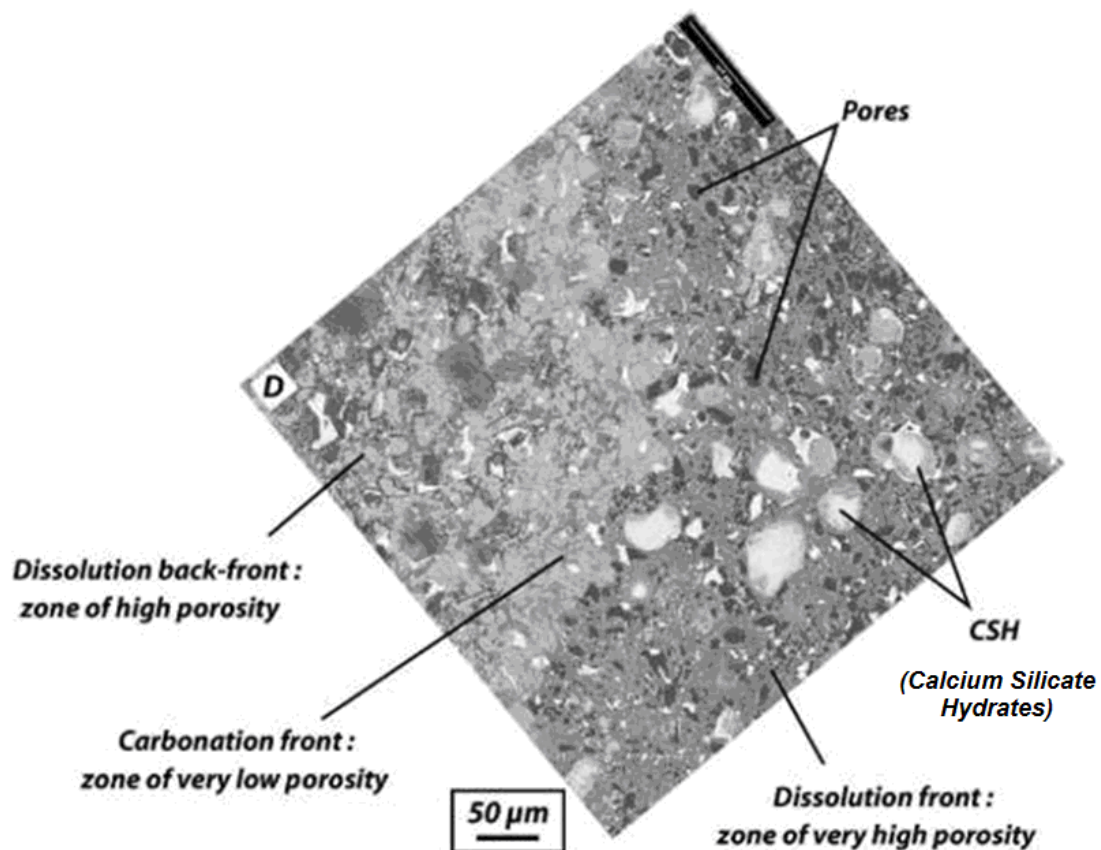


Figure 29 : Altération de la porosité du ciment Portland d'après Barlet-Gouédard et al. (2006) cités par Randhol et al. (2007)

Source	Temps nécessaire pour atteindre une dissolution profonde de 1 pouce (2,54 cm)
Barlet-Gouédard et al. (2006)	> 1 an
Duguid et al. (2004)	De l'ordre de 60 à 110 ans
Duguid et al. (2006)	< 700 ans

Tableau 9 : Vitesse d'avancement du front de dissolution (d'après Mulders, 2007)

On constate que les estimations sont assez variables et qu'il s'agit là d'un point important de la recherche actuelle.

Dans l'approche de Barlet-Gouédard et al. (2006) où la vitesse d'avancement du front de dissolution est la plus rapide, une loi expérimentale d'avancement du front a été ajustée sur des résultats expérimentaux en fonction de la nature du fluide en présence. L'expérience a porté sur du ciment Portland, testé en autoclave, dans de l'eau saturée en CO₂ et dans une atmosphère de CO₂ supercritique à une température de 90°C.

La loi obtenue est de la forme $d = A \sqrt{t}$ où d est la distance en millimètres, t le temps en heures et A un coefficient qui vaut :

- $A=0,2622$, en présence de CO_2 supercritique saturé en eau,
- $A=0,2182$, en présence d'eau saturée en CO_2 .

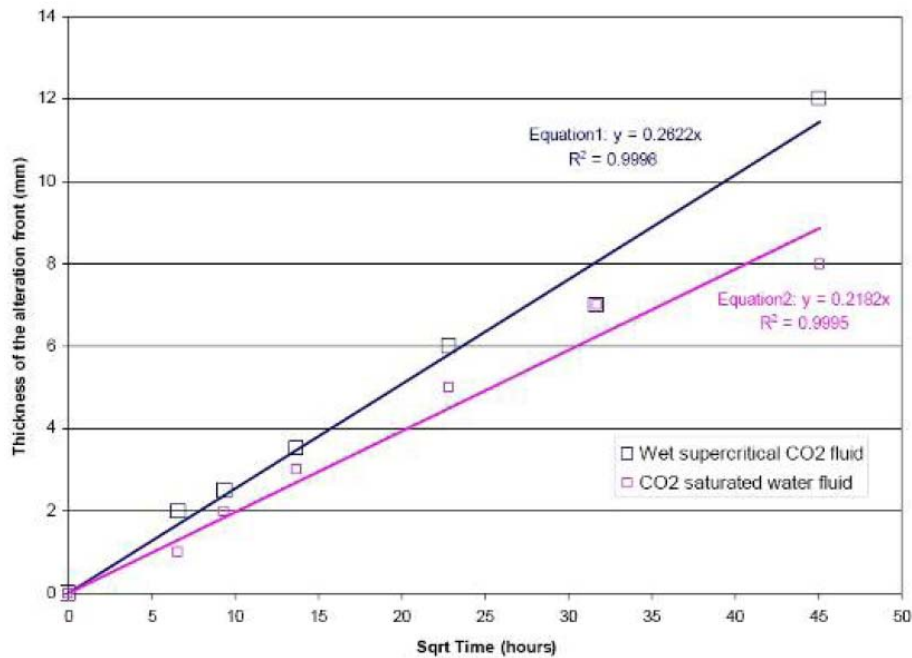


Figure 30 : Taux de carbonatation du ciment Portland (Barlet-Gouédard et al., 2006)

A partir de cette loi empirique, il devient possible d'estimer le temps nécessaire à la dissolution totale d'une épaisseur donnée de ciment (Tableau 10).

Epaisseur de ciment	Temps d'endommagement par dissolution (en années)	
	CO_2 supercritique saturé	Eau saturée en CO_2
6 m (± 20 ft)	60 000	86 000
10 m (± 30 ft)	170 000	240 000
15 m (± 50 ft)	390 000	560 000
30 m (± 100 ft)	1 500 000	2 200 000
50 m (± 150 ft)	4 100 000	6 000 000
100 m (± 300 ft)	17 000 000	24 000 000

Tableau 10 : Temps théorique nécessaire à la dissolution d'un bouchon de ciment (d'après Mulders, 2007)

L'inclusion de quartz dans des ciments Portland (Beddoe et al., 2005) permet de ralentir leur vitesse de dégradation par un accroissement de la tortuosité au sein du ciment. Par ailleurs, Schlumberger a mis au point un ciment moins sensible aux phénomènes précédemment décrits (Barlet-Guedard et al., 2006). D'autres compagnies ont, quant à elles, développé des ciments à base de phosphate accroissant leur résistance à l'acidité. Alors que les ciments Portland classiques perdent 50 % de leur poids par corrosion, ces derniers n'en perdent que 3 % (Brothers, 2005). En plus des phosphates, il est également possible de combiner d'autres éléments tels que le potassium et le magnésium.

5. ELEMENTS D'EVALUATION DES ALEAS LIES AUX PERTURBATIONS DU RESERVOIR DANS LE PROCHE-PUITS

Après avoir abordé au chapitre précédent les aléas spécifiquement liés aux puits, nous allons dans ce chapitre nous intéresser aux aléas dans le réservoir, en focalisant sur le « proche-puits » qui sera le plus sollicité en phase d'injection.

5.1 DEFINITION DU PROCHE-PUITS

Le champ dit « proche-puits » concerne la partie du réservoir directement soumise à l'influence du puits d'injection. Cette influence résulte non seulement des perturbations mécaniques induites par le creusement du puits mais également des perturbations THMC induites par l'injection du CO₂. L'extension de cette zone n'est pas précisément définie et dépend des conditions d'injection et des propriétés intrinsèques du réservoir de stockage (Azaroual, communication personnelle.).

Dans le cas d'un aquifère salin profond, en s'éloignant du puits d'injection, on rappelle qu'il existe quatre zones successives au sein desquelles les réactions chimiques vont différer (Figure 31) :

- Une zone asséchée et saturée en CO₂ supercritique ;
- Une zone renfermant du CO₂ supercritique et de la saumure acidifiée ;
- Une zone saturée par de la saumure chargée en CO₂ ;
- Une zone intacte, saturée par de la saumure en place.

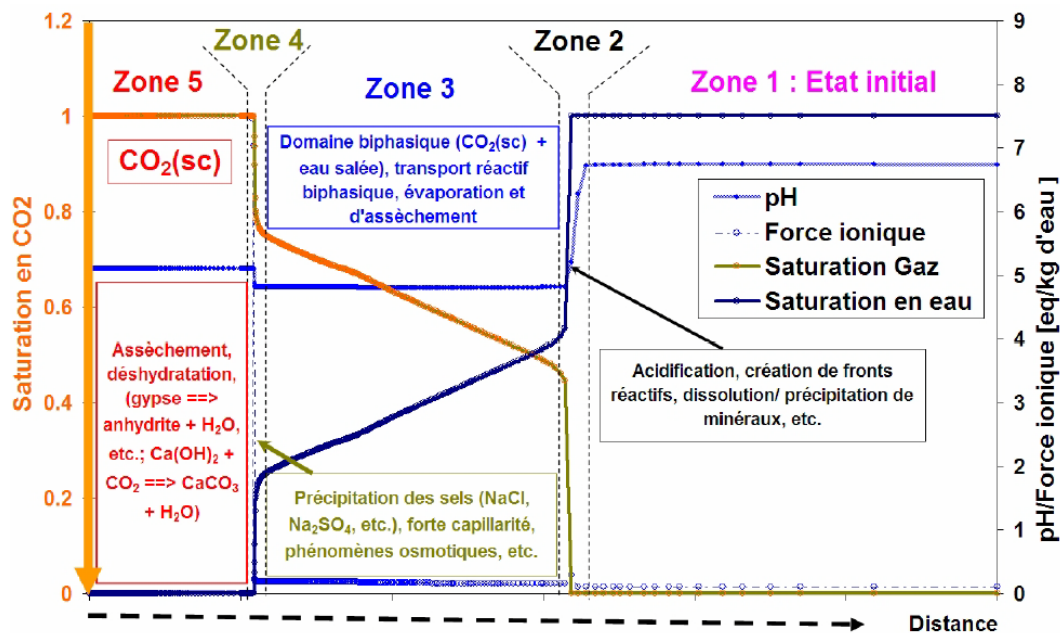


Figure 31 : Succession des fronts réactifs dans l'environnement d'un puits injecteur de CO₂ (Azaroual et al., 2007b)

Dans le cas d'un injection simulée de 1 MtCO₂ par an pendant 30 ans dans l'aquifère salin profond du Dogger du bassin parisien, Azaroual et al. (2007b) ont proposé une délimitation géographique de ces différentes zones autour du puits injecteur

(Figure 32). Ainsi, la zone 5, qui renferme essentiellement du CO₂ à l'état supercritique devrait s'étendre sur 100 m de part et d'autre du puits injecteur en fin de période d'injection : elle sera séparée de la zone 3, diphasique (CO₂ + saumure), par une zone de transition de 10 m d'épaisseur environ correspondant à la zone 4.

On peut donc assimiler – en première approximation – le champ proche-puits à la zone 5 ainsi, éventuellement, qu'à la zone 4 (transition). Le rayon d'une centaine de mètres obtenu dans cet exemple peut être considéré comme un bon ordre de grandeur de l'extension de la zone proche-puits dans le cas d'un site de stockage géologique en aquifère salin profond en fin de période d'injection. Cependant, cette valeur ne sera pas forcément la même sur d'autres sites de stockage, notamment si le réservoir est de nature différente ou si le débit ou la durée d'injection varie.

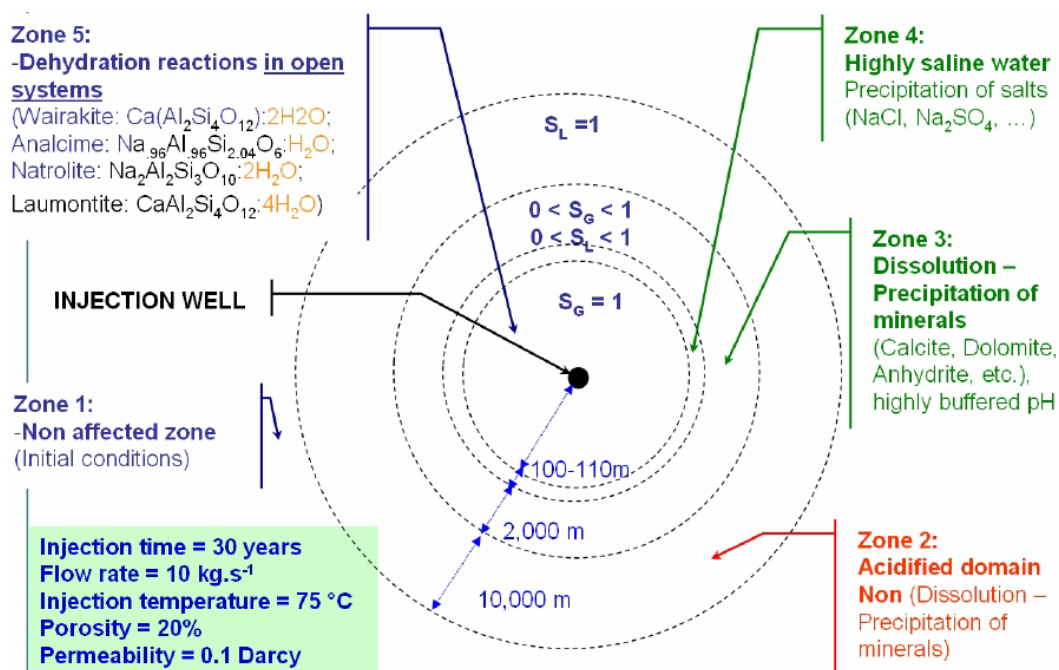


Figure 32 : Zonage phénoménologique du puits et du proche puits d'injection du CO₂ (Azaroual et al., 2007b)

Légende : S = degré de saturation en fluide (G = Gaz, L = Liquide)

5.2 PERTURBATIONS DU CHAMP DE CONTRAINTES LIEES A L'INJECTION DU CO₂

Dans ce chapitre, on présente les différentes sources de perturbations liées à l'impact de l'injection de CO₂, notamment à l'état supercritique, sur le champ « proche-puits ».

Comme cela a déjà été suggéré, on distingue les perturbations induites suivant qu'elles sont d'origine mécanique, thermique, hydraulique ou chimique, tout en sachant qu'il existe des couplages entre ces différents processus. Brosse et al. (2007) précisent à ce sujet qu'il est nécessaire, lors des modélisations de comportement du réservoir, de combiner plusieurs modèles « car les couplages concernés (hydrodynamique, mécanique, géochimique) ne sont pas actuellement inclus dans un simulateur unique ».

On a vu précédemment qu'il existe un anneau de roche endommagée par le creusement du puits sur une distance de quelques centimètres à décimètres autour du puits : dans le domaine du stockage de déchets radioactifs, cette zone est connue sous l'appellation « EDZ » (Excavation Disturbed Zone). C'est cette zone qui risque de constituer la voie de fuite préférentielle dans le champ proche-puits car elle va être soumise au cours de l'injection à :

- des variations de contraintes effectives dues à l'augmentation locale des pressions de pore dans le réservoir ;
- des variations de contraintes d'origine thermique induites par le refroidissement dû à la détente du CO₂ supercritique ou par la différence de température entre le CO₂ injecté et la roche réservoir ;
- des variations de contraintes d'origine chimique liées à une dissolution ou à une précipitation de matière.

Note : le comportement géomécanique de la roche constitutive du réservoir dans le proche-puits est en cours d'étude dans le cadre du programme ANR « Proche Puits » (Azaroual, Lombard et al., 2007) ; ce programme doit étudier le comportement physique du puits et son impact sur le champ proche, les effets thermiques et leur incidence sur les processus physico-chimiques ainsi que l'assèchement du proche puits et la réactivité des solutions aqueuses résiduelles fortement salées retenues par des phénomènes capillaires dans les pores et petites fissures.

5.2.1 Augmentation de pression induite par l'injection

Note : les résultats présentés ci-dessous proviennent de simulations basées sur certaines hypothèses et reposant sur des données qui peuvent varier considérablement d'un site à l'autre ; il n'est donc pas certain que cela reproduise strictement la réalité.

Magnier et Michel (2007) ont montré que, dans le cas d'un aquifère salin profond, l'injection simulée de 190 tCO₂/jour conduit à une légère augmentation de la pression dans le champ proche-puits pendant la période d'injection. La pression passe ainsi de 159 bar (15,9 MPa) à près de 168 bar (16,8 MPa) dans les mailles situées en amont et en aval immédiat du puits injecteur (Figure 33). L'essentiel de cette surpression de +0,8 MPa se résorbe après environ 3 500 jours (soit une dizaine d'années), c'est-à-dire assez rapidement à l'échelle de la vie du site. Au-delà, la décroissance devient nettement plus lente.

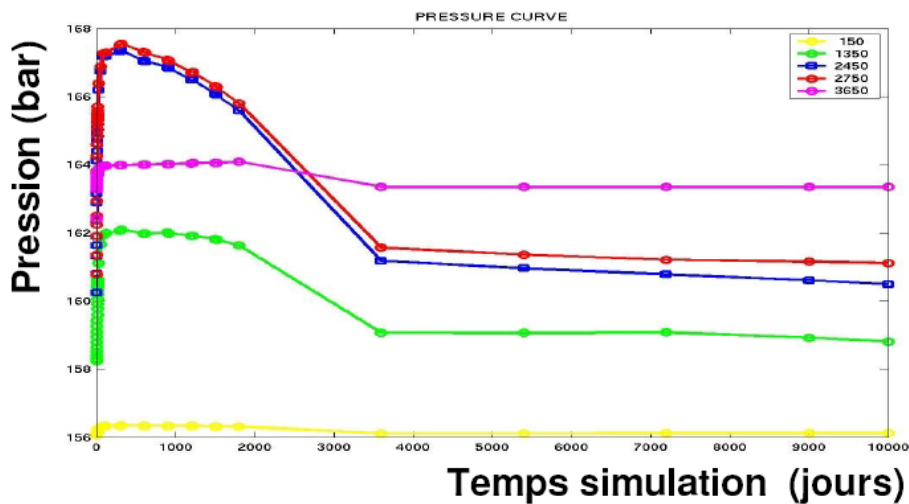
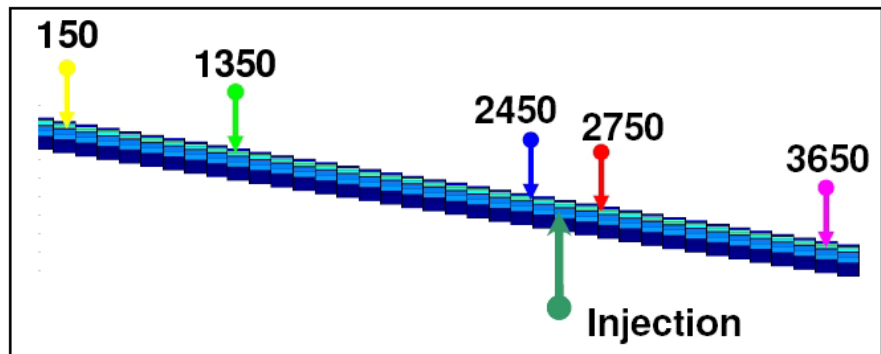


Figure 33 : Simulation de l'évolution de la pression au cours du temps dans un aquifère salin profond (Magnier et Michel, 2007)

(la localisation des mailles modélisées est présentée dans le schéma du haut)

Dans le Dogger du bassin parisien, Azaroual et al. (2007b) notent, en simulant l'injection de $5 \text{ kgCO}_2/\text{s}$ pendant 1 an (soit $158\,000 \text{ tCO}_2/\text{an}$), que l'augmentation de la porosité dans le champ proche-puits conduit à une légère dissipation de la pression de pore. Ils en déduisent cependant un faible impact du comportement mécanique sur la cinétique du transport et la propagation du CO_2 supercritique.

En principe, la dissipation d'une pression dépend de deux paramètres : la perméabilité du réservoir et sa raideur (pour une perméabilité donnée). La dissipation de pression est alors d'autant plus lente que la formation d'accueil du stockage est peu déformable.

Dans le modèle précédent, la simulation d'un débit d'injection plus élevé induit un fort gradient de pression qui dépend essentiellement des propriétés intrinsèques du milieu (perméabilités relatives, pression capillaire). Dans le modèle réalisé, après 1 an d'injection, ce gradient de pression diminue significativement mais hors du champ proche-puits, à savoir à environ 500 m du puits injecteur (Figure 34).

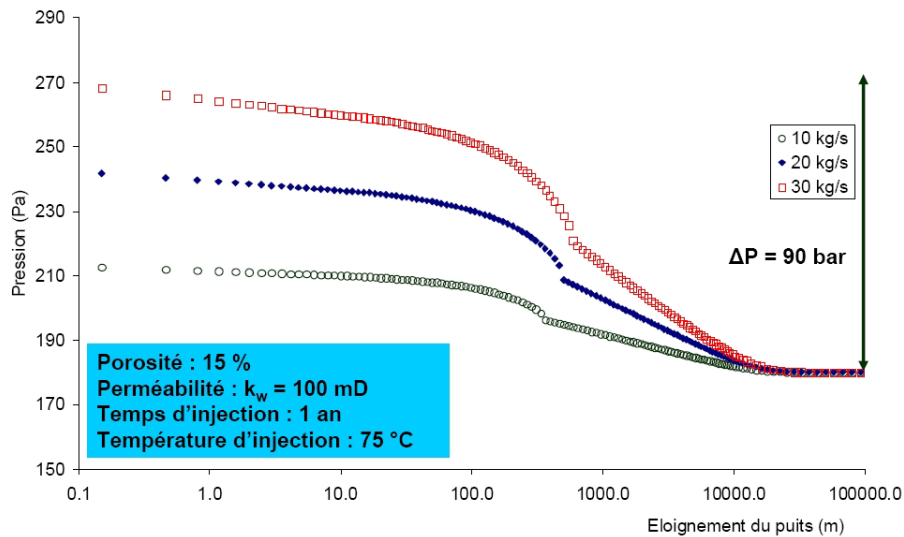


Figure 34 : Evolution de la pression en fonction du débit d'injection et de la distance au puits injecteur (Azaroual et al., 2007b)

En ce qui concerne les gisements épuisés d'hydrocarbures, l'impact mécanique de l'injection de CO₂ a été étudié à l'INERIS par Thoraval et Vidal-Gilbert (2006), dans le cadre du programme PICOREF (2007) en quantifiant :

- les changements du champ de contraintes déterminés par les variations de pression de pore ;
- la déformation associée, à la fois dans le réservoir et son recouvrement.

Ainsi, l'une des conséquences possibles de ces réajustements de contraintes concerne le risque d'apparition de ruptures plus ou moins localisées et/ou de rejeu des failles potentiellement présentes sur le site.

La Figure 35 montre l'évolution de la pression simulée pendant la phase de production du gisement (d'une durée de 34 ans) puis pendant la phase d'injection de CO₂. Au puits producteur (P1) la pression initiale est de 15,7 MPa et au puits injecteur (I0) de 15,9 MPa. Après démarrage de l'injection de CO₂ au puits I0, la pression au sein du réservoir se rééquilibre au cours du temps pour atteindre au bout de 15 ans (t = 17 450 j) une pression proche de la valeur initiale pour l'ensemble du réservoir.

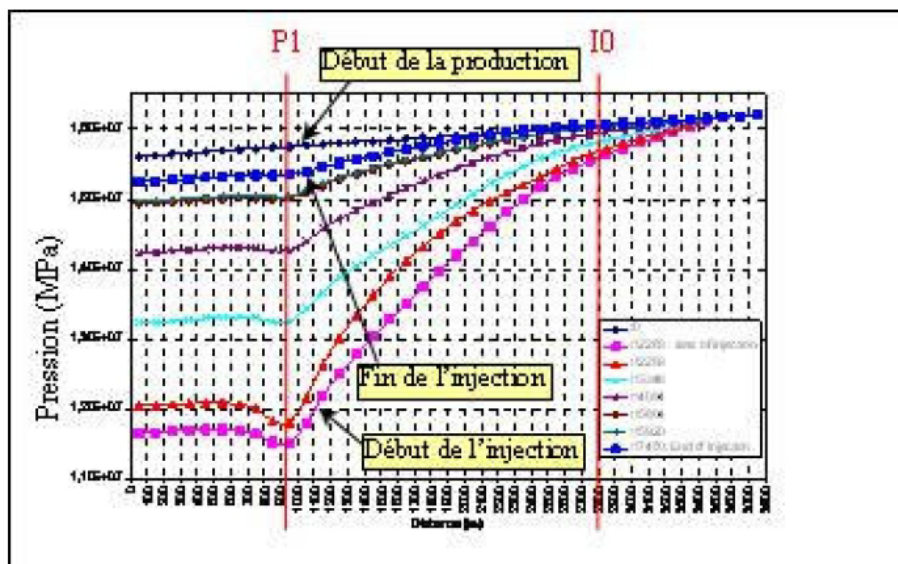


Figure 35 : Évolution simulée de la pression dans un gisement épuisé d'hydrocarbures pendant l'étape de production des hydrocarbures, puis pendant l'injection du CO₂, d'après Thoraval et Vidal-Gilbert. (2006).

Dans le but d'évaluer l'impact d'une augmentation significative de la pression d'injection de CO₂ sur le comportement mécanique du réservoir, une injection sous forte pression ($P_{CO_2} = 35$ MPa) a également été simulée mais dans des conditions excessivement pessimistes : très forte pression d'injection et très faible résistance de la roche hôte.

Dans le proche-puits, les résultats montrent :

- l'extension progressive du CO₂ dans le réservoir au cours du temps avec une désaturation en eau de la roche réservoir et une désaturation partielle des bancs localisés au mur ainsi que, dans une moindre mesure, au toit du réservoir ;
- l'apparition de zones de rupture en traction qui restent toutefois très localisées autour du puits d'injection ; cependant, il n'est pas exclu que la zone en rupture s'étende au-delà pour des durées d'injection supérieures ;
- une augmentation significative de la déformation de la structure avec des déplacements induits 10 à 20 fois plus importants que précédemment (25 mm verticalement et 20 mm horizontalement au toit du recouvrement après 1 mois d'injection).

5.2.2 Déplacements induits au toit du réservoir et en surface

Les augmentations de pression induites par l'injection de CO₂ dans le proche-puits sont susceptibles de générer des déplacements.

Ainsi, la réponse mécanique de l'aquifère profond du Dogger du Bassin Parisien soumis à l'injection de CO₂ au débit de 5 kg/s pendant 10 ans (Azaroual et al., 2007) est un déplacement maximal de l'ordre du centimètre au toit du réservoir dans l'environnement proche du puits.

Blaisonneau et al. (2007) ont quant à eux simulé l'injection de CO₂ supercritique dans un réservoir géologique profond au débit de 5 kg/s pendant 10 ans. Cette injection

engendre également des déplacements du toit du réservoir de l'ordre du centimètre ainsi qu'une légère augmentation de porosité dans l'environnement proche du puits. Cependant, les auteurs précisent que seules les modifications hydrauliques, thermiques et mécaniques ont été modélisées et que les perturbations chimiques n'ont pas été prises en compte.

D'après Thoraval et Vidal-Gilbert (2006), les variations des contraintes effectives au cours des étapes de production d'huile puis d'injection de CO₂ dans un gisement épuisé d'hydrocarbures induisent une déformation du réservoir et du recouvrement dans des sens opposés :

- une compaction maximale de -2,8 mm est obtenue au toit du réservoir au droit du puits producteur P1 à la fin de la période de production ;
- lors de l'injection de CO₂, le retour à une pression initiale engendre un soulèvement quasi identique de +2,79 mm au même point, au toit du réservoir ; en surface, le soulèvement résultant est de l'ordre de +1 mm, ce qui est tout à fait négligeable.

5.2.3 Evaluation du risque de rupture au toit du réservoir

Les modifications attendues du champ de contraintes sont susceptibles de générer de la fracturation.

Dans les travaux de Thoraval et Vidal-Gilbert (2006) qui simulent une injection sous forte pression ($P_{CO_2} = 35$ MPa) dans des conditions pessimistes (très forte pression et très faible résistance de la roche), les contraintes effectives ont été calculées comme la différence entre les contraintes totales et la pression (contraintes en compression comptées positivement). La Figure 36 montre les cercles de Mohr correspondant à l'état de contrainte en un point localisé à 3 m sous le toit du réservoir dans l'axe du puits producteur et ce, à trois étapes distinctes : à l'état initial, au début et la fin de l'injection de CO₂.

A l'état initial, en période de production d'hydrocarbures, on constate que la pression de pore diminue (PICOREF, 2007): cela induit un éloignement du cercle de Mohr par rapport à la droite représentant le critère de rupture de Mohr-Coulomb. Après injection du CO₂ la pression de pore augmente en se rapprochant de sa valeur initiale. Cependant, le cercle de Mohr reste très éloigné de la droite de rupture et, dans cette simulation, le risque de rupture au toit du réservoir est exclu.

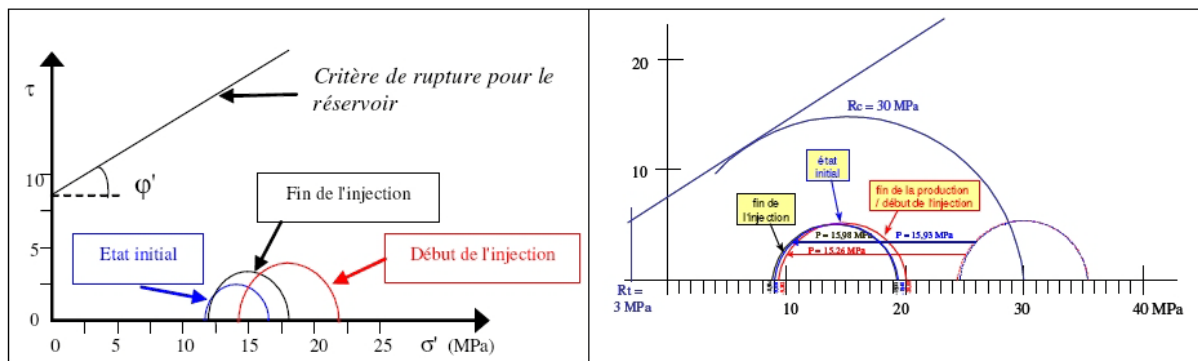


Figure 36 : Analyse des ruptures dans le réservoir au droit du puits injecteur à l'aide des cercles de Mohr d'après (Thoraval et Vidal-Gilbert, 2006), cités dans (PICOREF, 2007)

5.2.4 Évaluation du risque de cisaillement des discontinuités

Les modifications du champ de contraintes induites par l'injection sont également susceptibles de générer des glissements sur des discontinuités préexistantes (failles ou joints de stratification). Ces discontinuités n'ont pas été prises en compte dans les modèles précédemment décrits mais l'analyse du risque de cisaillement a toutefois été faite *a posteriori* sur la base des contraintes calculées dans la matrice et d'un critère de rupture pour les discontinuités (Thoraval et Vidal-Gilbert, 2006).

Les auteurs ont supposé ici que le critère de cisaillement était également un critère de Mohr-Coulomb défini par une cohésion (C_f) et un angle de frottement (Φ_f). La Figure 37 permet de positionner le point correspondant à chaque type de discontinuité par rapport à la droite définissant le critère de rupture en cisaillement de la discontinuité (on a choisi sur la figure la valeur $C_f = 0,5$ MPa et la valeur $\Phi_f = 35^\circ$).

Le risque de rupture a été étudié sur des joints de stratification quasi horizontaux ($\beta^{32} = 89^\circ$) et de failles subverticales ($\beta = 10^\circ$). Il apparaît que le risque de cisaillement des failles est plus important que celui des joints de stratification mais que le cisaillement peut être exclu - dans les deux cas - pour les conditions d'injection modélisées ici.

³² angle d'inclinaison par rapport à la verticale

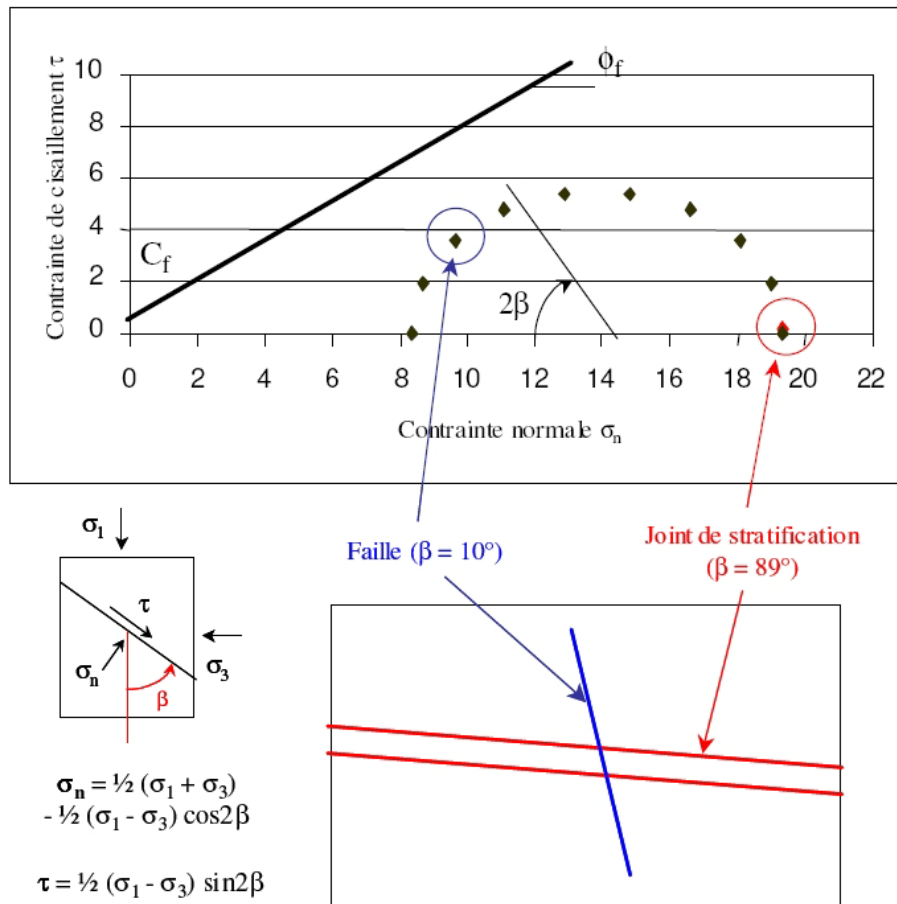


Figure 37 : Evaluation du risque de cisaillement en fonction de l'orientation des discontinuités d'après (Thoraval et Vidal-Gilbert, 2006), cités dans (PICOREF, 2007)

5.2.5 Risques sismiques et de mouvements de terrain

Les ondes dynamiques éventuellement générées par les fracturations induites peuvent constituer un risque sismique pour les enjeux en surface.

Dans le programme PICOREF (2007), l'objectif du travail était d'étudier l'impact mécanique de la production d'huile puis de l'injection de CO₂ dans un gisement épuisé d'hydrocarbures du bassin de Paris.

Deux modèles hydro-mécaniques ont été utilisés : un modèle 3-D monophasique (réalisé par l'IFP à l'aide du logiciel ABAQUS) et un modèle 2-D biphasique (réalisé par INERIS à l'aide du logiciel FLAC2D). Ces codes ont permis d'étudier l'effet des variations de pression (et de saturation dans le cas de FLAC2D) sur la stabilité mécanique de la roche réservoir.

Les phénomènes induits dans le proche-puits lors de l'injection de CO₂ seront plus ou moins intenses et variables, en termes de magnitude et de distribution spatiale. En éliminant les cas extrêmes de la rupture intra-grains et de la tectonique, les résultats des calculs suggèrent de tenir compte des impacts suivants :

- une modification significative de l'état de contraintes à l'échelle de toute une zone (réservoir pétrolier ou aquifère souterrain) peut engendrer des réajustements – si faibles soient-ils – sur l'ensemble de la structure géologique.
- lorsque l'injection du fluide est localisée et que les propriétés pétrophysiques du milieu ne sont pas favorables à la pénétration du fluide dans le milieu, les pertes de charge qui en résultent génèrent des variations de pression importantes qui affectent directement le champ de contraintes local ; ceci peut aboutir à la réactivation de fractures existantes, voire de failles, ou bien encore au développement de nouvelles fractures.

Ces impacts ont notamment été observés grâce à l'utilisation de capteurs sismiques de puits sur le site de stockage de gaz naturel de Céré-la-Ronde, lors de sa mise en gaz initiale (Deflandre et Huguet, 2002). A partir de l'interprétation de la distribution spatio-temporelle des événements, dont la magnitude est de l'ordre de -2 à 0 sur l'échelle de Gutenberg-Richter, les auteurs suggèrent un réajustement au coup par coup, écartant par là-même toute idée du développement d'une fracture hydromécanique (PICOREF, 2007). Les microséismes sont en effet, dans un laps de temps court, localisés sur des zones bien délimitées dans l'espace et en communication avec la couche soumise à l'injection.

5.3 PERTURBATIONS PHYSICO-CHIMIQUE LIEES A L'INJECTION DE CO₂

Le CO₂ à l'état pur est inerte sous forme supercritique et faiblement acide à l'état gazeux. En se dissolvant progressivement dans l'eau (voir chapitre 0 en annexe 1), il forme un acide faible, l'acide carbonique, susceptible de dissoudre la roche hôte (notamment carbonatée) ou de la transformer (néoformation de carbonates dans els roches silicatées).

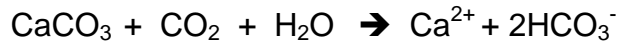
Cet impact peut être aggravé par les impuretés susceptibles d'être présentes dans le CO₂ injecté. En effet, la législation européenne en matière de CSC ne devrait pas imposer de degré de pureté du fluide injecté, lequel devra être majoritairement formé de CO₂ (Commission des communautés européennes, 2008).

5.3.1 RISQUE LIE AU CO₂

Au cours de la phase d'injection, Tocqué et Brosse (2006) ont modélisé l'instauration dans le réservoir, et principalement dans le proche-puits, d'un état de déséquilibre thermodynamique et hydrodynamique mais également chimique.

Brosse et al. (2007) décrivent par ailleurs les mécanismes qui se produisent à la fin de l'injection : le panache de gaz supercritique atteint alors sa taille maximale puis, l'injection cessant, la dissolution du CO₂ devient dominante et permet un retour progressif par « imbibition » de l'eau dans le réservoir. Au cours de cette phase, qui devrait cependant durer quelques milliers d'années, le panache s'amenuise et les contraintes mécaniques sont relaxées.

Le principal risque est lié aux phénomènes de dissolution qui sont plutôt localisés au droit du front de propagation du CO₂, c'est-à-dire à la frontière du champ proche-puits, frontière qui s'éloigne du puits au cours du temps. Dans le cas des réservoirs carbonatés, il se produit un phénomène de dissolution des carbonates de calcium selon la réaction suivante (voir annexe 1 au chapitre 0) :



Cette réaction produit du bicarbonate (ou hydrogénocarbonate) de calcium qui se retrouve en solution dans l'eau. Cependant, ce phénomène de dissolution des carbonates ne se limite pas aux réservoirs carbonatés. Ainsi, dans un aquifère situé à l'interface de basaltes et de sédiments, il a été réalisé une expérience d'injection d'un fluide saturé en CO_2 et de récupération après 3 semaines de contact (Assayag et al., 2007) : du fait de sa courte durée, ce type de test n'intéresse généralement que le proche environnement du puits d'injection. Les auteurs ont mis en évidence une dissolution des carbonates (CaCO_3 essentiellement) et, dans une moindre mesure, des silicates notamment calco-magnésiens.

L'une des roches carbonatées susceptible d'être présente dans un réservoir de stockage de CO_2 est la sidérite (FeCO_3). L'étude de sa cinétique de dissolution montre que sa vitesse de dissolution augmente avec la température et diminue avec le pH : on en déduit donc un renforcement de son potentiel de dissolution à proximité d'un puits injecteur de CO_2 (Bénézet et al., 2007).

Cependant, pour Garcia et al. (2007), l'injection de CO_2 en elle-même n'engendre qu'une porosité secondaire de très faible ampleur car la décarbonatation qui se produit au passage du front de CO_2 ne s'étend plus ensuite. L'addition de gaz supplémentaire n'aura plus d'effet sur la chimie de l'eau en équilibre avec le carbonate et la variation de porosité devrait être proche de celle qui prévaudrait en système fermé.

Il existe cependant un autre type de risque lié à l'existence de réactions de précipitations. En effet, l'injection de CO_2 sec provoquera rapidement un assèchement du milieu dans le champ proche-puits. Des modélisations numériques (André et al., 2007) ont ainsi montré que cela pouvait se traduire par la précipitation de sels et donc par une diminution de la porosité, à l'instar de ce qui se produira avec certains types de ciments (Jacquemet, 2006).

Ce phénomène risque de diminuer l'injectivité ou capacité d'injection d'un puits.

Cependant, les données actuellement disponibles sont encore peu nombreuses et la réactivité des minéraux de l'encaissant vis-à-vis du CO_2 supercritique fait partie des mécanismes potentiels qui restent encore méconnus (Regnault et al., 2005).

Dans le cas des roches-réservoirs silicatées, comme les roches basiques et ultrabasiques mais également les grès, les interactions attendues avec le CO_2 produiront des carbonates au détriment des silicates présents : il s'agit du phénomène de carbonatation qui présente l'avantage d'une grande stabilité sur des échelles de temps considérables (plusieurs millions d'années). Les phases minérales susceptibles de réagir avec le CO_2 sont principalement les aluminosilicates riches en Ca, Fe et Mg (olivine, orthopyroxène, clinopyroxène, serpentine) mais également les spinelles, les feldspaths et les verres basaltiques

Enfin, il peut également un risque de perturbation physico-chimique dans le cas de l'injection de CO_2 dans des gisements houillers. Comme le rappellent Gaucher et al. (2007), le CO_2 est un solvant organique qui peut dissoudre la matière organique du charbon : selon Karacan (2003), il peut alors la modifier « physiquement et chimiquement ».

5.3.2 RISQUE LIÉ AUX IMPURETÉS DU CO₂ INJECTÉ

Peu d'études ont abordé le rôle physico-chimique des impuretés qui seront présentes dans le CO₂ injecté. Knauss et al. (2005) ont réalisé une simulation d'injection de CO₂ pur et de CO₂ renfermant de l'H₂S ou du SO₂ comme impuretés. L'injection a été simulée pendant une période de 5 ans dans un aquifère salin profond hébergé par une roche réservoir carbonatée puis le retour à l'équilibre du système a été observé sur une période de 95 ans. Il a également été simulé la propagation d'un traceur parfait qui se déplacerait à la même vitesse que la saumure présente dans le réservoir. Les résultats sont présentés en Figure 38.³³

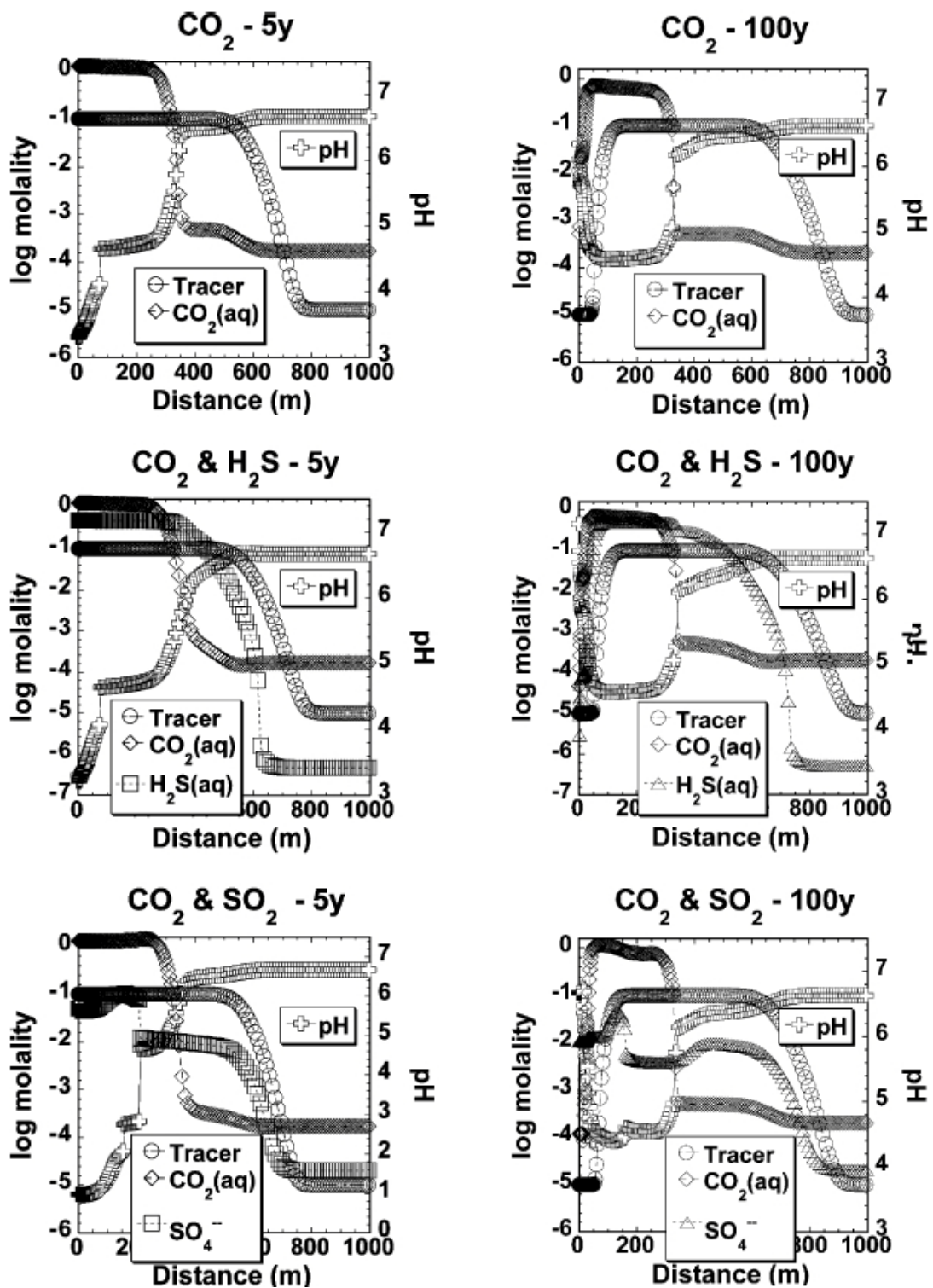
Ils montrent qu'au bout de 5 ans d'injection de CO₂ pur, le traceur a progressé de 750 m dans le réservoir alors que le front de CO₂ n'a avancé que de 300 m du fait des interactions fluide-roche (Figure 38a). Sur le plan du pH, on observe :

- une chute brutale de 6,7 à environ 3,3 au point d'injection ;
- une première remontée rapide jusqu'à environ 4,5 dans les 75 premiers mètres autour du point d'injection, correspondant à la dissolution complète de la calcite dans cette zone, assimilée au champ proche-puits ;
- une seconde remontée jusqu'au pH de départ entre 75 et 300 m de distance au point d'injection, correspondant à un domaine où la calcite est encore instable (échanges entre dissolution et précipitation) puis une zone stable au-delà de 300 m où la saumure n'a pas été affectée par l'injection.

L'injection simultanée de H₂S n'a pas d'effet majeur sur la physico-chimie ni sur les interactions fluide-roche. En revanche l'injection de SO₂ abaisse significativement le pH qui atteint 1 au point d'injection. Il peut alors se former de l'anhydrite dans un rayon de 200 m autour du puits. Cependant, les mêmes étapes que précédemment sont de nouveau observées, la première remontée du pH étant simplement plus importante.

Ces auteurs ont simulé l'évolution physico-chimique du site de stockage sur une période de 100 ans après l'injection de CO₂ et de SO₂ : ils montrent que cela induirait la précipitation supplémentaire de carbonates lié à la libération des métaux alcalino-terreux et de l'aluminium du fait de la dissolution d'autres minéraux de la roche réservoir.

³³ L'interprétation de la Figure 38b sera présentée dans le second rapport traitant des risques en phase de stockage à long terme.



a) A la fin de l'injection (5 ans)

b) A la fin du suivi (100 ans)

Figure 38 : Simulation de l'évolution spatiale de la concentration molale et du pH suite à l'injection de CO₂ dans un aquifère salin profond (Knauss et al., 2005)

5.3.3 RISQUE DE REMOBILISATION D'ÉLÉMENTS-TRACES

Le potentiel de dissolution lié au CO₂ supercritique puis à l'acide carbonique formé par sa dissolution dans l'eau, joint à la présence d'impuretés à hauteur de plusieurs % (voire dizaines de %), est de nature à créer un risque de remobilisation de certains éléments-traces pouvant être initialement présents sous forme stable dans les réservoirs de stockage du CO₂.

5.3.3.1 CAS DES FLUIDES HYDROTHERMAUX RICHES EN CO₂ (ANALOGUES NATURELS)

L'analyse des fluides hydrothermaux ayant une composition enrichie en CO₂ et des températures comprises entre 30 et 90°C, montre que l'eau peut souvent dissoudre des éléments tels que l'aluminium, le fer, les éléments de transition et les Terres Rares (Zuddas, 2009). Plusieurs études réalisées il y a une vingtaine d'année en France par les laboratoires de recherches universitaires, le BRGM et par le CEA ont montré que ces fluides jouent un rôle important dans le transport de ces éléments vers la surface (Criaud et Fouillac, 1986 ; Michard et al., 1987 ; Beaucaire, 1988 ; Sanjuan et al., 1988).

Les concentrations en aluminium et en fer des eaux très riches en CO₂ du Massif Central varient en fonction de la température : elles sont beaucoup plus élevées dans les eaux « froides » (25-40°C) que dans les eaux « chaudes » (50-70°C). Ceci a été expliqué par l'accélération des processus de dissolution des hydroxydes de fer et d'aluminium et par une rééquilibration des eaux avec la kaolinite (Zuddas, 2009). La dissolution de ces espèces solides (souvent de taille micrométrique ou nanométrique) augmente la concentration en éléments de transition et en Terres Rares. Sanjuan et al. (1988) ont montré que les terres rares lourdes sont enrichies de plus de 3 ordres de grandeurs dans ces milieux riches en CO₂ qui ont souvent une composition de type bicarbonatée sodique. Ces phénomènes ont été expliqués par des processus de stabilisation-déstabilisation des tampons minéraux faisant intervenir la calcite, la sidérite (FeCO₃) et les hydroxydes ferriques.

Les travaux de Giggenbach (1980) et Michard (1998) ont posé les bases de la modélisation prédictive de la composition des fluides riches en CO₂. Ils ont permis de déterminer la composition des fluides en considérant le nombre d'espèces minérales et/ou gazeuses en équilibre avec la solution comme égal au nombre d'éléments à solubilité limitée dans le réservoir et à la charge totale apportée par les éléments mobiles.

Ce risque de remobilisation concerne à la fois les micropolluants minéraux (métaux lourds, actinides) parfois présents au sein des aquifères salins profonds mais également les micropolluants organiques (HAP), notamment présents dans les gisements épuisés d'hydrocarbures.

5.3.3.2 CAS DES ÉLÉMENTS MINÉRAUX DE L'ANALOGUE INDUSTRIEL DU FRIO

Il existe trois possibilités de remobilisation de ces éléments traces :

- par action directe du CO₂ supercritique qui est un solvant à fort pouvoir de solubilisation des métaux et d'extraction de la matière organique ;
- par le biais de certaines impuretés injectées avec le CO₂ qui possèdent également un fort pouvoir d'extraction ;
- par effet de l'acide carbonique produit par la dissolution du CO₂ en présence d'eau (dans un aquifère ou sous forme d'impureté associée).

Le potentiel de remobilisation d'éléments initialement fixés sous forme insoluble suite à la modification de l'équilibre physico-chimique de l'eau a été démontré dans une série d'articles apparus récemment (Kharaka et al. 2006, 2007, 2009) sur le site FRIO à South Liberty au Texas. D'autres expérimentations ont été toutefois réalisées à l'aide de programmes internationaux mais la publication complète des résultats et de leur interprétation n'a pas fait l'objet de travaux édités dans des revues internationales à comité de lecture (Zuddas, 2009).

Le site de FRIO se trouve dans un champ de pétrole au sein d'une région industrielle où les sources d'émission de CO₂ sont importantes. Des forages ont été réalisés dans les années 1950 pour l'extraction de pétrole dans la formation Yegua (Eocène) à 2900 m de profondeur. Un puits inactif a été réaménagé par perforation du tubage au niveau des grès (Frio C) à la profondeur de 1528-1534 m pour être utilisé comme puits d'observation. Un autre puits, destiné à l'injection de CO₂, a ensuite été réalisé à 30 m de distance jusqu'à 1546 m de profondeur.

Le niveau FRIO B, situé au dessus du FRIO C, est constitué de grès d'origine fluviatile ayant une épaisseur de 4 m séparé de FRIO C par 15 m d'argiles, grès et silts. La principale barrière naturelle aux fuites de CO₂ vers la surface est représentée par les puissantes couches d'argiles de l'Oligo-miocène qui recouvrent la formation au niveau régional (Hovorka et al. 2006).

Une quantité totale de 1600 T de CO₂ a été injectée pendant 10 jours (du 4 au 14 octobre 2004) et environ 100 échantillons d'eaux et de gaz ont été prélevés à FRIO C avant, pendant et après l'injection de CO₂. D'autres échantillons ont été prélevés à la surface et en profondeur 6 mois après l'injection dans le puits d'observation FRIO B qui a été perforé à la profondeur de 1506-1508 m après cimentation de la précédente perforation au droit du niveau FRIO C.

Les eaux de la formation et leurs gaz ont été analysés dans les deux puits avant l'injection de CO₂. On retrouve des saumures comparables avec une composition Na-Ca-Cl et une salinité totale de 93 g/l environ. Des concentrations élevées en Mg et Ba et faibles en SO₄, HCO₃ et DOC (Carbone Organique Dissous) caractérisent leur composition chimique.

Peu après l'injection, les mesures in situ de conductivité électrique ont montré une augmentation de 120 µS/cm puis la variation des paramètres chimiques a été observée au fur et à mesure que le CO₂ atteignait le puits d'observation. En particulier, le pH a diminué de 6,5 à 5,7 et l'alcalinité a augmenté de 1,5 à 50 mmol/kg. Les mesures effectuées en laboratoire sur les échantillons conditionnés ont montré une augmentation en fer de 0,5 à 20 mM et en manganèse de 0,05 à 0,4 mM (Figure 39) ainsi qu'une augmentation significative en calcium.

La variation la plus élevée enregistrée dans la composition hydrogéochimique des fluides a été observée après 51 heures d'injection : la concentration en CO₂ du gaz total a augmenté de 0,3% à 97% et celle du CH₄ initialement présent est tombée de 95% à 3 %.

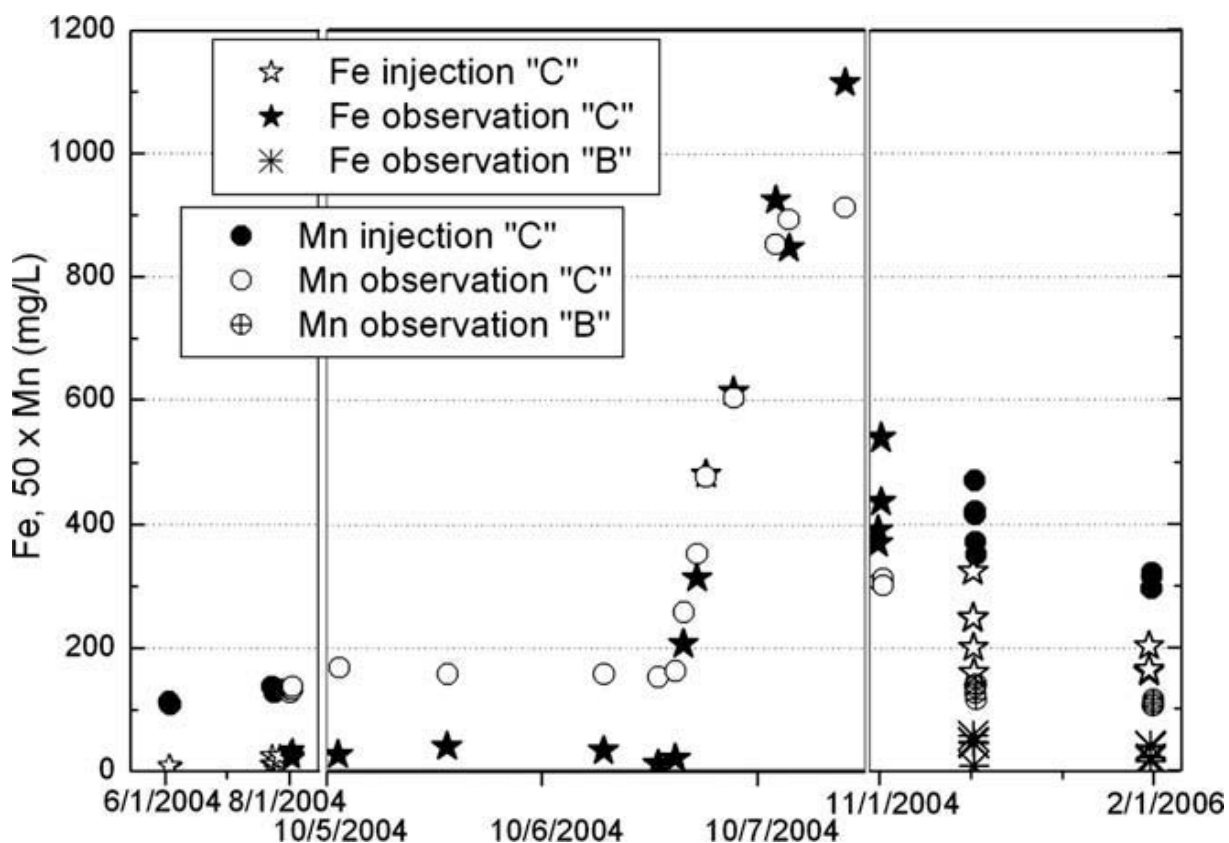


Figure 39 : Concentrations en Fe et Mn dans les saumures Frio de 2004 à 2006 (Kharaha, 2006)

Noter la faible augmentation de la teneur en métal pendant le mois d'octobre 2006 (l'injection de CO₂ ayant eu lieu du 4 au 14 octobre 2004).

Les résultats obtenus montrent une variation significative de la composition isotopique de l'eau et du DIC mais une faible variation en δD et $\delta^{13}C$ du CH₄ lors de l'injection de CO₂. Les valeurs de $\delta^{13}C$ du DIC deviennent plus basses, (de -5‰ à -33‰) car la principale source de carbone devient le gaz carbonique injecté qui a un rapport isotopique compris entre -34‰ et -44‰ (selon la proportion de mélange des deux sources de gaz).

La composition chimique des eaux de la formation échantillonnée dans les puits avant l'injection de CO₂ a permis de réaliser une modélisation thermodynamique. Ces eaux ont un pH initial de 6,3 aux conditions de sub-surface mais quand elles sont en contact avec le CO₂ supercritique, on estime que leur pH atteint une valeur de 3 environ. Dans ces conditions les saumures deviennent fortement sous-saturées vis-à-vis des minéraux carbonatés, silicatés et des autres minéraux constituant la formation Frio (Figure 40).

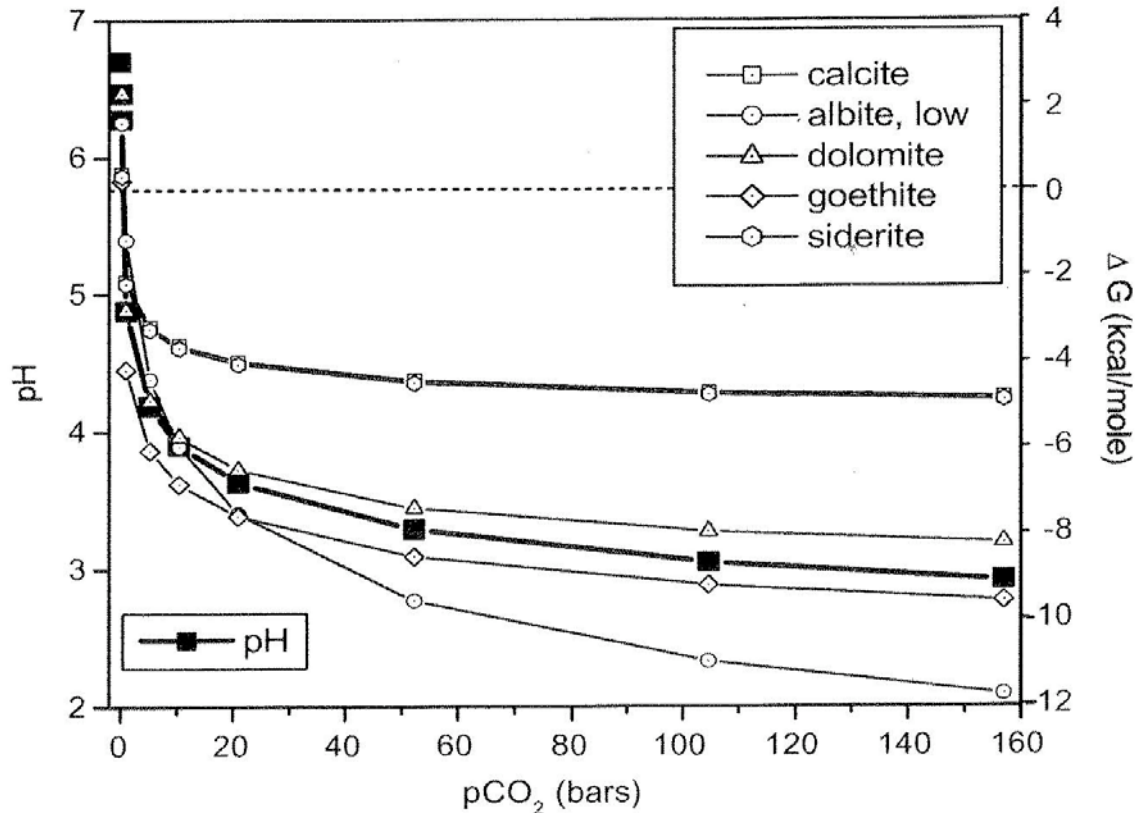
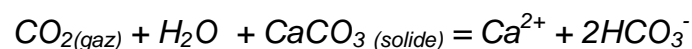


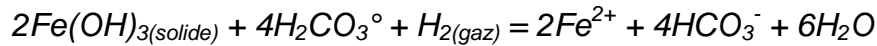
Figure 40 : pH estimé par modélisation thermodynamique et état de saturation des différents minéraux dans la saumure de la formation Frio avant l'injection de CO₂ en fonction de la pression partielle de CO₂ aux conditions de sub-surface (Kharaka, 2006)

A noter la forte baisse initiale d'environ 6,4 jusqu'à des valeurs estimées à 3 aux conditions de température, de pression et de saturation en calcite.

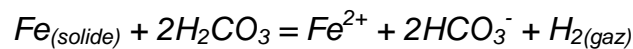
La vitesse de dissolution des minéraux étant de plusieurs ordres de grandeurs plus élevée dans les conditions de faible pH, l'augmentation de la concentration en calcium observée et de la concentration équivalente en ions HCO₃⁻ résultent probablement d'une dissolution rapide de la calcite selon la réaction suivante :



La forte augmentation de la concentration en fer et en bicarbonate observée lors de l'expérimentation aurait pu être reliée à la dissolution de la sidérite (FeCO_3) : toutefois, cette phase minérale n'a pas été retrouvée dans le réservoir. L'augmentation pourrait donc être causée par la réaction de dissolution des oxy-hydroxydes de fer présents dans les carottes. Le schéma de réaction suivant pourrait ainsi être invoqué :



La présence de ce type de réaction suggère que la perturbation acide générée par l'injection de CO_2 a une influence non seulement sur les conditions de pH du système mais aussi sur les conditions redox. Cependant, il n'est pas exclu que l'augmentation équivalente en fer et en bicarbonate provienne de la corrosion du tubage des forages en contact avec de la saumure à faible pH selon la réaction redox suivante :



Des réactions similaires pourraient contrôler l'augmentation de concentration du manganèse dans les fluides ainsi que celle, également observée, d'autres métaux tels que le zinc, le plomb et le molybdène. Ces éléments sont généralement associés aux hydroxydes de fer dans les réactions d'absorption et de co-précipitation et leur teneur en solution pourrait en première approximation dépendre de ces réactions (Ahmad, 2006; Celia et al. 2006).

Les réactions de dissolution et de précipitation des hydroxydes de fer et de manganèse seraient alors déclenchées par la forte acidité du milieu résultant de l'injection du CO_2 supercritique mais leur déstabilisation aurait également comme conséquence de déstabiliser les tampons minéraux contrôlant le transfert d'électrons dans les saumures.

En conclusion, l'ensemble des données sur la composition des fluides associés à la modélisation géochimique et thermodynamique indiquent une dissolution rapide des minéraux, principalement de la calcite et des oxy-hydroxydes de fer, ainsi qu'une éventuelle corrosion des tubages générés par la faible valeur de pH des saumures qui résultent de l'injection de CO_2 supercritique. Cette dissolution rapide des minéraux pourrait avoir une implication importante dans l'environnement en cas de création de chemins de transfert de CO_2 et/ou de saumures à travers la roche ouverture, les tubages et/ou les ciments.

Au fur et à mesure que le pH des saumures augmentait à la suite d'interactions avec les minéraux et le mélange entre le CO₂ et la saumure initiale, l'état de saturation des fluides a varié. La modélisation thermodynamique suggère que cette saturation pourrait inverser la progression observée en Figure 40 et favoriser la précipitation de carbonates, d'oxy-hydroxydes de fer et d'autres minéraux. Le pH des fluides devrait rester relativement bas en fonction de la quantité de CO₂ présente dans les pores des minéraux en tant que « phase résiduelle » (Hovorka et al. 2006).

Au cours de l'expérience, la composition des saumures évolue graduellement vers la composition pré-injection mais ce processus pourrait avoir lieu dans un intervalle de temps de plusieurs centaines d'années, spécialement dans les situations où les saumures et/ou la vitesse déplacement du CO₂ sont très faibles. (Kharaka et al., 2009). La modélisation prédictive de l'évolution temporelle de ce processus demeure difficile car les cinétiques de réaction sont encore une fois très mal connues à l'état actuel.

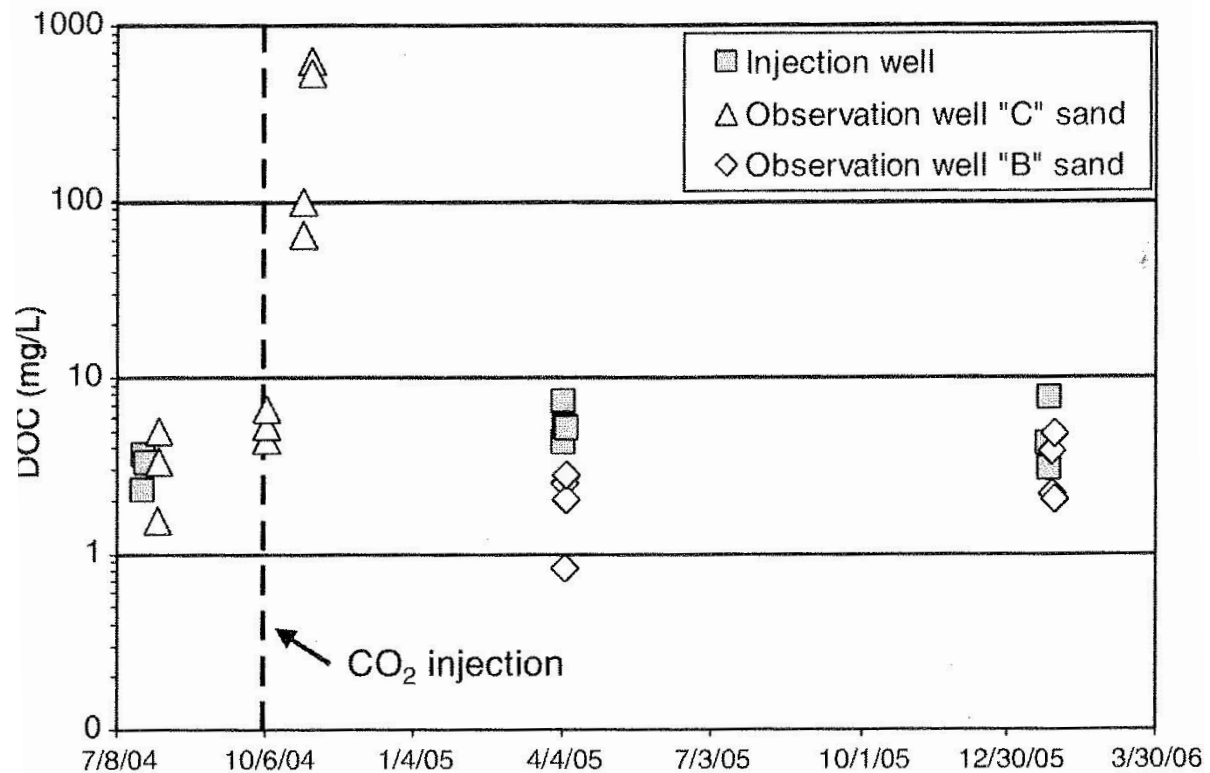


Figure 41 : Evolution de la concentration en carbone organique dissous (DOC) dans les saumures de Frio (Kharaka et al., 2009).

A noter les valeurs très élevées obtenues en novembre 2004, soit 2 jours après la fin de l'injection de CO₂.

5.3.3.3 CAS DE LA MATIERE ORGANIQUE DANS L'ANALOGUE INDUSTRIEL DE FRIO

L'évolution de la composition de la matière organique dissoute n'avait initialement pas été prévue car il n'y avait plus d'extraction de pétrole sur ce site depuis plusieurs dizaines d'années : d'autre part, la teneur en matière organique de la roche dans la formation Frio C était inférieure à 1%.

Avant l'injection de CO₂, les valeurs de carbone organique dissous dans les eaux de la formation sont, comme attendu, assez faibles (1-5 mg/l). Dans les eaux en contact avec les grès du site C, ces valeurs augmentent faiblement lors de l'injection de CO₂. Toutefois après 20 jours, le DOC augmente de plus de deux ordres de grandeurs. Les concentrations en anions organiques et en benzène, toluène, éthyl-benzène et xylènes (BTEX³⁴) des eaux demeurent faibles (< 1 mg/l) mais celles en formates, acétates et toluène sont élevés, notamment dans les eaux plus riche en DOC.

Un échantillonnage réalisé 6 et 15 mois après l'injection a été réalisé afin d'analyser les composés organiques volatils (VOC) et semi-volatils. Les auteurs de l'étude excluent une éventuelle contamination résultant des opérations de forage et ils concluent que l'augmentation de la matière organique mobilisée résulte bien de l'injection de CO₂ (Zuddas, 2009).

Ces résultats sont en accord avec ceux obtenus dans des expériences de laboratoire reproduisant le stockage de dioxyde de carbone dans des couches profondes de charbon, précédemment réalisées par Kolak et Burruss (2006) et confirment les observations effectuées dans les opérations de récupération des huiles par EOR par Shiraki et Dumm (2006). On peut également les rapprocher des analyses effectuées par Veith et al. (2009) sur l'eau du forage d'injection de CO₂ (ainsi que, avec une augmentation moins forte, sur deux puits d'observation) du site expérimental de Ketzin en Allemagne : la concentration en acétate est passée de 10 µg/l avant l'injection à 190 µg/l après 1 mois d'injection. Ces auteurs mentionnent également une expérience de lixiviation de 10 g d'échantillons de roche du site de Ketzin par du CO₂ supercritique qui a permis d'extraire 6 µg de matière organique en 1 h (soit 3% du COT). De même, la percolation d'un flux de 3 l/min de CO₂ supercritique pendant 1 h a fourni 180 l de solution à 33.3 µg/l de carbone organique dissous.

Si des études plus approfondies sont toutefois nécessaires dans cette voie, les résultats obtenus suggèrent que la mobilisation, par le CO₂ supercritique, des matières organiques (incluant les BTEX) et d'autres espèces est possible dans les réservoirs d'huiles et dans les aquifères ne contenant pas d'huile. Ces phénomènes pourraient avoir des implications majeures lors de l'évaluation des aspects environnementaux du stockage et du confinement du CO₂. Le souci est justifié car de fortes concentrations en composés organiques toxiques, qui incluent le benzène et le toluène (jusqu'à 60 mg/l pour les BTEX), les phénols (environ 20 mg/l) et les hydrocarbures poly-aromatiques (jusqu'à 10 mg/l), ont été reportées dans les eaux des champs d'huiles (Kharaka and Hanor, 2007).

La forte concentration en matière organique dissoute peut également être mise en relation avec celle en métaux lourds retrouvée dans les saumures de cette expérimentation en milieu naturel. La complexation des métaux lourds par la matière organique dissoute pourrait être responsable de la concentration élevée des métaux comme déjà indiqué par Wang et Jaffe pour le cas des bicarbonates. Cependant, la modélisation quantitative de ces processus n'a pas encore été réalisée.

³⁴ Les BTEX sont des composés organiques mono-aromatiques volatils qui ont des propriétés toxiques.

5.3.3.4 AUTRES RESULTATS OBTENUS

Des résultats comparables ont également été obtenus par Benezet et al. (2007) qui ont étudié la cinétique de dissolution de la sidérite (FeCO_3) en fonction de divers paramètres physico-chimiques (température, pH, p_{CO_2}). Ces auteurs ont montré que la vitesse de dissolution de la sidérite augmente avec la température et diminue avec le pH, d'où une augmentation de la concentration en fer de la solution. Or, ces caractéristiques physico-chimiques sont comparables à celles d'un réservoir de stockage de CO_2 à proximité d'un puits injecteur.

On notera que Knauss et al. (2005) ont également évoqué la possibilité de libération des métaux alcalino-terreux et de l'aluminium suite à la dissolution de certains minéraux de la roche réservoir après une injection simulée de CO_2 et de SO_2 .

Il n'est pas exclu que ce type de mise en solution puisse également affecter d'autres éléments éventuellement présents à l'état solide dans la roche-réservoir, comme des métaux lourds.

En effet, les relargages de métaux sont un phénomène courant lorsque des matériaux renfermant des minerais métalliques sont soumis à des perturbations physico-chimiques. Cela se produit par exemple :

- dans le cas du lessivage des terrils de mine, où il y a libération de métaux lors de la dissolution de minéraux sulfurés (pyrite ou pyrrotite [Fe], blende [Zn], galène [Pb], chalcopryrite [Cu/Fe], arsénopyrite [As/Fe]) ;
- lors du stockage sur berge des sédiments curés au fond des cours d'eau, véritables pièges à micropolluants ; leur stockage à l'air libre, au contact de l'oxygène et des précipitations atmosphériques, peut remobiliser les sulfures métalliques insolubles fixés au sédiment qui se transforment alors en sulfates et libèrent des métaux particulièrement toxiques pour l'environnement (Bailleul & Barby, 1998).

Ce risque de relargage peut également concerner les actinides. On sait par exemple que certaines eaux minérales d'origine profonde et riches en CO_2 , comme celles des bassins de Limagne (Allier, Forez), présentent une forte concentration en uranium. En Suisse, une étude a été menée sur la concentration en actinides des eaux de sites hydrothermaux (Gainon, 2008). Il ressort que les teneurs en radium dépendent essentiellement des caractéristiques de l'eau et que les teneurs en uranium dépendent également du type de roches traversées. A un certain niveau de profondeur qui définit une zone appelée front redox, de l'uranium ainsi qu'une série d'isotopes (^{234}U , ^{238}U , ^{234}Th et ^{230}Th) précipitent et s'accumulent : en aval, ne subsiste que le ^{226}Ra associé parfois à Fe^{2+} et Mn^{2+} , eux aussi mobiles en milieu réduit.

Ces données suggèrent la présence probable d'actinides dans certains aquifères salins profonds candidats au stockage géologique du CO_2 . Compte tenu des conditions physico-chimiques existantes (milieu réducteur et $\text{pH} > 5$), ces éléments – s'ils existent – doivent être fixés à l'état de minéraux stables. Or, des études ont confirmé que le CO_2 supercritique pouvait dissoudre des oxydes de thorium, uranium, plutonium et de neptunium ainsi que, dans certaines conditions³⁵, des solutions solides U-Pu, U-Np, U-Am et U-Pu-Eu (Trofimov et al., 2004).

En outre, les mesures réalisées à Weyburn (Canada) par le BRGM et sur l'analogue naturel de Vorrderhön (Allemagne) par Abou Akar et al. (2005) ont montré que des

³⁵ en présence du complexe tri-n-butyl phosphate-acide nitrique (TBP- HNO_3)

composés métalliques témoins de minéralisations profondes peuvent également être transportés vers la surface par un flux de CO₂ gazeux.

5.4 RISQUE BACTERIOLOGIQUE

5.4.1 FLORE BACTERIENNE DE SUBSURFACE

Il existe une hypothèse sur le rôle potentiel des micro-organismes de subsurface qui risquent d'être injectés en profondeur avec le CO₂ (De Gennaro et al., 2007) : il s'agit du risque lié à la bio-minéralisation qui accentuerait la cimentation du matériau constitutif de la roche réservoir par de la calcite biogénique, principalement dans le proche-puits. Cela aurait pour effet d'augmenter la cohésion de la roche-réservoir et de stabiliser le stockage d'une partie du CO₂ sous forme minérale. Cependant, le corollaire attendu est une diminution de la perméabilité au sein du réservoir, qui nuirait à l'injectivité.

Dupraz et al. (2007) insistent sur ce phénomène en signalant que le rôle des micro-organismes de subsurface sur le devenir du CO₂ injecté a rarement été pris en compte. Pourtant, la question se pose de connaître la réponse du milieu souterrain profond aux injections de CO₂ renfermant des micro-organismes, ces derniers étant capables de s'adapter très rapidement à des conditions environnementales changeantes. Quelques souches ont ainsi été testées *in vitro* comme *Bacillus pasteurii*, *Desulfovibrio longus*, *Acetobacterium carbinolicum*.

5.4.2 FLORE BACTERIENNE PROFONDE

Il existe cependant, en profondeur, une biomasse bactérienne qui représente environ 60 à 100% de la biomasse bactérienne de surface (Whitman et al., 1998). Ces bactéries ont été introduites depuis la surface au cours des âges géologiques, soit de manière primaire (au cours de la sédimentation des terrains) soit de manière secondaire (par infiltration d'eau superficielle ou par circulation en profondeur d'eau souterraine de subsurface). Les principales caractéristiques de ces microorganismes sont une très faible fréquence de division cellulaire et le fait qu'ils sont quelquefois vivants mais inactifs (stade dormant).

Les paramètres qui contrôlent cette activité bactérienne sont le pH, la salinité, la pression, la température, la disponibilité en les éléments traces ainsi que l'existence de sources de carbone, d'énergie et/ou de donneurs d'électrons (Vieth, 2009). Or, il se trouve que le CO₂ supercritique est un excellent solvant de la matière organique.

Ainsi, à Ketzin, une expérience de lixiviation de 10 g d'échantillons de roche par du CO₂ supercritique a permis d'extraire 6 µg de matière organique en 1 h (soit 3% du COT). Une autre expérience a montré que la percolation d'un flux de CO₂ supercritique au débit de 3 l/min pendant 1 h fournissait 180 l de solution à 33.3 µg/l de carbone organique dissous.

Il est probable que l'injection de CO₂ aura des conséquences importantes, au moins localement, sur cette flore bactérienne profonde. L'ampleur de cet impact, tant en termes qualitatifs (types de microorganismes atteints) qu'en termes quantitatifs (étendue dans le temps et dans l'espace) reste à apprécier. De même, les conséquences finales sur l'injectivité du CO₂, sur le comportement du réservoir, ou sur les conséquences pour l'écosystème, demeurent à étudier plus précisément. Plusieurs projets de recherche (ou de pilotes d'injection) démarrés récemment ont inclus cette problématique spécifique.

6. CONCLUSION ET PERSPECTIVES

L'un des principaux outils de lutte contre ce changement climatique est le stockage géologique du CO₂ provenant de la combustion d'énergies fossiles, afin d'éviter sa contribution à l'effet de serre. Cette technologie nécessite de mettre en œuvre une chaîne composée de quatre maillons principaux : capter le CO₂ à la source, le transporter, l'injecter en profondeur et le stocker durablement.

Le stockage pourra avoir lieu dans des environnements géologiques aussi divers que les aquifères salins profonds, les gisements d'hydrocarbures épuisés, les gisements houillers inexploitablement ou les roches basiques et ultrabasiques. Cette technologie émergente, communément appelée « captage et stockage du CO₂ » ou CSC, doit devenir opérationnelle à court terme de manière à pouvoir agir efficacement et rapidement sur les émissions de CO₂ anthropiques. Pour cela, elle doit démontrer à la fois sa faisabilité et son innocuité, tant en termes de sécurité que d'impact environnemental, comme l'affirme l'article 1 de la Directive adoptée le 23 avril 2009.

L'analyse des risques de la globalité de la chaîne de captage-transport-injection-stockage géologique du CO₂ est encore peu développée. Filière émergente, le CSC ne bénéficie que d'un retour d'expérience très limité : le site de stockage géologique de CO₂ le plus ancien date en effet de 1996. Or, l'une des difficultés majeures de cette nouvelle technologie réside dans son déploiement important dans un délai rapide, et ce malgré notre méconnaissance des mécanismes qui seront mis en jeu à long terme. En conséquence, il peut être pertinent de recommander la mise en place rapide d'un retour d'expérience spécifique à la filière : s'inspirant de ce qui est fait à ce jour pour les Installations Classées, il pourra recenser à la fois les incidents survenus et les mesures de maîtrise mises en place. La mise en commun de telles données entre acteurs industriels et institutionnels, y compris au stade des démonstrateurs, sera sans aucun doute un atout pour la gestion future des risques.

A l'instar des analogues industriels que constituent les stockages souterrains de gaz naturel et d'hydrocarbures, la phase d'exploitation durera quelques décennies. En revanche, après démantèlement des installations de surface, aura lieu l'abandon des puits d'injection et du site de stockage, et commencera une phase de long terme qui s'étalera sur plusieurs centaines à milliers d'années : sur une telle période de temps, les risques résiduels pourront être examinés en s'inspirant des méthodologies et des outils de modélisation développés pour le stockage des déchets radioactifs. Dans ce contexte, après une définition technique du concept de « risque », le présent document propose les principes à retenir pour l'analyse des différents risques relatifs à l'ensemble de la filière, en incluant notamment ces différentes phases temporelles.

Sur la base d'une synthèse approfondie de l'état des connaissances, les différents scénarios de risques -connus ou prévisibles- ont été analysés et sont présentés dans ce rapport, pour la période d'exploitation des futurs sites.³⁶ L'accent est mis sur les aquifères salins profonds et les gisements d'hydrocarbures déplétés, qui constituent a priori les pistes les plus prometteuses, notamment en termes de volume disponible et de répartition géographique.

³⁶ Un second document synthétisera les risques inhérents à la phase d'abandon, en élargissant nécessairement la zone spatiale concernée et l'échelle de temps considérée.

Ces risques en période d'exploitation sont essentiellement centrés sur le puits d'injection et sur son environnement proche au sein de la roche-réservoir, soit une zone généralement appelée « champ proche-puits », dans laquelle le CO₂ sera majoritairement à l'état supercritique. De manière synthétique, en ce qui concerne les effets potentiels, sont à redouter principalement :

- les éruptions de CO₂ (ou fuites massives),
- les fuites plus diffuses ainsi que les contaminations de compartiments de l'environnement, par le CO₂ et/ou par des impuretés qu'il contient.
- les phénomènes de sismicité induite et les mouvements de terrain.

En ce qui concerne les causes, les mécanismes en jeu en phase d'injection, peuvent être regroupés en deux grandes catégories :

1. Ceux liés aux puits d'injection notamment du fait d'une défaillance interne (éruption de CO₂) ou de la corrosion des cuvelages ou de la cimentation (fuites localisées ou diffuses).

Le creusement d'un puits induit nécessairement une perturbation du milieu dans son voisinage proche : cela se traduit par un nouvel équilibre du champ de contraintes qui peut s'accompagner de ruptures du massif rocheux. Les éléments constitutifs du puits (cuvelage et cimentation) seront soumis au cours de l'injection à plusieurs types de variations de contraintes d'origine mécanique (liées à l'augmentation locale de pression), thermique (induites par l'écart de température entre le fluide et la roche) ou chimique (par dissolution ou précipitation de matière). Ces processus seraient de nature à créer des phénomènes de fuite susceptibles d'apparaître après la réalisation des puits (défaut de conception), au cours des opérations d'injection (fuite soudaine de la tête de puits) ou encore à plus long terme (fuite diffuse le long du puits).

2. Les perturbations de nature thermo-hydro-mécano-chimique ou THMC susceptibles d'induire des risques dans le champ proche-puits : dissolution ou précipitation de la roche-réservoir, variation de porosité ou fissuration, remobilisation d'éléments-traces.

Il s'agit principalement de perturbations de la roche-réservoir et/ou des fluides qui l'imprègnent. Elles pourraient être directement induites par :

- l'injection du CO₂ à l'état supercritique ;
- les impuretés associées au CO₂ lors de son captage : O₂, SO_x, NO_x, etc.
- les réactions chimiques avec la roche, la matière organique ou les minéraux présents en profondeur, y compris des éléments-traces tels que des métaux lourds ou actinides.

Certains processus sont actuellement méconnus, notamment ceux relatifs à l'impact des perturbations THMC sur les éléments-traces ou bien au comportement biogéochimique des micro-organismes à grande profondeur. D'autres processus sont mieux connus, et leur occurrence est fort probable : la difficulté est de déterminer leur ampleur, afin de savoir définir dans quelles conditions ils sont susceptibles d'induire des impacts jugés préoccupants. D'une manière générale, l'impact potentiel des scénarios de risques sur l'environnement ou sur la santé humaine n'a été que rarement estimé de manière quantitative, surtout sur l'ensemble d'une filière de captage-transport-injection-stockage.

7. BIBLIOGRAPHIE

Abou Akar A., Audibert N., Audigane P., Baranger P., Bonijoly D., Carnec C., Czernichowski I., Debeglia N., Fabriol H., Foerster E., Gaus I., Le.Nindre Y.M., Michel K., Morin D., Roy S., Sanjuan B., Sayedi D. (2005) : « Stockage géologique de CO₂ : Analyse des risques, surveillance et mesures », Rapport final. BRGM/RP-53830-FR, septembre 2005, 108 p.

Ahmad Z. (2006): « Principles of Corrosion Engineering and corrosion control », Oxford UK, Elsevier Ltd.

Anders J. (2006) : « Studies on wellbore integrity », Proceedings of the 2nd Wellbore Integrity Network Meeting, Princeton, New Jersey, 28-29 March, 2006.

André L., Audigane P., Azaroual M., Menjot A. (2007) : « Numerical Modeling of Fluid-rock Chemical Interactions at the Supercritical CO₂-liquid Interface during CO₂ Injection into a Carbonate Reservoir, the Dogger Aquifer (Paris Basin, France) », Energy Conv. Mgmt., Vol. 48, No. 6, 2007: 1782-1797.

Appelo, C. A. J., Postma D. (2005) : « Geochemistry, groundwater and pollution », Taylor & Francis Group, 2nd edition: 649 p.

Assayag, N., Matter, J., Ader, M., Agrinier, P. (2007) : « Suivi géochimique des interactions CO₂-fluide-roches : l'expérience d'une injection d'un fluide saturé en CO₂ dans un aquifère situé à l'interface de basaltes et de sédiments », Séminaire "Captage et stockage du CO₂", 12-13 décembre 2007, Pau: 4 p.

Azaroual M., André L., Blaisonneau, Sbai A., Lombard J. M., Egermann P. (2007a) : « Etude des scénarios d'injection de CO₂ dans l'aquifère salin du Dogger du Bassin de Paris », Séminaire « Captage et stockage du CO₂ », 12-13 décembre 2007, Pau: 6 p.

Azaroual M., André L., Blaisonneau, Sbai A., Lombard J. M., Egermann P. (2007b) « Etude des scénarios d'injection de CO₂ dans l'aquifère salin du Dogger du Bassin de Paris : établissement de la relation Q-P-T-t », Séminaire « Captage et stockage du CO₂ », 12-13 décembre 2007, Pau, diaporama de présentation: 25 p.

Azaroual M., Lombard J.M., Lorzio M., Broseta D., Fourar M., Billaux D., Saint Marc J., Egermann P (2007) : « Comportement du puits et du champ proche lors de l'injection de CO₂. », Séminaire « Captage et stockage du CO₂ », 12-13 décembre 2007, Pau: 8 p.

Bachu S. (2003) : « Screening and ranking of sedimentary basins for sequestration of CO₂ in geological media in response to climate change », Environmental Geology (2003) 44 : 277-289.

Bachu S., Watson T. (2007) : « Factors affecting or indicating potential wellbore leakage », 3rd Well Bore Integrity Network meeting, March 12-13, Santa Fe, USA.

Bachu S., Watson T. (2007) : « Possible Indicators for CO₂ Leakage along Wells », GHGT-8, 2006 Watson and Bachu - Factors Affecting or Indicating Potential Wellbore Leakage; SPE Paper 106817.

Bailleul & Barby (1998) qui traitent du stockage sur berge des sédiments riches en métaux lourds

Barlet-Gouedard V., Rimmele B., Goffe B., Porcherie O. (2006) : « Mitigation strategies for the risk of CO₂ migration through wellbores », SPE paper 98924.

Proceedings of the 2006 IADC/SPE Drilling Conference, Miami Florida, 21-23 February 2006.

Barlet-Gouédard V., Rimmelé G., Goffe B, Porcherie O. (2007) : « Well Technologies for CO₂ Geological Storage: CO₂-Resistant Cement », Oil & Gas Science and Technology - Rev. IFP, Vol. 62 (2007), No. 3: 325-334.

Barlet-Gouédard V., Ayache B., Rimmelé G. (2008) : « Cementitious material behavior under CO₂ environment. A laboratory comparison », IEA Greenhouse Gas R&D Programme, 4th wellbore integrity workshop, report n°2008/06, august 2008 : 182-200.

Battani A., Deville E., Faure J-L., Jeandel E., Noirez S., Tocqué E. , Benoît Y., Schmitz J., Parlouar D. ,Gal F., Le Pierres K. Brach M., Braibant G., Beny C., Pokryszka Z., Charmoille A., Bentivegna G., Pironon J., de Donato P., Garnier C., Cailteau C., Barrès O., Radilla G., Bauer A. (soumis) : « Geochemical study of the natural CO₂ emissions in the French Massif Central: How to predict origin, processes and evolution of CO₂ leakage », Oil & Gas Science and technology, IFP.

Beucaire C. Criaud A. Michard G. (1987). Contrôle des concentrations de certaines éléments traces (As, Sb, Ge,U, Ra, Ba) dans les eaux de Cézallier (Massif Central). Chem. Geol.63, 1/2, 85-99.

Beddoe R.E., Dorner H.W., (2005) : « Modelling acid attack on concrete: Part I. The essential mechanisms », Cement and Concrete Research 35, 2333-2339.

Bemer E., Lombard J. M. (2007) : « Caractérisation expérimentale de l'évolution des propriétés géomécaniques de roches carbonatées sous l'effet d'une altération géochimique homogène », Séminaire « Captage et stockage du CO₂ », 12-13 décembre 2007, Pau: 16-17.

Ben Slimane K., Cabrera J., Matray J.-M., Rejeb A., Savoye S. (2008) : « Hydro-mechanical response of the Tournemire argillite to the underground openings excavation : unsaturated zones and mine-by-test experiment », GeoProc 2008 - 3rd International Conference on coupled T-H-M-C processes in geo-systems, Lille.

Bénézet P., Golubev S., Dandurand J.L., Schott J. (2007) : « Détermination du produit de solubilité de la sidérite (FeCO₃) et de sa cinétique de dissolution en fonction de la température et de la pression de CO₂ », Séminaire « Captage et stockage du CO₂ », 12-13 décembre 2007, Pau: 18-19.

Benge G. (2005) : « Meeting the challenges in design and execution of two high rate acid gas injection wells », Proceedings of the 1st Wellbore Integrity Workshop. Houston, Texas.

Benson S. M., Hepple R., Apps J., Tsang C. F., Lippmann M. (2002) : "Lessons learned from natural and industrial analogues for storage of carbone dioxide in deep geological formations", Earth Sciences Division, E.O. Lawrence Berkeley National Laboratory, Report n° LBNL-51170, 227 p.

Benson S., Cook P (2005) : "Underground geological storage", in IPCC Special Report on Carbon Dioxide Capture and Storage », Prepared by Working Group III of the IPCC. Cambridge University Press, New York.pp. .195-276.

Bentham M., Kirby G. (2005) : "CO₂ storage in saline aquifers", Oil & Gas Science and Technology-Rev. IFP, Vol.60 (2005), N°3 : 559-567.

Bickley M.C., Curry W.E. (1992) : «Designing wells for subsidence in the Greater Ekofisk Area », SPE paper 24966, Proceedings SPE Europe Petrol Conf., Cannes, France, 16-18 November 1992.

Blaisonneau A., André L. Audigane P. (2007) : « Modélisation des effets hydromécaniques au sein d'un réservoir poreux lors de l'injection de CO₂ supercritique », Séminaire « Captage et stockage du CO₂ », 12-13 décembre 2007, Pau: 22.

Bonijoly D. (2007) : « Les enjeux du stockage géologique du CO₂ en France », L'Acceptabilité Sociale de la Captage & du Stockage du CO₂, Nogent, 27 avril 2007 : 21 p.

Bonijoly D., Herbrich B., Cotiche C., Matray J.M., Menjoz A., Thierry D., Kervevan C., Robelin C., Barbier J. (2003) : « Feasibility of CO₂ storage in geothermal reservoirs example of the Paris Basin (France) », BRGM/RP-52349-FR, 135 p.

BRGM (2004) : « La géothermie : une énergie d'avenir », Revue Géorama, juin 2004, 12 : 1.

Brosse E. Dufournet A., Vidal-Gilbert S., Durst P., Kervevan C., Fradet A. (2007) : « Modéliser le comportement d'un stockage de CO₂ pour préparer le dossier réglementaire : premiers résultats, perspectives, questions ouvertes » », Séminaire « Captage et stockage du CO₂ », 12-13 décembre 2007, Pau: 34.

Brosse E., Magnier C., Vincent B. (2005) : « Modelling Fluid-Rock Interaction Induced by the Percolation of CO₂-Enriched Solutions in Core Samples : The Role of Reactive Surface Area », Oil & Gas Science and Technology-Rev. IFP, Vol.60 (2005), N°2 : 287-305.

Brosse E., de Smedt G., Bonijoly D., Garcia D., SAYSSET S., Renoux P., Thoraval A., Aimard N. (2006) : « PICOREF : Towards an experimental site for CO₂ geological storage in the Paris Basin ? », GEOTECHNOLOGIEN, Status Seminar, Freiberg (D), 21st September 2006, 27 p.

Brothers L. (2005) : « Corrosion resistant cements for carbonic acid environments », Proceedings of the 1st Wellbore Integrity Workshop, Houston, Texas.

Cailly B., Le Thiez P., Egermann P., Audibert A., Vidal-Gilbert S., Longaygue X. (2005) : « Geological storage of CO₂: A state-of-the-art of injection processes and technologies », Oil & Gas Science and Technology - Rev. IFP, Vol. 60 (2005), No. 3: 517-525.

Carey J. W. (2005) : « Analysis and Performance of Oil Well Cement with 30 Years of CO₂ », Exposure from the SACROC Unit, West Texas, USA.

Carnec C. (1996) : « Interférométrie SAR Différentielle : Application à la détection et au suivi de mouvements de terrain », Thèse de doctorat, Université Denis Diderot (PARIS VII), Paris.

Carpenter B., Gardner C. (2008) : « CO₂ cementing : where are we now? », IEA Greenhouse Gas R&D Programme, 4th wellbore integrity workshop, report n°2008/06, august 2008 : 464-474.

Celia M.A., Bachu S., Nordbotten J.M., Gasda S.E., Dahle H.K. (2004) : « Quantitative estimation of CO₂ leakage from geological storage: analytical models, numerical models and data needs », In Proceedings of 7th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies. Volume 1: Peer-Reviewed Papers and Plenary Presentations (E.S. Rubin, D.W. Keith and C.F. Gilboy, ed.), IEA Greenhouse Gas Programme, Cheltenham, UK.

Charmoille A., Thoraval A. (2008) : « Synthèse de l'état des connaissances et des pratiques en matière d'abandon des stockages souterrains », Rapport d'étude INERIS-DRS-08-86168-00481A.

Charrière D., Pokryszka Z., Behra P. (2008) : « Cinétiques de sorption du CO₂ dans le cadre du stockage géologique du CO₂ dans le charbon », Journées nationales de géotechnique et de géologie de l'ingénieur JNGG'08, Nantes, 18-20 juin 2008, 297-304.

Commission des communautés européennes (2009) : Directive 2009/31/CE du Parlement Européen et du Conseil du 23 avril 2009 relative au stockage géologique du dioxyde de carbone et modifiant la directive 85/337/CEE du Conseil, les directives 2000/60/CE, 2001/80/CE, 2004/35/CE, 2006/12/CE et 2008/1/CE et le règlement (CE) no 1013/2006 du Parlement européen et du Conseil, 8 chapitres, 41 articles.

Cook P.J. (1999) : "Sustainability and nonrenewable resources.Environmental", *Geosciences*, 6(4), 185-190.

CO₂GeoNet (2008) : « Que signifie vraiment le stockage géologique du CO₂ ? », Revue du réseau d'excellence européen CO₂GeoNet, novembre 2008, 19 p.

Cribellier M., Lerma A., Roche F. Rodriguez J., Venant F. (2005) : « La séquestration du CO₂ », Projet réalisé de l'Atelier Changement Climatique, Ecole Nationale des Ponts et Chaussées, 2004-2005, 52 p.

Cotiche, C., Herbrich, B., Boutayeb, M. (2007) : « Étude des puits pétroliers exploitant le gisement de SMB en vue de la réalisation d'un pilote d'injection de CO₂ ». contribution au rapport final du programme PICOREF, Projet RTPG RE.4001/05 (PICOREF, 2007).

Criaud A., Fouillac C. 1986a. Etude des eaux thermominérales carbogazeuses du Massif central français I. Potentiel d'oxydo-reduction et comportement du fer. *Geochim. Cosmochim. Acta* 50, 525-534.

Criaud A., Fouillac C. 1986b. Etude des eaux thermales carbogazeuses du massif Central français II. Comportement de quelques métaux en trace, de l'arsenic, de l'antimoine et du germanium. *Geochim. Cosmochim. Acta* 50, 1573-1582.

Dale B.A., Narahara G.M. and Stevens R.M. (1996) : « A case history of reservoir subsidence and wellbore damage management in the South Belridge Diatomite Field », SPE paper 35658. Proceedings 66th Annual SPE West Reg Mtg., Anchorage, Alaska, 22-24 May, 1996.

Damen K., Faaij A., Turkenburg W. (2006) : « Health, safety and environmental risks of underground CO₂ storage – Overview of mechanisms and current knowledge », Report NWS-E-2003-30, ISBN 90-393-3578-8, December.

Deflandre J-P., Huguet, F. (2002) : « Microseismic monitoring on gas storage reservoirs : a ten-year experience », 17th World Petroleum Congress, Block 3 Forum 19, Rio Brazil, September 1st - 5th, 2002.

De Waard C., Lotz U. (1993) : « Prediction of CO₂ corrosion of carbon steel », European Federation of Corrosion Publications number 13, « Predicting CO₂ corrosion in the Oil and Gas Industry », The Institute of Materials, UK 1994: 30.

Duguid, A., Radonjic M., Scherer, G. (2006) : « The effect of carbonated brine on the interface between well cement and geologic formations under diffusion-controlled conditions », 8th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies, June 19-22, 2006, Trondheim, Norway.

Duguid A., Celia M. A. (2004) : « Geologic CO₂ sequestration in abandoned oil and gas fields and human health risk assessment », Proceedings of the 5th Annual Conference on Carbon Captage and Sequestration, May 8-11, 2006, Monitor and Exchange Publications and Forum, Washington, D.C.

Duguid A., Radonjic, M., Scherer, G. W. (2006) : « The effect of CO₂ sequestration on oil well cements », Department of Civil and environmental engineering, Princeton university, Princeton, NJ 08544.

Dupraz, S., Menez, B., Guyot, F., Gouze, P., Leprovost, R., Benezeth, P., Pokrovsky, O., Magot, M. (2007) : « Impact des microorganismes de subsurface sur le stockage géologique du CO₂ », Séminaire « Captage et stockage du CO₂ », 12-13 décembre 2007, Pau: 62-63.

Eriksen E.P.V., Schwall G., Mahmoud S. (1998) : « Solving casing subsidence problems with downhole activate casing slip joints », SPE/IADC paper 47816, Proceedings IADC/SPE Asia Pacific Drilling Technology Conference, Jakarta, Indonesia, 7-9 September, 1998.

Fabbri A., Corvisier J., Schubnel A., Brunet F., Fortin J. Goffé B., Barlet-Gouédard V., Rimmele G. Leroy Y. (2008) : « Hydro-mechanical properties of carbonated cements », IEA Greenhouse Gas R&D Programme, 4th wellbore integrity workshop, Paris, report n°2008/06, august 2008 : 214-254.

Fredrich J.T., Arguello J.G., Deitrick G.L., de Rouffignac E.P. (2000) : « Geomechanical modeling of reservoir compaction, surface subsidence and casing damage at the Belridge field », paper SPE 65354, SPEREE.

Gainon F. (2008) : « Les isotopes radioactifs de la série de l'uranium-238 (²²²Rn, ²²⁶Ra, ²³⁴U et ²³⁸U) dans les eaux thermales de Suisse : sites d'Yverdon-les-Bains, Moiry, Loèche-les-Bains, Saxon, Val d'Illiez, Bad Ragaz, Delémont, Lavey-les-Bains, Brigerbad et Combioula », Thèse CHYN, Univ. Neuchâtel (CH), 160 p.

Garcia D., Brosse E., Michel A. (2007) : « Injection de CO₂ et décarbonatation », Séminaire "Captage et stockage du CO₂ », 12-13 décembre 2007, Pau: 80..

Gaucher E.C., Défossez P.D.C., Disnar J.R., Laggoun-Défarge F., Pokryszka Z., Grgic D., Fingueneisel G., Jimmy T., Aimard N. (2007) : « Problématique du stockage du CO₂ en veines de charbon », Séminaire "Captage et stockage du CO₂ », 12-13 décembre 2007, Pau: 82-83..

GESIP (2008) : Guide méthodologique pour la réalisation d'une étude de sécurité concernant une canalisation de transport (hydrocarbures / gaz / produits chimiques), rapport n°2008/01

GIEC (2005) : « Piégeage et stockage du dioxyde de carbone. Résumé à l'intention des décideurs et résumé technique », Rapport spécial du GIEC, 66 p.

Gennaro (de) V., Menez B., Tamagnini R., Dupraz S. (2007) : « Hydro-mechanical effects of microbially induced mineralization of CO₂ in carbonates », Séminaire "Captage et stockage du CO₂ », 12-13 décembre 2007, Pau: 56-57.

Giggenbach W. (1981). Geothermal mineral equilibria. Geochim. Cosmochim. Acta 45: 393-400.

Gozalpour F., Ren S.R., Tohidi B. (2005) : « CO₂ EOR and storage in oil reservoirs », Oil & Gas Science and Technology, Rev. IFP, Vol. 60 (2005), N° 3 : 537-546.

Hangx S.J.T. (2005) : « Subsurface mineralisation : rate of CO₂ mineralisation and geomechanical effects on host and seal formations. Behaviour of the CO₂-H₂O system and preliminary mineralisation model and experiments », CATO Workpackage WP 4.1. Deliverable WP 4.1-3-05.

Haszeldine R. S., Quinn O., England G., Wilkinson M., Shipton Z. K., Evans J. P., Heath J., Crossey L., Ballentine C. J., Graham C. M. (2005) : « Natural Geochemical Analogues for Carbon Dioxide Storage in Deep Geological Porous Reservoirs, a

United Kingdom Perspective », Oil & Gas Science and Technology - Rev. IFP, Vol. 60 (2005), No.1, pp.33-49.

Havlik W, Thayer K, Oberndorfer M, (2007) : « Production of Wet Natural Gas Containing Corrosive Components: Four Case Histories », SPE Production & Operations, August, 319-325.

Heffer K. (2002) : « Geomechanical influences in water injection projects: an overview », Oil & Gas Science and Technology - Rev. IFP, Vol. 57 (2002), No. 5: 415-422.

Holloway S. (2002) : « Underground sequestration of carbon dioxide : a viable greenhouse gas mitigation option », 5th international symposium on CO₂ fixation and the efficient utilization of energy: 373-380.

House of Commons (2006) : « Meeting UK energy and climate needs : the role of carbone captage and storage », House of Commons Science and Technology Committee, First report of session 2005-06, vol. 1, HC 578-1, 09 feb. 2006, 84 p.

Hovorka S.D., Benson S.M., Doughty C.K., Freifeld B.M., Sukarai S., Daley T.M., Kharaka Y.K., Holtz M.H., Trautz R.C., Nance H.S., Myer L.R., Knauss K.G. 2006. Measuring permance of CO₂ storage in saline formations : the Frio Experiment. *Environnemental Geology* 13, 105-121.

Huerta N. J., Bryant S. L. , Minkoff S. E., Oldenburg C. M. (2007) : « Well leakage pathways and their importance to CO₂ /cement reactions: Analysis of long-term cement competence as part of a certification framework for CO₂ sequestration projects », Sixth Annual Conference on Carbon Captage & Sequestration, May 7-10, Sheraton Station Square Pittsburgh, Pennsylvania.

IEA (2006) : « Safe storage of CO₂ : experience from the natural storage industry », Technical study, report n° 2006/2, January 2006, 123 p.

IEA (2007) : « Environmental Impact Assessment for CO₂ Captage and Storage », Technical study. Report Number : 2007/1.

IFP (2008) : « Capter et stocker le CO₂ pour lutter contre l'effet de serre. L'action de l'IFP », brochure de 16 p.

IPCC (2005) : " IPCC Special Report on Carbon Dioxide Captage and Storage", Prepared by Working Group III of the Intergovernmental Panel on Climate Change [Metz, B., O. Davidson, H. C. de Coninck, M. Loos, and L. A. Meyer (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 442 pp.

IPCC (2006) : « IPCC Guidelines for National Greenhouse Gas Inventories », Prepared by the National Greenhouse Gas Inventories Programme, Eggleston H.S., Buendia L., Miwa K., Ngara T. and Tanabe K. (eds), Published: IGES, Japan.

Jacquemet N. (2006) : « Durabilité des matériaux de puits pétroliers dans le cadre d'une séquestration géologique de dioxyde de carbone et d'hydrogène sulfuré », Thèse du Laboratoire de Géologie et Gestion des Ressources Minérales et Energétiques, Faculté des Sciences & Techniques, Vandoeuvre-lès-Nancy, 302 p.

Jacquemet et al. (2007) : \$

Jianping Y., Sanli F., Zhiqiang F., Gunter B., Wong S., Law D. (2007) : "CO₂-ECBM and CO₂ Sequestration Technology in Coal Seams of QinshuiBasin, China", International Workshop, May 24, 2007, Beijing, China, 41 p.

Karacan C. Ö. (2003) : « Heterogeneous sorption and swelling in a confined and stressed coal during CO₂ injection », Energy & Fuels, 17: 1595-1608.

Kaufmann G., Dreybrodt W. (2007) : « Calcite dissolution kinetics in the system $\text{CaCO}_3\text{-H}_2\text{O-CO}_2$ at high undersaturation », *Geochimica et Cosmochimica Acta* 71 (2007) : 1398-1410.

Kharaka Y.K., Cole D.R., Hovorka S.D., Gunter W.D., Knauss K.G. and Freifeld B.M. (2006) : “ Gas-water-rock interaction in Frio formation following CO_2 Injection: Implications to the storage of Greenhouse gases in Sedimentary basins”, *Geology* 34, 577-580.

Kharaka Y.K. and Hanor J.S. (2007): “ Deep fluids in the continents: I. sedimentary basins”, in Drever J.I. (Ed.) surface and groundwater, weathering and soils. In Holland, Turekian K.K. (Exec. Eds.). *Treatise on Geochemistry*, vol. 5. Elsevier, : 1-48.

Kharaka Y. K., Thordsen J.J., Hovorka S.D., Nance H.S., Cole D., Phelps T.J., Knauss K.G. (2009). Potential environmental issues of CO_2 -storage in deep saline aquifers : geochemical results from the Frio-I brine pilot test, Texas, USA. *App. Geochemistry* 24 (6), 1106-1112.

Knauss K. G., Johnson J. W., Steefel C. (2005) : “Evaluation of the impact of CO_2 , co-contaminant gas, aqueous fluid and reservoir rock interactions on the geologic sequestration of CO_2 ”, *Chemical Geology*, vol. 217, 3-4 : 339-350.

Kolak J.J. and Burruss R.C. 2006. Geochemical investigation of the potential for mobilizing non-methane hydrocarbons during carbon dioxide storage in deep coal beds. *Energy Fuels*, 20, 566-574.

Krilov Z., Loncaric B., Miksa Z. (2000) : « Investigation of a Long-Term Cement Deterioration under a High-Temperature », *Sour Gas Downhole Environment. SPE International Symposium on Formation Damage Control* no. 58771, Lafayette, Louisiana, USA, 23-24 Feb.

Lafortune S. (2007) : « Apport de la géochimie des gaz rares à la surveillance des sites de séquestration géologique de CO_2 », Thèse, IPGP, novembre 2007, 200 p.

Lewicki J. L., Birkholzer J., Tsang C.-F. (2006) : « Natural and industrial analogues for leakage of CO_2 from storage reservoirs : identification of features, events, and processes and lessons learned », *Environ Geol* (2007) 52:457-467.

Lewicki J. L., Oldenburg C. M. (2005) : « Near-Surface CO_2 Monitoring And Analysis To Detect Hidden Geothermal Systems », Lawrence Berkeley National Laboratory, Paper LBNL56900.

Li L., Peters C. A., Celia M. A. (2006) : « Upscaling geochemical reaction rates using pore scale network modeling », *Advances in Water Resources* 29 (2006) 1351-1370.

Lim S., Dupont L., Bensakhria A., Leturia M. (2009) : Maîtrise des procédés d'oxy-combustion avec recyclage des fumées en vue de la production d'énergie couplée au captage du CO_2 (OXYCOMB) – Rapport final INERIS-DRA-08-93197-14165B, Contrat ADEME 07 74 C0099.

Lombardi S. (2007) : « Could CO_2 leak from a storage reservoir and what might be the effects on humans and ecosystems? », *Training & Dialogue Workshop*, Paris, October 3rd 2007, 34 p.

Magnier C., Michel A. (2007) : « Modélisation numérique des processus couplés chimie – transport dans le réservoir carbonaté du champ "X" (représenté en 2-D) », contribution au rapport final du programme PICOREF, Projet RTPG RE.4001/05 (PICOREF, 2007).

Marliave (de) L. (2007) : « Pilote de captage & stockage géologique du CO_2 dans le bassin de Lacq », Total, février 2007, diaporama ,17 p.

Metstor (2008) : « Méthodologie de présélection des sites de stockage souterrain du CO₂ en France », site internet www.metstor.fr

Michard G. (1985). Equilibre entre minéraux et solutions géothermales. Bull. minéral. 108, 29-44.

Michard G. (1987). Controls of the chemical composition of geothermal waters. In Chemical transport in metasomatic processes (ed. H. Helgeson). NATO Adv. Study Inst. Series C, vol.218, 323-353.

Michard A., Beaucaire C., Michard G. 1987. Uranium and rare earth elements in CO₂-rich waters from Vals-les Bains (France). Geochim. Cosmochim. Acta 51, 901-909

Michard G. 2002. Chimie des eaux naturelles. - Principes de géochimie des eaux. Publisud 461 p.

Michard G., Sanjuan B., Criaud A., et al. (1986) : "Equilibria and geothermometry in hot alkaline waters from granites of SW Bulgaria". Geochemical Journal, Volume 20, Issue 4 : 159-171

Miehe B. (2004) : « Modélisation de la zone endommagée induite par le creusement du puits d'accès au laboratoire souterrain de Meuse/Haute-Marne (argilites de l'Est) », Thèse, Ecole nationale Supérieure des Mines de Nancy, 14 mai 2004: 208 p.

Milestone N.B., Sugama T., Kukacka L.E., and Carciello N. (1986) : « Carbonation of Geothermal Grouts - Part 1: CO₂ Attack at 150°C », Cement and Concrete Research, 16, 941-950.

Moreira (2004) : « The effect of temperature and hydrodynamics on the CO₂ corrosion of 13Cr and 13Cr₅Ni₂Mo stainless steels in the presence of free acetic acid », Corrosion Science 46: 2987-3003.

Mulders F. (2007) : « Analysis of abandoned well integrity at a potential CO₂ storage site », 3rd Well Bore Integrity Network Meeting, March 12-13 2007, Santa Fe, USA.

Nelson E.B. (1990) : « Well Cementing ». Sugar Land, TX: Schlumberger Educational Services.

Oldenburg C. M. (2007) : « Joule-Thomson cooling due to CO₂ injection into natural gas reservoirs », Energy Conversion & Management 48/2007: 1808-1815.

Onan D.D. (1984) : « Effect of Supercritical carbon dioxide on well cement », SPE paper 12593, 161-172.

Patroni J.M. (2007) : « Lifetime of a Natural Gas Storage Well Assessment of Well-Field Maintenance Cost », Oil & Gas Science and Technology - Rev. IFP, Vol. 62 (2007), No. 3, pp. 297-309.

PICOREF (2007) : « PICOREF : Piégeage du CO₂ dans les réservoirs en France. », Rapport final RTPG RE 4001/05, septembre 2007, 241 p.

Peng S, Fu J, Zhang J (2007) : « Borehole casing failure analysis in unconsolidated sandstone : A case study », Journal of Petroleum Science and Engineering.

Pokryszka Z., Charrière D. et Brignon J.-M. (2008) : « Viabilité technico-économique à l'échelle locale ou régionale de la récupération du CO₂ et de son stockage souterrain dans les terrains houillers (VELCO₂) : rapport final ». Rapport INERIS DRS-07-66377-15018A, novembre 2008.

Portier S., Rochelle C. (2005) : "Modeling CO₂ solubility in pure water and NaCl-type waters from 0 to 300° C and from 1 to 300 bar. Application to the Utsira Formation at Sleipner", Chem. Geol. 217 (2005) : 187-199.

Power M. (2006) : « Studies on wellbore integrity », Proceedings of the 2nd Wellbore Integrity Network Meeting, Princeton, New Jersey, 28-29 March 2006.

Preston C., Monea M., Jazrawi W., Brown K., Whittaker S., White D., Law D., Chalaturnyk R., Rostron B. (2005) : « IEA GHG Weyburn CO₂ monitoring and storage project », Fuel Processing Technology 86 (2005) 1547-1568.

Randhol P., Valencia K., Taghipour A., Akervoll I., Manfred Carlsen I. (2007) : « Ensuring well integrity in connection with CO₂ injection », Rapport SINTEF, 27/12/2007: 59 p.

Roegiers J. C. (2002) : « Well modeling : an overview », Oil & Gas Science and Technology - Rev. IFP, Vol. 57 (2002), No. 5: 569-577.

Sanjuan B. Michard A., Michard G. (1988). Influence of the temperature of CO₂-rich springs on their aluminium and rare-earth element contents. Chem. Geology 68, 57-67.

Shiraki R. et Dumm T.L. (2006). Experimental study on water-rock interaction during CO₂ flooding in the Tensleep formation, Wyoming USA. Appl. Geochem.15, 265-279.

Scherer G., Prévost J.-H., Radonjic M., Bruant R., Fuller R., Duguid A. (2004) : « Evaluating the risk of leakage from wells », 3rd CMI annual Meeting, Princeton University.

Scherer G. W., Celia M. A., Prevost J.-H., Bachu S., Bruant R., Duguid A, Fuller R., Gasda S.E., Radonjic M. and Vichit-Vadakan W. (2005) : « Leakage of CO₂ through Abandoned Wells: Role of Corrosion of Cement », In: The CO₂ Captage and Storage Project, CCP, Volume II, Thomas & Benson (Eds.): 823-844.

Shi J.Q., Durucan S. (2005) : « CO₂ storage in deep unminable coal seams », Oil & Gas Science and Technology, Rev. IFP, Vol. 60 (2005), N° 3 : 547-558.

Silva (de) F.V., Debande G.F., Pereira C.A., Plischke B. (1990) : « Casing collapse analysis associated with reservoir compaction and overburden subsidence », SPE paper 20953. Proceedings Europec 90, The Netherlands.

Skinner L. (2003): « CO₂ blow-outs: An emerging problem". World Oil, 2003, 224(1): 38-42

Suau de la Croix (du) G. (2006) : « Endommagement des argilites induit par l'excavation d'ouvrages souterrains », Journées des thèses IRSN, 25-27 septembre 2006: 6 p.

Thoraval, A., Vidal-Gilbert, S., 2006. Impact mécanique d'un stockage de CO₂ dans un ancien gisement d'hydrocarbures du Bassin parisien. Rapport d'études INERIS n°DRS-06-62368/RN01, 57 p.

Tocqué E., Brosse E. (2006) : « Monitoring géochimique du stockage de CO₂ : premier inventaire des processus à surveiller, des techniques disponibles. Propositions de développements », Rapport IFP.

Torp T.A. (2007) : « SLEIPNER - 10 years of CO₂ storage - Why is it safe? », 2nd International Symposium on Captage and Geological Storage, October 4 2007, Paris, 26 p.

Total (2007) : « Projet pilote de captage et de stockage de CO₂ dans le bassin de Lacq. Synthèse du dossier de concertation », Document Total, 8 p.

- TotalFinaELF (2001) : « Mémoire sur les dangers - Demande d'Augmentation - Stockage de Lussagnet ».
- Van Agthoven R. (2006) : « How to Determine the Integrity of Cavern Casings, a New Solution Found », Spring 2006 Conference 30 April - 3 May Brussels, Belgium (SMRI).
- Veith A., Scherf A.-K., Mangelsdorf K., Horsfield B., Morozova D., Würdemann H. (2009) : "Insights into the Deep Biosphere and its related changes with CO₂ injection". CO₂NET Annual Seminar, 18-19 June 2009, Trondheim, Norway, 26 p.
- Wright I. (2007) : « CO₂ storage at In Salah » , 2nd International Symposium on Captage and Geological Storage, October 4 2007, Paris, 20 p.
- Wright I., Majek (1998) : « Chromatograph, RTU System Monitors CO₂ Injection » , Oil and Gas Journal, July 20, 1998.
- Wagner S., Kirkes R. (2002) : "FEPs assessment analysis plan", Sandia National laboratories, rapport AP-090, 28/06/2002, 46 p.
- Wang S. and Jaffe P.R. (2004): "Dissolution of a mineral phase in potable aquifers due to CO₂ releases from deep formations; effect of dissolution kinetics", Energy, Convention and Management.
- Whitman W.B., Coleman D.C., Wiebe W.J. (1998) : "Prokaryotes : the unseen majority". Proc. Of the National Academy of Sciences of the USA, vol. 95, Issue 12, june 9 1998 : 6578-6583
- Yeager V., Blauch M., Foh S. (1994) : « Investigation of Storage Well Damage Mechanisms », GRI Request For Proposal N°95-270-0487, November 1, 1994.
- Zhang H., Zhao Y.L. and Jiang Z.D. (2005) : « Effects of temperature on the corrosion behavior of 13Cr martensitic stainless steel during exposure to CO₂ and Cl-environment », Materials Letters 59 : 3370-3374.
- Zuddas P. (2009) : "Evaluation des conséquences pour l'environnement du stockage géologique du CO₂: état de l'art ». Rapport UCBL, septembre 2009, 25 p.

8. LISTE DES ANNEXES

Repère	Désignation	Nombre de pages
Annexe 1	Rappel sur le comportement du CO ₂	9 A4
Annexe 2	Mécanismes physico-chimiques du stockage géologique de CO ₂	1 A4
Annexe 3	Description générale d'un puits d'injection de gaz	3 A4

ANNEXE 1 :

RAPPEL SUR LE COMPORTEMENT DU CO₂

Pour bien cerner le comportement du CO₂ au sein du réservoir et en évaluer l'intégrité, il est crucial d'avoir à l'esprit les comportements thermodynamique et chimique de ce gaz.

PROPRIETES PHYSICO-CHIMIQUES

A température et pression ordinaires, le CO₂ est un gaz incolore, inodore, à saveur piquante, plus lourd que l'air (densité de 1,52).

Il est soluble dans l'eau, à raison de 88 ml de dioxyde de carbone pour 100 ml d'eau à 20°C (soit 1,72 g/l).

COMPORTEMENT THERMODYNAMIQUE

A la pression atmosphérique le CO₂ est un gaz thermodynamiquement stable plus lourd que l'air (masse volumique de 1,872 kg/m³). A conditions supérieures à la pression critique $P_c = 7,38$ MPa et à la température critique $T_c = 31,1^\circ\text{C}$, le CO₂ se trouve à l'état supercritique. Il se comporte alors toujours comme un gaz, c'est-à-dire en emplissant tout le volume disponible, mais possède une densité proche de celle d'un liquide pouvant aller de 150 kg/m³ à plus de 800 kg/m³ selon la température et la pression. Ainsi, plus le CO₂ sera injecté à des profondeurs fortes plus sa densité sera élevée est plus la quantité stockée pourra être importante.

Si l'on considère que, dans une zone donnée, le gradient géothermique G est constant avec la profondeur, la température T_z (°C) à une profondeur z donnée peut être calculée à partir de la température de surface T_s selon la formule:

$$T_z = T_s + G \cdot z$$

La pression évolue également avec la profondeur. D'après Bachu (2003), cette évolution peut être considérée comme comparable à celle de la pression hydrostatique. On peut donc écrire:

$$P = \rho_w g z$$

avec

ρ_w : masse volumique de l'eau, g : constante de gravitation et z : profondeur.

Par conséquent, dans un bassin sédimentaire, il existe une relation linéaire entre la pression et la température s'exprimant ainsi (Figure 42a) :

$$P = \frac{\rho_w g}{G} (T - T_s)$$

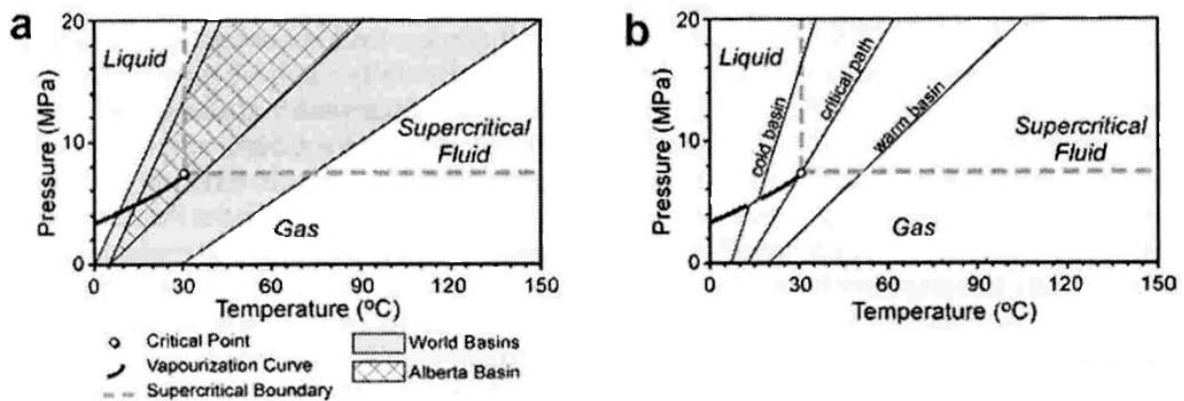


Figure 42 : Changement de phase du CO₂ selon les conditions de pression et de température régnant dans les bassins sédimentaires (Bachu, 2003)

Il en résulte que, au sein d'un diagramme (P, T), le chemin suivi par une bulle de CO₂ à l'état supercritique qui remonterait vers la surface est une droite dont la pente et l'abscisse à l'origine sont déterminées respectivement par le gradient géothermique et par la température à la surface.

Dans le cas où une telle remontée se produirait, on assisterait donc à un refroidissement et à une décompression simultanés du CO₂ supercritique : la Figure 42b montre que ces transformations pourraient s'accompagner de la formation de CO₂ liquide dans les bassins à faible gradient géothermique (bassins froids) ou directement de l'apparition de CO₂ gazeux dans les bassins à fort gradient géothermique (bassins chauds).

Concrètement, lorsque le gradient géothermique est supérieur à 42°C/km ou, pour un gradient normal³⁷, lorsque la température de surface est supérieure à 16°C³⁸, le CO₂ passe directement de l'état supercritique à l'état gazeux, sans formation de liquide (Bachu, 2003).

De plus, en fonction de la pression et de la température, la masse volumique du CO₂ évolue selon le diagramme de la Figure 43. Ainsi, dans les conditions de pression et de température de la plupart des bassins sédimentaires, il apparaît que la densité maximale du CO₂ supercritique est voisine de 850 kg/m³ à partir d'un millier de mètres de profondeur.

³⁷ la valeur moyenne est de 30°C/km en France

³⁸ cas de la frange littorale de la région méditerranéenne française

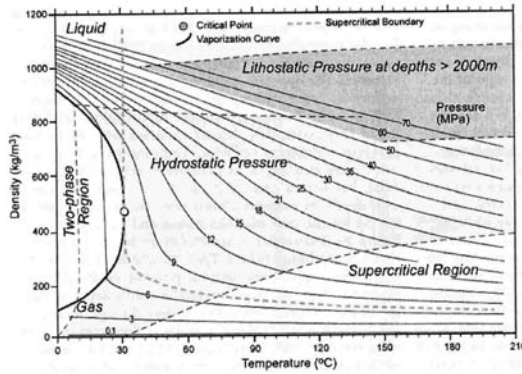


Figure 43 : Densité du CO₂ selon la température et la pression (Bachu, 2003)

A partir de ces considérations, il devient possible d'estimer l'évolution de la densité du CO₂ en fonction de la profondeur (Figure 44).

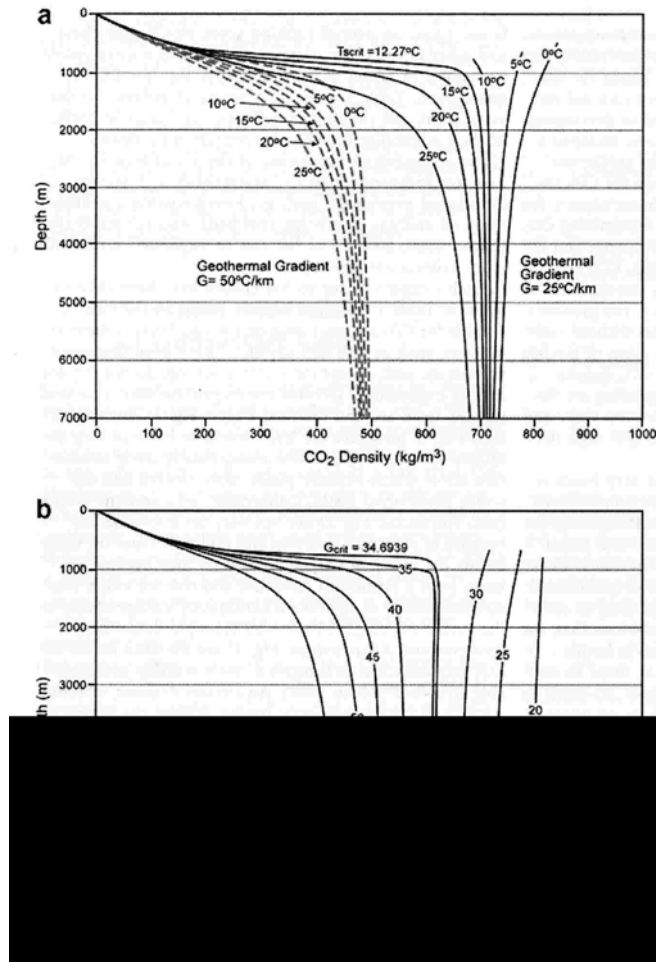


Figure 44 : Densité du CO₂ en fonction de la profondeur (Bachu, 2003)

Légende : a) Température de surface variable et gradient géothermique représentatif d'un bassin chaud (50°C/km) ou d'un bassin froid (25°C/km), b) Température de surface de 5°C³⁹ avec plusieurs gradients géothermiques.

³⁹ valeur représentative d'un climat froid (Canada, nord de l'Europe)

Chimie du CO₂

SOLUBILISATION DU CO₂

Tocqué et al. (2006) rapportent que la solubilité du CO₂ dépend de la composition des phases aqueuse (en particulier, sa salinité) et gazeuse ainsi que des conditions de pression et de température (voir Figure 45 et Figure 46).

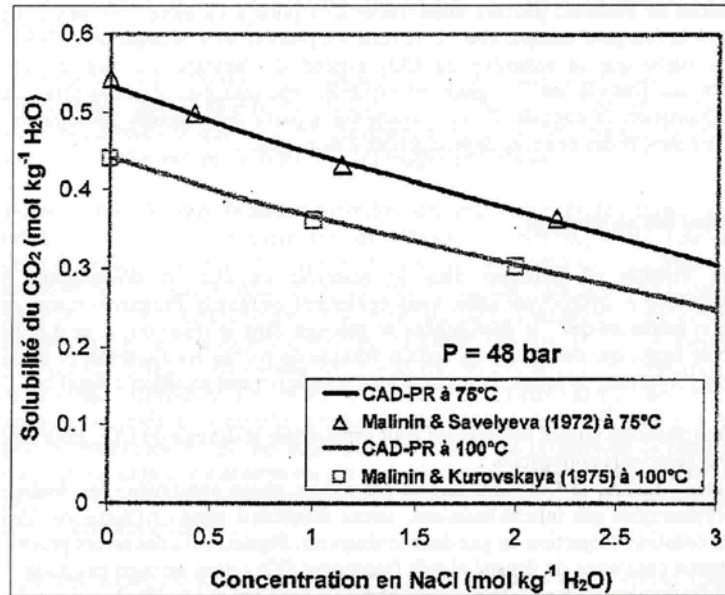


Figure 45 : Solubilité du CO₂ dans les solutions de NaCl en fonction de la concentration en NaCl de la solution à 48bar (Portier et Rochelle, 2005)

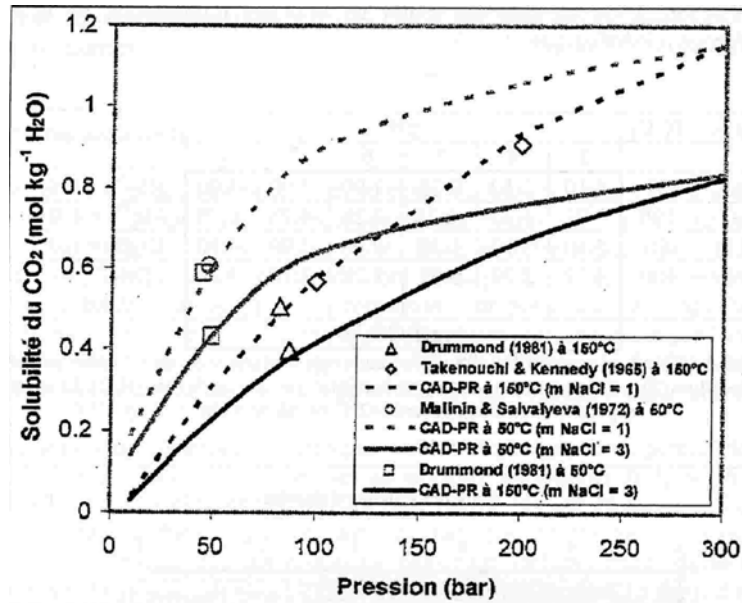


Figure 46 : Solubilité du CO₂ en fonction de la pression dans les solutions de NaCl de 1 et 3 m (Portier et Rochelle, 2005)

REACTIONS GEOCHIMIQUES :

La réaction de dissolution du CO₂, dans l'eau ou dans les hydrocarbures, conduit tout d'abord à son hydratation (notée CO_{2(aq)}) puis à la formation d'un acide faible, l'acide carbonique (Appelo & Postma, 2005) :

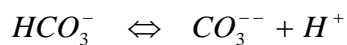


Cet acide va ensuite subir, selon les conditions de pH, une à deux phase(s) d'ionisations et se dissocier :

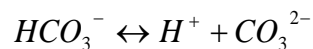
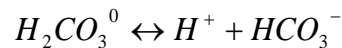
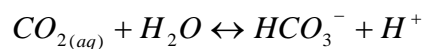
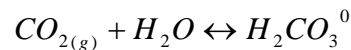
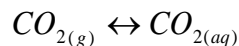
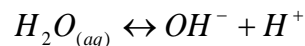
- tout d'abord, en ions hydrogénocarbonates (ou bicarbonates) :

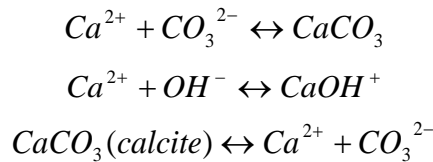


- puis en ions carbonates si, par exemple, le pH est supérieur à 8,3 dans des conditions normales de température et de pression, :

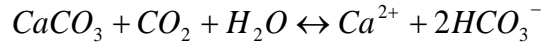


La totalité des réactions susceptibles d'être mises en jeu est la suivante (Brosse et al., 2005) :





L'ensemble de ces réactions peut être synthétisé en une seule qui décrit la solubilisation du carbonate de calcium (Kaufmann et Dreybrodt, 2007) :

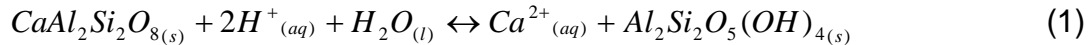


Dans un premier temps, cela induit préférentiellement la dissolution de la calcite de la roche réservoir et un accroissement de l'alcalinité de la solution. Ensuite, la diminution observée du pH conduit à la dissolution de la majeure partie des minéraux, dont les silicates, s'accompagnant de la libération de cations métalliques dont certains peuvent se combiner avec les ions carbonate ou bicarbonate pour précipiter sous la forme de carbonates (Brosse et al., 2005).

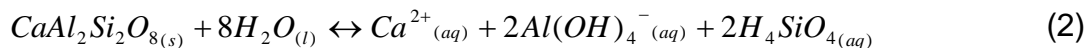
En ce qui concerne les feldspaths, ils peuvent subir une kaolinisation, en libérant :

- K^+ et Na^+ pour les feldspaths potassiques et sodi-potassiques ;
- Na^+ et Ca^{2+} pour les feldspaths sodi-calciques (plagioclases).

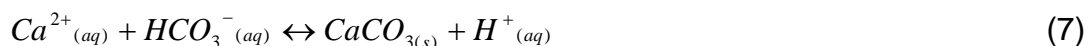
Par exemple pour l'anorthite, feldspath de formule chimique $CaAl_2Si_2O_8(s)$, deux réactions de dissolution peuvent l'amener à libérer des ions Ca^{2+} . La première (1) est conditionnée par la libération des ions H^+ , lors de la solubilisation du CO_2 dans l'eau (3) :



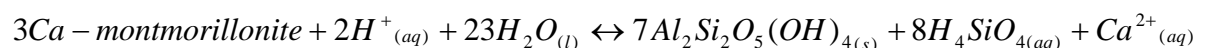
La seconde (2) n'est pas conditionnée par l'acidification des eaux.



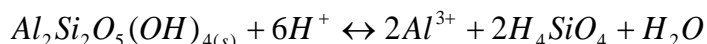
Dès lors les protons Ca^{2+} en se combinant avec les ions carbonates ou hydrogencarbonates (libérés selon les réactions en chaînes (3), (4) et (5)) pourront précipiter en calcite selon les réactions (6) et (7) (Hangx, 2005).



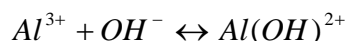
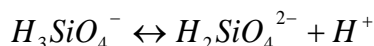
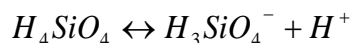
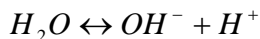
Les ions Ca^{2+} peuvent également provenir d'argiles riches en calcium, selon la réaction ci-après.



A ces réactions, il faut enfin ajouter la réaction de précipitation, dissolution de la kaolinite (Li et al., 2006) :



Les autres réactions instantanées mises en jeu sont les suivantes (Li et al., 2006) :



Les minéraux argileux (illites, chlorites et smectites) sont également susceptibles de libérer des ions pouvant se combiner avec les ions carbonates et bicarbonates. Néanmoins, cette précipitation n'est significative que lorsque (Brosse et al., 2005):

- la roche est riche en minéraux alumino-silicatés eux-mêmes riches en fer et magnésium,
- le carbone est transporté relativement rapidement (de l'ordre de 10 cm.an^{-1}).

D'autres réactions chimiques peuvent être mises en jeu et la détermination des chemins réactionnels qui se développeront ainsi que leurs cinétiques sont délicats à prévoir car ils dépendent de la composition de la roche et de celle du fluide.

L'ensemble de ces réactions doit être pris en compte car elles peuvent modifier la structure du milieu poreux (porosité et perméabilité), influencer sur les capacités de stockage (Haszeldine et al., 2005) et favoriser éventuellement l'ouverture de failles (Brosse et al., 2005).

D'un autre point de vue, la précipitation des minéraux au voisinage des puits d'injection peut également en limiter l'injectivité. Cependant, les connaissances actuelles ne sont pas suffisamment avancées pour prédire ce qui risque de se produire (Haszeldine et al., 2005).

La comparaison avec ce qui se passe au sein des analogues naturels tend à montrer que les prévisions des chemins réactionnels et des cinétiques ne sont pas toujours en adéquation avec les observations.

TOXICOLOGIE

Ce chapitre constitue principalement une reprise de la fiche toxicologique de l'INRS et donne un aperçu des propriétés que peut avoir ce gaz et de leurs conséquences.

VALEURS LIMITES D'EXPOSITION PROFESSIONNELLE

Des valeurs limites indicatives de moyenne d'exposition pondérée (8 heures par jour ; 40 h/semaine) et des valeurs limites indicatives d'exposition à court terme (15 min au maximum) dans l'air des locaux de travail ont été établies pour le CO₂.

- Etats-Unis (ACGIH) : 5 000 ppm (TLV-TWA) ; 30 000 ppm (TLV-STEL),
- Allemagne (Valeurs MAK) : 5 000 ppm soit 9 100 mg/m³.

On rappelle qu'à 25°C et 101 kPa (pression atmosphérique normale), 1 ppm de CO₂ correspond à 1,8 mg/m³.

TOXICITE AIGUË SUR L'HOMME

A forte concentration, le CO₂ devient un gaz asphyxiant puis toxique et qui peut entraîner la mort. L'importance des effets observés dépend de sa concentration dans l'atmosphère et de nombreux facteurs physiologiques (âge du sujet, état vasculaire...) ou climatiques (température extérieure, pression partielle d'oxygène...) :

- A partir de 2% de CO₂ dans l'atmosphère apparaissent les premières manifestations cliniques qui se traduisent par une augmentation de l'amplitude respiratoire ;
- A partir de 4%, la fréquence respiratoire s'accélère et la respiration peut devenir pénible chez certains sujets ;
- A partir de 5%, s'y ajoutent des céphalées, une sensation de vertige ainsi que les premiers effets cardiovasculaires et vasomoteurs (augmentation de la fréquence cardiaque et de la pression artérielle, vasodilatation périphérique) ;
- A 10%, on peut observer des troubles visuels (parfois associés à une dégénérescence rétinienne), des tremblements, une hypersudation et une hypertension artérielle avec perte de connaissance, chez certains sujets, si l'exposition dure une dizaine de minutes ;
- Lorsque l'on avoisine 20%, des troubles graves d'apparition rapide peuvent survenir, parfois compliqués d'une lyse musculaire : dépression respiratoire, convulsion, coma et mort ; il existe de nombreux cas de morts accidentelles brutales liés à l'inhalation de fortes concentrations de CO₂ accumulé dans des lieux confinés (silos, caves) ou à des catastrophes environnementales (Lac Nyos avec CO₂ d'origine volcanique au Cameroun).

En outre, l'inhalation de concentrations comprises entre 2 et 10% peut entraîner une bronchodilatation chez l'asthmatique en crise.

TOXICITE CHRONIQUE SUR L'HOMME

Les effets d'une exposition prolongée au CO₂ ont été étudiés pour évaluer la tolérance des sujets à des séjours en espace confiné (sous-marins par exemple). Les données existantes concernent des expositions expérimentales de volontaires à des concentrations assez élevées (0,5 à 4% avec une pression partielle d'oxygène normale) :

- Pour des concentrations inférieures à 1%, les variations des paramètres biologiques ne sont pas significatives ;

- A partir de 1%, on note une légère augmentation de la pression artérielle de CO₂ ainsi que de la pression partielle en oxygène en raison d'une hyperventilation ;
- A partir de 2%, l'augmentation de la pression partielle de CO₂ dans le sang artériel et l'air expiré s'accroît ; elle est associée à une faible diminution du pH, sans autre anomalie notable ;
- A partir de 3%, l'hyperventilation est marquée ainsi que la baisse du pH artériel (acidose respiratoire) ;
- A 4%, on constate de plus l'apparition de céphalées et de gastralgies au repos, d'asthénie et d'extrasystoles à l'effort ; une augmentation du nombre d'hématies est également notée ;
- Au-delà, le seuil de tolérance est clairement dépassé.

Dans aucun de ces cas, des modifications des performances psychomotrices n'ont été mises en évidence.

Des observations anciennes d'exposition dans des sous-marins de la seconde guerre mondiale, dans lesquels la concentration en CO₂ était de l'ordre de 3%, associée à un taux d'oxygène de 15 à 17%, faisaient état de phases d'excitation et de dépression, d'une augmentation du flux sanguin cutané ainsi que d'une diminution de la température centrale et de la pression artérielle.

Ces signes pouvaient s'associer à un ralentissement de la fréquence respiratoire et à des anomalies des fonctions mentales. Cependant, ces résultats peuvent également être en relation avec d'autres polluants atmosphériques qui n'ont pas été mentionnés.

ANNEXE 2 :

MECANISMES PHYSICO-CHIMIQUES DU STOCKAGE GEOLOGIQUE DE CO₂

- pour les aquifères salins, dans un premier temps, une « bulle » de CO₂ remplacera la saumure⁴⁰ présente dans la porosité de la roche réservoir et ce, jusqu'à une certaine distance du puits d'injection ; moins dense que la saumure, cette « bulle » sera tout d'abord piégée par l'imperméabilité du recouvrement de la roche réservoir (piégeage structural) puis, à terme, le CO₂ finira par se dissoudre entièrement dans l'aquifère (piégeage par dissolution) ; Abou Akar et al. (2005) ont ainsi montré, en simulant l'injection dans le site offshore de Sleipner, que le CO₂ sera intégralement dissout dans l'aquifère au bout de 7 000 ans ;
- pour les gisements d'hydrocarbures épuisés, le CO₂ occupera la place laissée vacante par les hydrocarbures (gazeux ou liquides) antérieurement présents dans la porosité de la roche réservoir ; il sera progressivement dissout dans l'huile mais également dans l'eau généralement présente dans ces roches réservoir ;
- pour les veines de charbon inexploitées, le CO₂ sera adsorbé sur le charbon, en lieu et place du CH₄ généralement présent et pour lequel il a beaucoup plus d'affinité (piégeage par adsorption) ; de ce fait, il pourra être injecté à l'état gazeux afin de mieux diffuser dans le réservoir, ce qui permet d'exploiter des réservoirs situés à moins de 800 m de profondeur ;
- pour les roches basiques et ultrabasiques, le stockage sera obtenu par remobilisation des cations (essentiellement le calcium et le magnésium) des roches silicatées pour former des minéraux carbonatés ; il s'agit donc d'un piégeage chimique sous forme minérale qui répond parfaitement aux exigences d'irréversibilité sur de longues périodes.

⁴⁰ Eau salée généralement présente dans les aquifères enfouis à grande profondeur

ANNEXE 3 :

DESCRIPTION D'UN Puits D'EXPLOITATION D'UN STOCKAGE DE GAZ NATUREL

GENERALITES

La conception actuelle d'un puits d'injection de CO₂ est très proche de celle d'un puits d'exploitation de stockage de gaz naturel.

Le système d'injection comprend en surface :

- les pipelines de distribution aux puits injecteurs,
- les installations de compressions (employées lorsque la pression du fluide arrivant est inférieure à la pression d'injection),
- les systèmes de mesure et de contrôles,
- la têtes de puits,
- le puits d'injection.

Un puits d'injection est typiquement constitué d'une succession de forages dont le diamètre va en diminuant. Chaque forage est recouvert d'un cuvelage en acier (ou « casing »), lequel est cimenté au terrain pour assurer la stabilité des parois et contribuer à l'étanchéité (Figure 47).

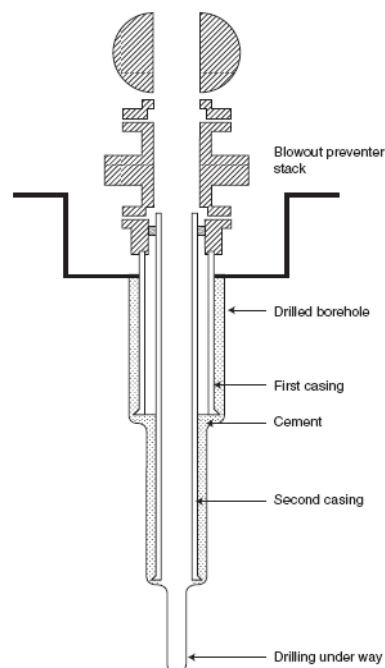
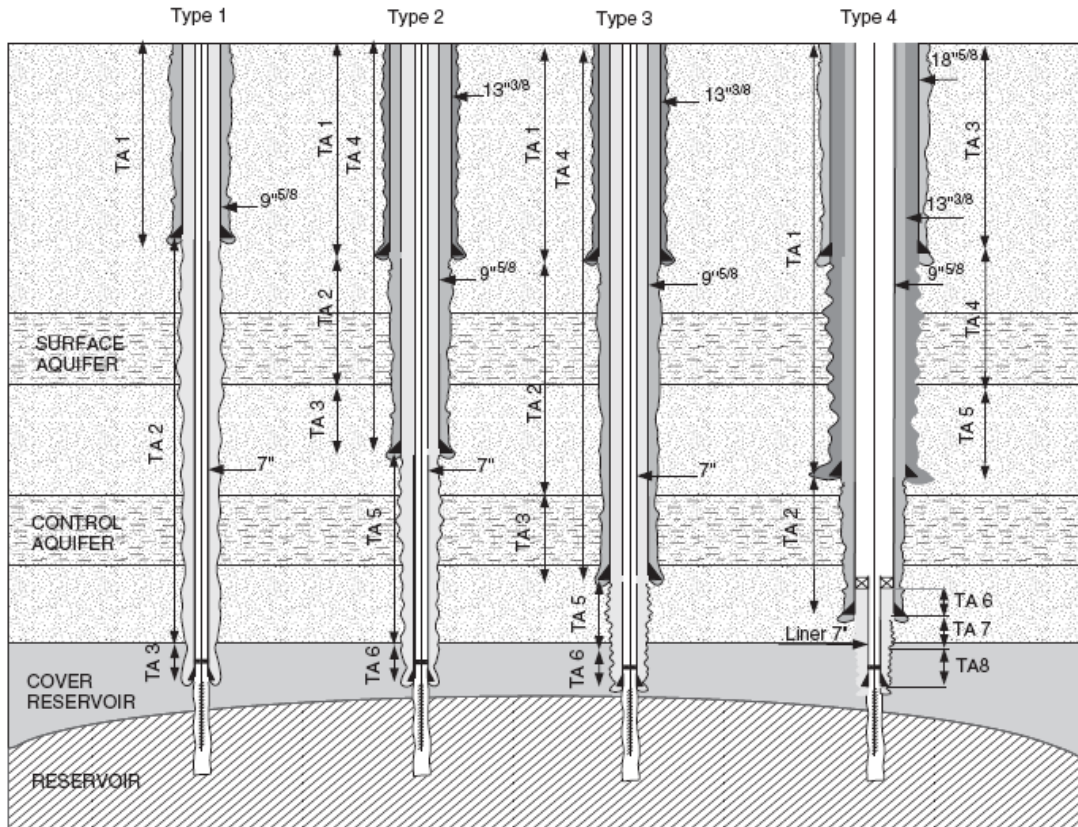


Figure 47 : Exemple de puits d'injection (Lécolier, 2007)

L'architecture du puits peut être variable en fonction de la profondeur et du contexte géologique du gisement. Ainsi, la Figure 48 présente quatre types différents d'architecture.



Légende : les diamètres d'équipement sont donnés en pouces : 1 pouce = 25.4 mm
 Figure 48 : Catégories de puits selon leur architecture (Patroni, 2007)

En tête de puits sont mesurés plusieurs paramètres : débit, température, pression du fluide injecté (technique décrite par Wright et Majek, 1998).

En ce qui concerne le suivi de la composition du fluide injecté, c'est-à-dire le CO₂ et ses impuretés, ce suivi n'est pas réalisé en continu mais de façon périodique par un chromatographe. Un suivi périodique est suffisant dans la mesure où la variabilité de la composition du fluide injecté est limitée.

EQUIPEMENT DE LA TÊTE DE PUIIS

En tête de puits, on trouve des équipements de sécurité qui doivent permettre d'éviter tout retour de produit en cas de défaillance des équipements de surface.

Ils comprennent entre autres, plusieurs valves provoquant la fermeture du puits à différents niveaux, tant à l'extérieur qu'à l'intérieur.

Le schéma présenté en Figure 49 détaille la composition d'une tête de puits.

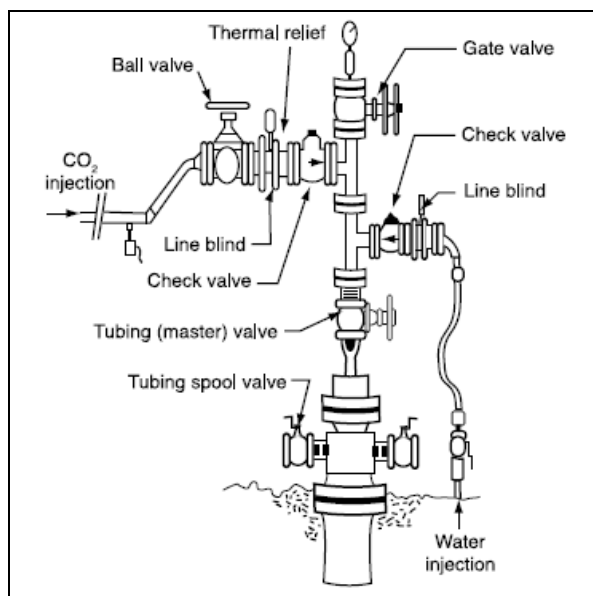


Figure 49 : Descriptif technique d'une tête de puits d'injection de CO₂

EQUIPEMENTS EN FOND DE PUITS

A l'instar des puits d'injection classiques, les équipements de fond de puits sont :

- un packer (ou obturateur annulaire) dont le but est de confiner la pression élevée à la zone d'injection,
- une vanne en fond de puits qui est automatiquement fermée en cas de fuite détectée plus en amont dans le puits ou au niveau des installations de surface,
- un système de marche/arrêt de l'injection..

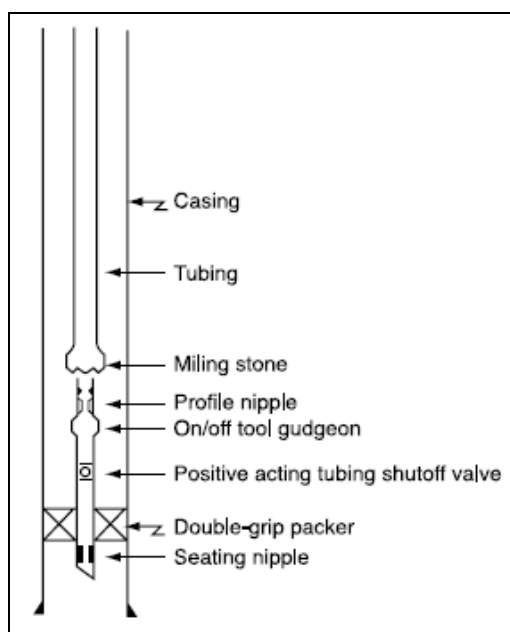


Figure 50 : Descriptif des éléments techniques en fond de puits d'injection de CO₂