



(ID Modèle = 454913)

Ineris - 207066 - 2778839 - v1.0

23/10/2023

**Synthèse des travaux de recherche de l'Ineris
sur les phénomènes dangereux liés aux
technologies de captage, transport et
stockage du CO₂**

PRÉAMBULE

Le présent document a été réalisé au titre de la mission d'appui aux pouvoirs publics confiée à l'Ineris, en vertu des dispositions de l'article R131-36 du Code de l'environnement.

La responsabilité de l'Ineris ne peut pas être engagée, directement ou indirectement, du fait d'inexactitudes, d'omissions ou d'erreurs ou tous faits équivalents relatifs aux informations utilisées.

L'exactitude de ce document doit être appréciée en fonction des connaissances disponibles et objectives et, le cas échéant, de la réglementation en vigueur à la date d'établissement du document. Par conséquent, l'Ineris ne peut pas être tenu responsable en raison de l'évolution de ces éléments postérieurement à cette date. La mission ne comporte aucune obligation pour l'Ineris d'actualiser ce document après cette date.

Au vu de ses missions qui lui incombent, l'Ineris, n'est pas décideur. Les avis, recommandations, préconisations ou équivalents qui seraient proposés par l'Ineris dans le cadre des missions qui lui sont confiées, ont uniquement pour objectif de conseiller le décideur dans sa prise de décision. Par conséquent, la responsabilité de l'Ineris ne peut pas se substituer à celle du décideur qui est donc notamment seul responsable des interprétations qu'il pourrait réaliser sur la base de ce document. Tout destinataire du document utilisera les résultats qui y sont inclus intégralement ou sinon de manière objective. L'utilisation du document sous forme d'extraits ou de notes de synthèse s'effectuera également sous la seule et entière responsabilité de ce destinataire. Il en est de même pour toute autre modification qui y serait apportée. L'Ineris dégage également toute responsabilité pour chaque utilisation du document en dehors de l'objet de la mission.

Nom de la Direction en charge du rapport : DIRECTION INCENDIE DISPERSION EXPLOSION

Rédaction : HEBRARD Jerome

Vérification : LEPRETTE EMMANUEL; HEUDIER LAURE

Approbation : Document approuvé le 23/10/2023 par PIQUETTE BERNARD

Liste des personnes ayant participé à l'étude : -

Table des matières

1.	Introduction	6
1.1	Objectifs du rapport	7
1.2	Problématique et questionnement scientifique de la recherche	7
1.2.1	Toxicité du CO ₂	8
1.2.2	Choix des seuils.....	8
1.2.3	Autres dangers liés au CO ₂	12
1.3	Contexte de recherche	12
2.	Description des différents bancs d'essais	13
2.1	Etude du comportement thermodynamique du CO ₂ pur ou mélangé à un polluant (essais à petite échelle)	13
2.2	Caractérisation du terme source et du nuage en champ proche dans le cas d'un rejet continu de CO ₂ dense	17
2.3	Caractérisation de l'écoulement dans le cas d'une décompression de canalisation de CO ₂ dense 21	
3.	Termes sources	25
3.1	Evaluation du débit pour des rejets continus.....	25
3.2	Décompression de canalisation en phase dense	28
3.3	Hypothèses de modélisations du terme source d'un rejet de CO ₂	30
4.	Champ proche et formation de glace carbonique.....	32
4.1	Analyse du champ proche	32
4.2	Mesures de concentration dans la zone d'entraînement	34
5.	Dispersion d'un nuage de CO ₂ (pur) en fonction des conditions de stockage de la fuite	37
5.1	Discussion générale	37
5.2	Rejets horizontaux : abaques	37
5.3	Rejets multi directionnels.....	41
5.4	Formation d'un cratère.....	42
5.5	Effet d'accumulation dans une cuvette	43
6.	Influence des impuretés	46
7.	Modélisation	48
7.1	Modélisation de la dispersion de CO ₂ en terrain plat et champ libre	48
7.2	CFD	48
7.3	Cratère.....	50
7.4	Méthodologie de modélisation.....	50
8.	Conclusions et perspectives	53
9.	Références	54

Table des figures

Figure 1 : Technique CCS (image tirée de [1]).....	6
Figure 2 : Diagramme de phase du CO ₂	8
Figure 3 : Représentation schématique de la Loi d'Haber	9
Figure 4 : Banc expérimental mis en place pour comportement thermodynamique du CO ₂ (pur ou en mélange avec impureté).....	13
Figure 5 : Evolution de la viscosité en fonction de la température dans l'autoclave	15
Figure 6 : Viscosités prédites à 260K en fonction de la pression pour différents mélanges : CO ₂ pur, 95 mol % CO ₂ – 5 mol % CH ₄ , 95 mol % CO ₂ – 2 mol % CH ₄ – 3 mol % N ₂ et 95 mol % CO ₂ – 2 mol % CH ₄ – 2 mol % N ₂ – 1 mole % H ₂	15
Figure 7 : Dispositif expérimental utilisé pour caractériser un rejet continu de CO ₂ dense.....	17
Figure 8 : Dimensions des orifices de fuite. a : ras de paroi – b : tube de laminage.....	18
Figure 9 : Instrumentation spécifique mise en œuvre pour caractériser l'écoulement en champ proche	19
Figure 10 : Exemple de distribution des capteurs pour un rejet massif de CO ₂ dense	20
Figure 11 : Banc d'essai canalisation de transport en 2009 (haut) et 2021 (bas).....	21
Figure 12 : Divers équipements de la canalisation : tronçon transparent placé au centre, sept mâts équipés de pesons (mesure de la masse), système de recirculation.....	22
Figure 13 : Plusieurs dispositifs de rejet instrumentés permettant de choisir la phase de rejet, le diamètre, l'orientation	22
Figure 14 : Fonctionnement du système pyrotechnique de déclenchement de rupture franche de canalisation.....	23
Figure 15 : Instrumentation interne de la canalisation à intervalles réguliers (pression, températures, flux thermiques...).....	23
Figure 16 : Equipement de mesure de température et de pression dans le champ proche.....	24
Figure 17 : Débit en fonction de la pression (pris en début de rejet) dans la sphère pour trois diamètres de rejet (sans tube de laminage).....	25
Figure 18 : Comparaison des débits expérimentaux avec le calcul (gauche : orifices, droite : canalisations) pour les rejets à saturation (bleu) et les rejets à haute pression (HP, en vert).....	26
Figure 19 : Estimation du débit en fonction du diamètre de l'orifice pour du CO ₂ stocké à la saturation à température ambiante ou comprimé à haute pression (haut : tout diamètre, bas : focus sur les petits diamètres < 10 mm)	27
Figure 20 : Descriptif de la canalisation de 257 m installée au DUT [18].....	28
Figure 21 : Evolution de la pression lors de la vidange de la canalisation de 40 m	29
Figure 22 : Evolution de la pression lors de la vidange de la canalisation de 40 m : zoom sur les premiers instants	29
Figure 23 : Evolution de la pression lors de la vidange de la canalisation de 257 m	30
Figure 24 : Comparaison des évolutions de pression mesurées et calculées avec Phast pour une canalisation de 37 m.....	31
Figure 25 : Evolution de la pression modélisée avec Phast pour une canalisation de 257 m.....	31
Figure 26 : Visualisation de la zone d'expansion et évolution des paramètres mesurés dans cette zone (test 12 de [15])	32
Figure 27 : Distribution de température dans le champ proche (essai 25 mm 77 bar, légèrement comprimé au-dessus de la pression de saturation).....	33
Figure 28 : Relation locale entre la température et la concentration (points = mesures expérimentales / courbe = Equation 3).....	35
Figure 29 : Comparaison de la concentration déduite de l'Equation 3 (avec $y_{CO_2} = 0,3$) et celle mesurée à l'aide des capteurs O ₂ pour quelques tests réalisés dans des conditions d'essais	36
Figure 30 : Profils de concentration en fonction de la hauteur à plusieurs distances de la source (haut : liquide à saturation ; bas : liquide comprimé)	38
Figure 31: Différentes prises de vue d'une fuite massive de CO ₂	38
Figure 32 : Profils de concentration en fonction de la hauteur à plusieurs distances de la source pour un rejet massif de CO ₂ liquide à saturation	39
Figure 33 : Profils de concentration en fonction de la distance depuis la fuite.....	39
Figure 34 : Image extraite d'une vidéo associée (haut) associée aux isolignes de concentrations (%vol.) pour un essai de rejet 9mm à 95 bar.....	40
Figure 35 : Iso concentrations pour des diamètres de fuite allant de 9 à 25 mm	40
Figure 36 : Distances aux concentrations de 5% et 10% vol. pour des rejets de CO ₂ dans différents états de stockage [13, 14, 20]	41

Figure 37 : Nuage visible dans une configuration d'essai de rejet vertical et à 45°	41
Figure 38 : Nuage visible dans une configuration d'essai de rejet rasant	42
Figure 39 : Configuration de rejet impactant avec obstacles.....	42
Figure 40 : Nuage visible pour une simulation de rejet en cratère (enveloppe visible du nuage estimée ici à 0.5%vol. de CO ₂)	43
Figure 41 : Dispersion d'un nuage massif de CO ₂	44
Figure 42 : Concentrations mesurées à différents points du nuage	45
Figure 43 : Diagramme Pression-Température pour la décompression de canalisation en fonction du taux de méthane dissous dans le CO ₂	46
Figure 44 : Modélisation CFD de la dispersion d'un nuage de CO ₂ en présence d'un relief.....	49
Figure 45 : Evolution du débit massique total (somme des contributions des tronçons amont et aval).....	51
Figure 46 : Dispersion du nuage avec une hypothèse de rejet vertical.....	51
Figure 47 : Dispersion du nuage avec une hypothèse de formation de cratère ayant une influence sur la quantité de mouvement du rejet	52
Figure 48 : Dispersion du nuage avec le modèle « cratère » de DNV	52
Figure 49 : Dispersion du nuage avec une hypothèse de rejet horizontal.....	52

Pour citer ce document, utilisez le lien ci-après :

Institut national de l'environnement industriel et des risques, Synthèse des travaux de recherche de l'Ineris sur les phénomènes dangereux liés aux technologies de captage, transport et stockage du CO₂, Verneuil-en-Halatte : Ineris - 207066 - v1.0, 23/10/2023.

1. Introduction

L'accumulation de dioxyde de carbone (CO_2) dans l'atmosphère, notamment induite par le secteur des énergies fossiles, est jugée responsable du réchauffement climatique. L'une des solutions envisagées pour réduire les émissions de dioxyde de carbone (CO_2) dans l'atmosphère consiste à le capter à la source pour ensuite le piéger (Carbone Capture and Storage ou CCS¹ en anglais). Cette technique correspond à la succession des opérations qui consiste à extraire le CO_2 directement depuis le combustible (avant sa combustion) ou au niveau des fumées de combustion des sources fossiles (charbon, produits pétroliers, gaz naturel), puis à le transporter dans des canalisations jusqu'à des zones adaptées de stockage géologique, comme des gisements d'hydrocarbures ou des aquifères salins profonds (Figure 1).

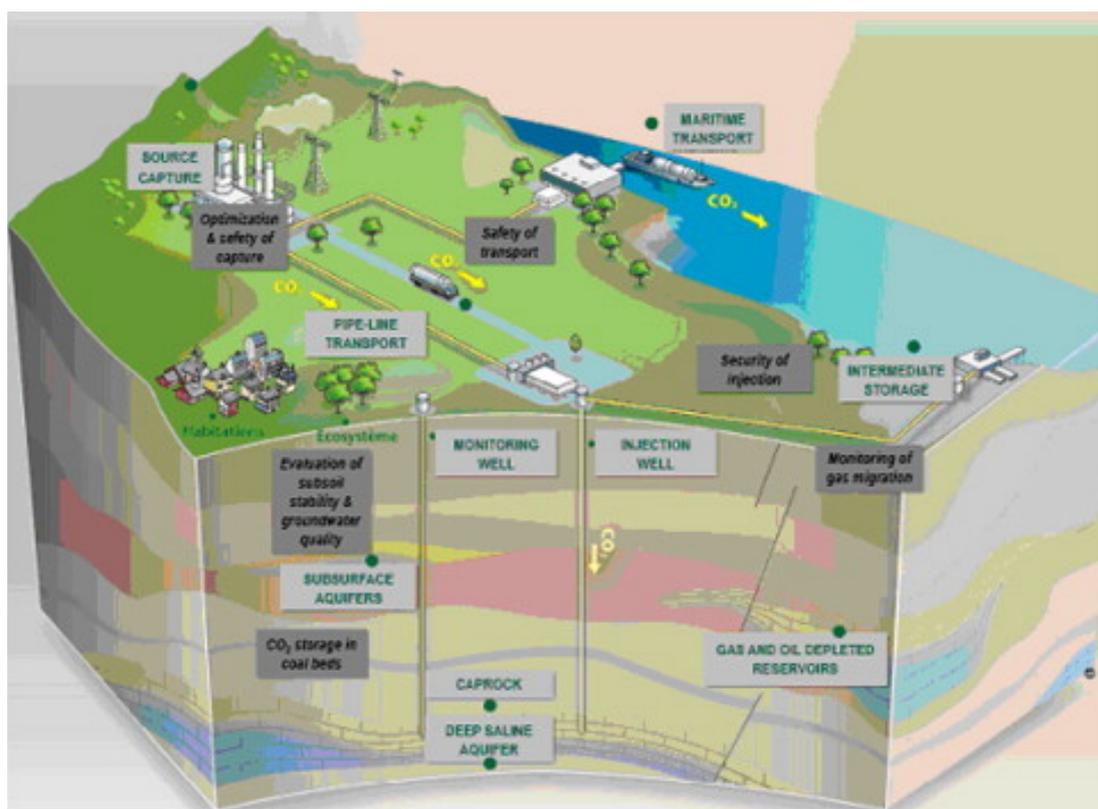


Figure 1 : Technique CCS (image tirée de [1])

Cependant, la mise en œuvre de la technique CCS soulève des inquiétudes du point de vue de la sécurité, et plus particulièrement sur l'effet d'une fuite massive pouvant affecter les canalisations de transport. Ces inquiétudes s'appuient notamment sur la tragédie du lac Nyos² au Cameroun en 1986. Du CO_2 , accumulé naturellement dans les couches les plus profondes du lac, a été brusquement émis à l'atmosphère à la suite d'un effondrement de terrain ce qui a entraîné le décès de près de 1800 personnes situées dans les villages avoisinants. Plus récemment, les habitants de Satartia³, dans le Mississippi aux Etats-Unis, se sont réveillés un matin dans un nuage de CO_2 , avec pour certains des symptômes tels que nausée, vertiges ou difficultés respiratoires. La cause était une fuite sur une canalisation de transport de CO_2 passant sur les collines au-dessus du village. Un nuage de CO_2 lourd issu de la fuite a dévalé la pente sur une distance bien supérieure à celle qui avait été estimée initialement et a atteint la ville en contrebas.

¹ « Le sigle CCS, en outre, tend de plus en plus à devenir CCUS pour *carbon capture utilization and storage* car une partie du carbone destiné au stockage pourrait être utilisé plus largement qu'il ne l'est usuellement. Les trois maillons de la chaîne du CCS, mais aussi celui des utilisations du CO_2 font appel à des connaissances scientifiques et techniques différentes. » (source <https://www.encyclopedie-energie.org/captage-et-stockage-du-carbone>)

² http://fr.wikipedia.org/wiki/Lac_Nyos

³ https://www.huffingtonpost.co.uk/entry/gassing-satartia-mississippi-co2-pipeline_n_60ddea9fe4b0ddef8b0ddc8f

Comme pour toute autre solution émergente (hydrogène, nanoparticules...), il est donc impératif que cette solution CCS soit d'abord acceptée socialement pour pouvoir espérer se développer durablement. Cette acceptabilité sociale ne peut être atteinte qu'en démontrant que tous les risques associés à l'installation CCS ont bien été identifiés et correctement évalués.

1.1 Objectifs du rapport

Le principal risque identifié étant une perte de confinement, de nombreuses données expérimentales ont été récoltées dans différentes configurations de fuites et l'objet de ce rapport est d'en réaliser une synthèse afin de clarifier la phénoménologie des écoulements biphasiques lors de la décompression d'une canalisation ou de la vidange d'une enceinte.

Les principales thématiques qui ont été traitées sont :

1. Les fuites de CO₂ et la quantification des effets dans différentes configurations de fuite, dans le cas de stockage ou de transport par canalisations ;
2. Les causes de ces fuites et notamment en canalisation suivant les conditions de transport du CO₂, et notamment la possibilité de former de la glace carbonique (CO₂ sous forme solide) avec le risque de bouchage d'un équipement ;
3. La présence d'impuretés ayant une influence sur les changements de phase de CO₂ (et donc sur la quantité de carboglace formée).

L'Ineris s'est appuyé sur des équipements expérimentaux conçus et instrumentés dans ce but :

- Une canalisation de 40 m qui a permis de réaliser des essais de dépressurisation dans des conditions représentatives des conditions réelles de transport, voire des conditions extrêmes (en termes de quantité d'impuretés, de température, de pression, de taille de fuite, etc...). L'objectif était d'observer les transitions de phase et de préciser la physique à modéliser en fonction des impuretés présentes dans le CO₂, à l'aide de mesure internes et en champ proche (à quelques centimètres de la fuite) de pression et de température.
- Un réservoir de 2 m³ qui a permis de réaliser des fuites contrôlées, et d'étudier la dispersion du nuage formé dans différentes configurations notamment à l'aide de mesures de température et de concentrations.
- Un autoclave d'environ un litre permettant de mesurer les caractéristiques thermochimiques d'un fluide.

Ce travail a permis de mettre au point des techniques expérimentales innovantes afin :

1. de maîtriser la qualité du mélange CO₂+impuretés ;
2. d'identifier les processus thermodynamiques lors de la formation de glace carbonique à l'intérieur de la canalisation ;
3. de mesurer précisément les vitesses et les débits d'écoulement.

Les techniques instrumentales originales développées par l'Ineris ont également permis de faciliter le développement des bancs d'essais à plus grande échelle.

La présentation des dangers liés au CO₂ est suivie d'une présentation des installations expérimentales et des configurations étudiées dans le cadre des différents projets de recherche. Une analyse des données obtenues en champ proche et en écoulement interne, ainsi qu'en champ lointain, notamment des résultats de dispersion pour différentes configurations de rejet de CO₂ pur est accompagnée d'une analyse des outils de modélisation et permet de faire quelques propositions sur la méthodologie de modélisation. Quelques résultats de modélisations de dispersion sont proposés. La dernière partie traite de l'influence de la présence d'impuretés et notamment sur la formation de glace carbonique.

1.2 Problématique et questionnement scientifique de la recherche

Une infrastructure, qui transporte du CO₂ dans des quantités suffisantes pour contribuer de façon significative à la lutte contre le réchauffement climatique, nécessite un réseau important de canalisations s'étalant sur plusieurs centaines de kilomètres. Pour des raisons économiques, son transport se fera principalement à l'état dense (c'est-à-dire à une pression supérieure à la pression critique, soit environ 73 bar, voir sur la Figure 2) du fait de sa faible viscosité et de sa densité élevée dans cet état. Pour information, une canalisation typique de 100 km de long et de 400 mm de diamètre contiendra approximativement 10000 t de CO₂ à l'état dense contre moins de 2000 t à l'état de gaz comprimé. Les risques liés au transport du CO₂ sont donc liés à l'état dans lequel il est transporté.

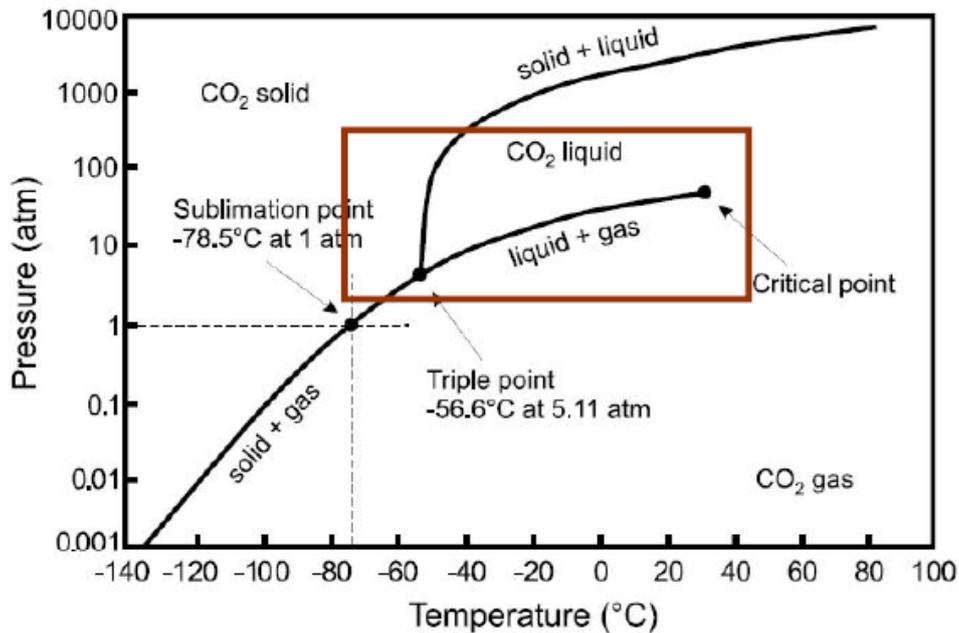


Figure 2 : Diagramme de phase du CO₂

1.2.1 Toxicité du CO₂

Compte tenu des propriétés du CO₂ dense et des conditions de transport de celui-ci, une proportion importante de l'inventaire contenu dans la canalisation sera relâchée dans l'atmosphère dès les premières minutes. Ceci est propice à des fortes concentrations et donc à des effets toxiques importants dans l'environnement de la brèche. Il faut rappeler [2] qu'une atmosphère sous oxygénée entraîne des dommages graves, pouvant conduire à la mort par asphyxie si la teneur en oxygène se raréfie. Par ailleurs, le dioxyde de carbone est le régulateur de la respiration. Il agit sur le centre nerveux de commande du système respiratoire. D'après un rapport du HSE [3] publié en 2011, l'inhalation d'une concentration élevée de CO₂ peut augmenter l'acidité du sang et provoquer des effets indésirables. En fonction de la concentration de CO₂ inhalé et de la durée d'exposition, les symptômes toxicologiques humains vont de maux de tête (concentration de l'ordre de 3 % pendant 1 heure), augmentation du rythme respiratoire et de la fréquence cardiaque, étourdissements, contractions musculaires, confusion, inconscience (pour une concentration de l'ordre de 10% pendant 1 minute), jusqu'au coma voire la mort (pour une concentration de l'ordre de 15 à 20 % pendant 1 minute).

Une modélisation pertinente de la dispersion est donc nécessaire pour déterminer les distances minimales de sécurité pour les populations avoisinant une canalisation de transport et pour jeter les bases d'un plan de prévention d'urgence.

1.2.2 Choix des seuils

1.2.2.1 Rappel sur la loi de Haber

Lorsqu'une personne respire une atmosphère polluée par un produit toxique, les effets redoutés sont définis comme étant l'apparition (à faible probabilité) de la létalité, des malaises, de la toux...

Ces effets sont directement fonction de la concentration C et du temps t pendant lequel le sujet est exposé à cette concentration. Les effets varient bien évidemment selon l'âge de la personne, ainsi qu'en fonction de son état de santé ou de ses facultés d'accoutumance.

Aussi les courbes dans un plan (C, t) correspondant à un effet donné sont établies pour une population représentative.

A effet E constant, la concentration et le temps se trouvent pratiquement liés par une relation :

$$\int Cn.t dt = E.$$

Dans le plan Log (C), Log (t), ces courbes peuvent être généralement assimilées à des droites comme représenté schématiquement sur la figure suivante. Cette relation est plus connue sous le nom de Loi d'Haber.

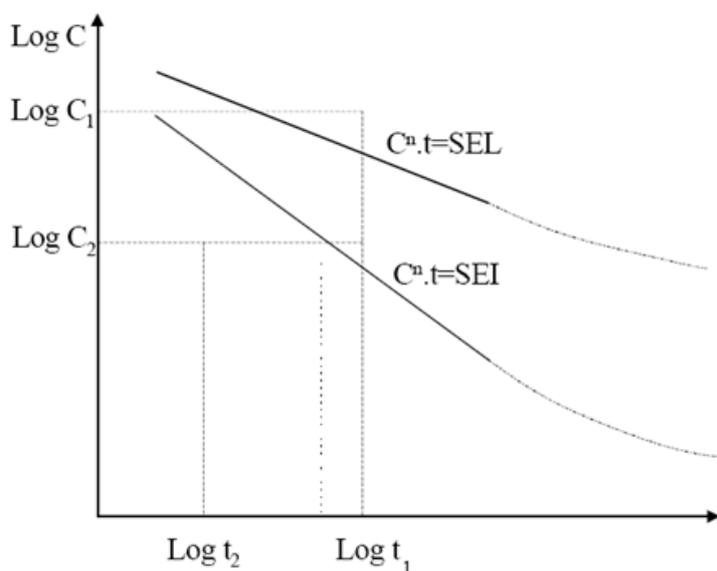


Figure 3 : Représentation schématique de la Loi d'Haber

Sur ces courbes, les coordonnées d'un point (C, t) représentent :

- l'échelon de concentration C,
- et le temps d'application t de cet échelon.

Cet effet se produira dès que $C_n.t = E$

A titre d'exemple sur la figure précédente, il peut être noté que :

- Pour une durée d'exposition t_1 à une concentration C_1 , les effets létaux sont atteints ;
- Pour une durée d'exposition t_1 à une concentration C_2 , les effets irréversibles sont atteints, les effets létaux ne sont eux pas observés ;
- Pour une durée d'exposition t_2 à une concentration C_2 , les effets létaux et les effets irréversibles ne sont pas atteints.

Les valeurs des variables E et n dépendent à la fois du type d'effet considéré (apparition à faible probabilité de la létalité par exemple) et de la nature du produit toxique en cause. De façon schématique, plus la valeur de n est grande, plus la dose est indépendante de la durée d'exposition t et à la limite, pour un n infini, la dose ne dépend plus que de la concentration (produit à caractère foudroyant).

Dans le cas où il n'existe pas de données humaines [4] mais où un effet est observé chez l'animal et que les données montrent une relation dose-effet, la loi de Haber est éventuellement applicable (si ses hypothèses de base sont respectées) et le modèle d'analyse probit peut être utilisé pour déterminer la valeur de « n ».

L'hypothèse du « modèle Log-Probit » est que le seuil de tolérance d'un animal à une substance chimique est distribué selon une loi Log-Normale au sein de la population considérée. Les données individuelles de mortalité issues de la phase expérimentale seront utilisées dans le modèle Log-Probit afin d'effectuer une régression non linéaire. La probabilité que la substance induise un effet néfaste (ici la mort des animaux) peut s'écrire :

$$P(\text{réponse}) = F\left(\frac{\ln(C) + m \cdot \ln(T) - \mu}{\sigma}\right)$$

P(réponse) est donc la probabilité qu'un animal choisi au hasard et exposé à une concentration C de substance pour une durée d'exposition T présente une réponse (mortalité). Ceci suppose une distribution Log-Normale des seuils de tolérances (c'est-à-dire la dose au-delà de laquelle l'animal meurt), c'est-à-dire que le logarithme de ces seuils est distribué selon une loi Normale centrée réduite.

F est la fonction de répartition de la loi Normale. Elle s'écrit :

$$p = F\left(\frac{\log(C) + m \cdot \log(\tau) - \mu}{\sigma}\right)$$

Les paramètres de ce modèle sont : m, μ et σ . « m » est égal à 1/ « n » où « n » correspond au « n » de la relation de Haber. « μ » et « σ » correspondent respectivement à la moyenne et à la variance de la loi Normale.

La loi d'Haber est généralement établie entre 1 minute (parfois 10 minutes) et 120 minutes (jusqu'à 480 minutes pour certaines substances). En dessous d'une minute d'exposition, il est impossible de définir un seuil pour une personne car le temps d'exposition devient trop court (possibilité d'apnée, ...). Par conséquent, pour toute exposition inférieure à 1 minute, dans une approche prudente, on retiendra comme seuil la concentration calculée pour 1 minute d'exposition.

1.2.2.2 Revue bibliographique

En France, les seuils d'effets utilisés pour le CO₂ ne dépendent pas du temps d'exposition car un phénomène de saturation relativement rapide a été identifié, ils sont présentés dans la note gaz inerte [2] et reportés dans le tableau suivant :

Seuil des effets	Concentration (ppm)
Effets létaux significatifs	200 000
Premiers effets létaux	100 000
Effets irréversibles	50 000

Tableau 1 : Seuils des effets toxiques du CO₂ (France)

Dans son rapport [3], le HSE fait une évaluation de la dose toxique dangereuse pour le CO₂. Il met en évidence un danger important pour les humains s'ils inhalent du CO₂ à des concentrations supérieures à environ 7 % dans l'air (c'est-à-dire > 70 000 ppm).

Pour évaluer la toxicité des substances, le HSE utilise la charge toxique dangereuse (DTL : Dangerous Toxic Load) pour calculer les conditions d'exposition (concentration et durée d'exposition). Dans cette évaluation, le niveau de toxicité SLOT⁴ (specified level of toxicity) et le seuil à partir duquel la probabilité de décès devient significative SLOD (pour significant likelihood of death) sont définis.

Pour l'aménagement du territoire, le HSE a défini le SLOT comme causant :

- Une « détresse » grave pour presque tout le monde dans la zone ;
- Une fraction substantielle de la population exposée nécessite des soins ;
- Certaines personnes sérieusement atteintes, nécessitent des soins prolongés ;
- Les personnes très sensibles peuvent être tuées, pouvant entraîner un taux de létalité de 1 à 5 % par une exposition unique à une certaine concentration pendant un laps de temps connu.

SLOD est défini comme causant 50 % de létalité à partir d'une seule exposition sur une période connue. Les données pour ce calcul sont recueillies à partir de tests de toxicité de routine sur animaux, en utilisant des résultats prudents.

Le tableau 1 du rapport [3] qui présente les concentrations seuils en fonction du temps d'exposition met en évidence que la toxicité du CO₂ augmente rapidement pour seulement de petits changements de concentration au-dessus d'un certain niveau (c'est-à-dire qu'il n'y a pas une grande différence entre les valeurs SLOD et SLOT). Autrement dit, au-dessus d'une concentration d'environ 7 % dans l'air, les humains sont particulièrement sensibles à de nouvelles augmentations⁵.

⁴ SLOT : concentration dans l'air pour laquelle la majorité des individus exposés est susceptible de souffrir de détresse grave, dont une fraction exigera une attention médicale, et quelques personnes seront sérieusement blessées, ayant besoin d'un traitement prolongé. Pour les individus hypersusceptibles, il est possible qu'ils décèdent.

SLOD : concentration dans l'air pour laquelle il est possible que 50% de la population exposée décède

⁵ Les différences de concentration de CO₂ entre les différents niveaux de létalité et les différents temps d'exposition sont relativement faibles ; les concentrations pour les niveaux de létalité 1-5 % et 50 % pour un temps d'exposition donné ne diffèrent que de 33 %, alors que pour une concentration donnée, il y a un facteur supérieur à 10 entre le temps d'exposition correspondant au SLOT et le temps d'exposition correspondant au SLOD.

La loi de Haber qui permet de relier la concentration à la durée d'exposition à partir d'une dose toxique reçue (DTL), a été utilisée dans l'étude du HSE avec un n=8. Cette valeur de n très élevée montre bien que c'est principalement la concentration qui influence la toxicité, et non le temps d'exposition.

De son côté, l'US EPA a fait une proposition de valeurs AEGL mais qui semble toujours à l'étude (annexe A). Les seuils AEGL correspondent à [5] :

- AEGL-1 : concentration d'une substance chimique dans l'air (exprimée en ppm ou mg/m³) au-dessus de laquelle la population générale, individus sensibles inclus, pourrait présenter des signes d'inconfort notable, d'irritation ou tout autre signe non-sensoriel et asymptotique. Ces effets sont transitoires, non-invalidants et réversibles après cessation de l'exposition. AEGL-2 : concentration d'une substance chimique dans l'air (exprimée en ppm ou mg/m³) au-dessus de laquelle des effets irréversibles, des effets nocifs sévères ou des effets adverses à long terme pourraient être observés au sein de la population générale, individus sensibles inclus. AEGL-3 : concentration d'une substance chimique dans l'air (exprimée en ppm ou mg/m³) au-dessus de laquelle des effets potentiellement mortels ou des décès pourraient survenir au sein de la population générale, individus sensibles inclus

Le seuil AEGL 1 serait l'équivalent du seuil des effets réversibles (SER), le seuil AEGL-2 serait l'équivalent du seuil des effets irréversibles (SEI) et le seuil AEGL-3 serait l'équivalent du seuil des premiers effets létaux.

En l'absence de valeurs françaises, l'Ineris dans son guide pratique de choix des valeurs seuils de toxicité aiguës en cas d'absence de valeurs française [5] préconise d'utiliser préférentiellement les AEGLs, les ERPGs, les IDLH et les TEELs.

La valeur de l'IDLH⁶ proposée par le NIOSH qui correspond à la concentration maximale à laquelle un travailleur peut être exposé 30 minutes, sans présenter de symptômes pouvant l'empêcher de fuir et sans produire des effets irréversibles sur sa santé, est de 4%.

En résumé, le tableau suivant présente les valeurs pour les différents seuils utilisés :

Seuil des effets	VSTAF	IDLH	AEGL	HSE
Effets létaux significatifs	200000			SLOD : entre 63000 et 105000
Premiers effets létaux	100000			
Effets irréversibles	50000	40000	AEGL-2 : 50000	
Effets réversibles			AEGL-1 : 25000	

Tableau 2 : Valeurs de toxicité aiguës du CO₂

On retrouve la même valeur pour le seuil AEGL-2 que pour le SEI ce qui est cohérent, les seuils AEGL étant d'une manière générale plutôt majorant puisqu'ils sont développés pour l'urgence. La valeur IDLH étant légèrement inférieure.

L'Ineris considère par ailleurs que l'état des connaissances ne permet pas d'utiliser la loi de Haber pour cette substance et est donc plutôt en faveur de l'utilisation de valeurs seuils sans notion de durée d'exposition.

Malgré cela, pour les seuils létaux, il semble que les seuils français soient moins conservatifs que le HSE, surtout si l'on compare au seuil défini pour une exposition longue.

⁶ pour «Immediately Dangerous to Life and Health»

1.2.3 Autres dangers liés au CO₂

En premier lieu, ce sont les aspects thermodynamiques et de changement de phase se déroulant en zone proche de la brèche qu'il convient d'élucider. En effet, la détente brutale du CO₂ génère un rejet multiphasique dont la composition reste difficile à apprécier et qui, pourtant, conditionne fortement la dispersion du nuage. Du fait du refroidissement du rejet et de la présence de particules de CO₂ sous forme solide en son sein le nuage tend à ramper au niveau du sol et est susceptible de s'accumuler dans les zones basses (vallées, cavités du sol...). Si cette caractérisation de la composition du rejet reste difficile à modéliser lorsque le CO₂ est pur, une difficulté supplémentaire vient s'ajouter lorsque des impuretés liées au procédé sont mélangées au CO₂ et sont potentiellement sources de modification du comportement chimico-thermodynamique. Les principaux composés qui peuvent être retrouvés dans le CO₂ sont H₂S, NO_x, CH₄, H₂. Une liste plus exhaustive est proposée par Porter et al. [7] en fonction du type de captage (tables 1 à 8). Il peut notamment être observé des modifications sensibles de la pression de vapeur saturante (et donc du point triple), de la conductivité thermique, de la viscosité, etc... selon le type et la quantité d'impuretés mélangées au CO₂. Certaines impuretés sont de plus elles-mêmes toxiques (H₂S, NO_x...) et aggravent les caractéristiques toxiques du nuage.

Outre le caractère toxique, un rejet de CO₂ dense présente d'autres dangers bien spécifiques qui peuvent provoquer des effets dominos :

- Le CO₂ réagit avec l'eau pour former de l'acide carbonique entraînant la corrosion des canalisations en acier ;
- Le rejet de CO₂ dense se fait à des températures si faibles qu'il peut entraîner la rupture fragile des équipements présents dans le champ proche de la brèche ;
- La présence éventuelle de CO₂ solide (aussi appelé « glace carbonique », « neige carbonique », « glace sèche » ou « carboglace ») dans un jet à vitesse élevée peut entraîner un risque d'érosion par impact. Il est rappelé que les granules de CO₂ sont aussi utilisés commercialement pour le nettoyage et le décapage cryogénique.

1.3 Contexte de recherche

Depuis une quinzaine d'années, l'Ineris collabore dans le cadre de divers projets nationaux ou européens en partenariat avec de nombreux industriels, universités et instituts publics à la recherche liée à la sécurité du transport du CO₂ lié à la filière CCS.

On citera notamment pour la recherche liée à la compréhension des phénomènes physiques :

- Le projet français France Nord (ADEME, 2009,2017) qui est un projet de démonstrateur sur le stockage géologique de CO₂ dans des aquifères salins pour démontrer la faisabilité du captage, du transport et du stockage de CO₂ des sources industrielles concentrées du nord de la France et la capacité des aquifères salins du Bassin parisien à stocker ces émissions.
- CO₂PipeHaz (Quantitative Failure Consequence Hazard Assessment for Next Generation CO₂ Pipelines, 2009-2013) était un projet du 7^{ème} PCRD (Programme Cadre pour la Recherche et le Développement Technologique) mis en place par l'UE. Ce projet visait à produire des connaissances et des outils de base et en déduire une stratégie de maîtrise des risques liés à la filière de stockage du CO₂ en intégrant des aspects technico-économiques.
- Le projet européen CO2Quest [8,9] (2013- 2016) a permis d'aborder la question fondamentale de l'impact des impuretés potentiellement présentes dans le flux de CO₂ capturé par les centrales électriques à combustibles fossiles sur son transport et son stockage. Le but affiché du projet était d'essayer de travailler à rendre la filière CCS à la fois sûre et viable économiquement.
- Le projet européen C4U [10] (Advanced Carbon Capture for Steel industries integrated in CCUS Clusters, 2019-2023) a pour objectif de démontrer l'efficacité de deux technologies de capture de CO₂ à base solide⁷ pour une intégration dans une usine sidérurgique.

Le projet propose une prise en compte détaillée des aspects de sécurité, environnementaux, sociétaux, politiques et commerciaux pour une intégration dans le cluster industriel CCUS du port de la mer du Nord en Belgique et Pays-Bas.

- On pourra également citer le projet européen iNTeg-Risk [1] (Early Recognition, Monitoring and Integrated Management of Emerging, New Technology Related Risks) sur la gestion des risques émergents (liés aux nouvelles technologies). L'Ineris a notamment travaillé à l'adaptation des méthodes d'évaluation des risques à l'ensemble de la filière CCS, dont les problématiques d'évaluation des effets d'un accident majeur.

⁷ impliquant des processus de séparation gaz-solide à haute température qui réduisent l'empreinte énergétique associée au captage du CO₂

2. Description des différents bancs d'essais

L'Ineris a mis en place trois campagnes expérimentales principales, à petite et moyenne échelle, afin de produire des données permettant :

- d'étudier le comportement thermodynamique du CO₂ mélangé à un polluant (qui peut donc diverger de celui du CO₂ pur) ;
- de caractériser le terme source et le nuage émis en champ proche dans le cas d'un rejet continu ;
- de caractériser l'écoulement de fluide dans le cas d'une vidange rapide de canalisation.

2.1 Etude du comportement thermodynamique du CO₂ pur ou mélangé à un polluant (essais à petite échelle)

La simulation de rejet de CO₂ nécessite de disposer des propriétés thermodynamiques du fluide. L'objectif de ce banc d'essais à petite échelle était donc de mesurer en fonction de la pression et de la température les données suivantes :

- la variation d'énergie interne,
- l'enthalpie,
- la conductivité thermique,
- la viscosité.

L'approche adoptée par l'Ineris a consisté à vidanger un calorimètre contenant une masse initiale connue en CO₂ (pur ou en mélange) à travers une tuyauterie lisse dont la température externe est régulée à l'aide d'un circuit de refroidissement. La Figure 4 montre une photo du banc expérimental [11].

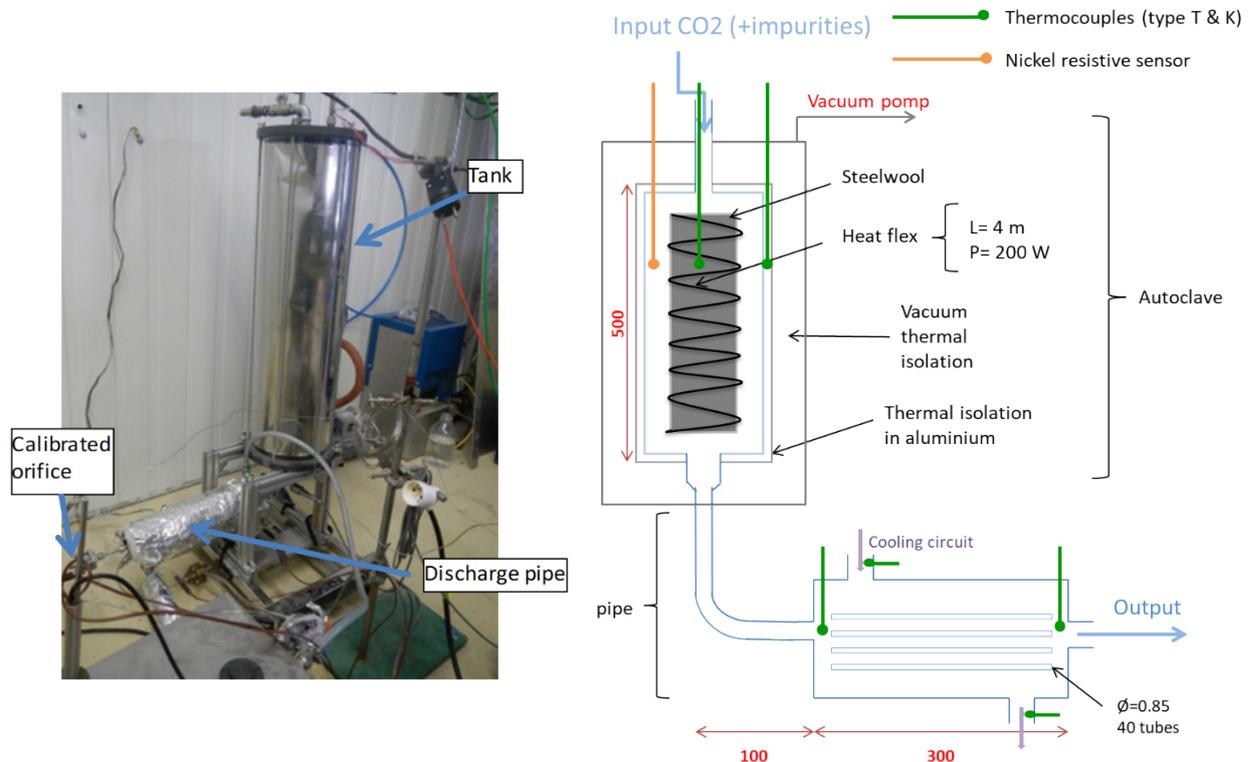


Figure 4 : Banc expérimental mis en place pour le comportement thermodynamique du CO₂ (pur ou en mélange avec impureté)

L'application du premier principe de la thermodynamique (conservation de l'énergie) sur le calorimètre permet de déterminer la variation d'énergie interne et, par voie de conséquence, la variation d'enthalpie et la chaleur spécifique du fluide concerné. En supposant que l'écoulement du fluide se fait de façon réversible⁸, la variation d'entropie peut alors être calculée en appliquant le second principe de la thermodynamique (principe de Carnot). La détermination de la conductivité thermique et de la viscosité dynamique du fluide se fait à partir de la mesure du différentiel de température interne et de pression entre l'entrée et la sortie de la tuyauterie lisse et calorifugée.

Les principaux résultats obtenus grâce à ce banc d'essai sont présentés dans les rapports Ineris [11, 12]. Les résultats de mesure de conductivité thermique et de viscosité sont prometteurs pour des mélanges de CO₂ avec des impuretés. Pour aller plus loin, le banc devra être amélioré afin de stabiliser l'écoulement et augmenter la qualité des mesures.

Si l'on prend l'exemple de la viscosité dynamique, en combinant le calcul des pertes de charges en tube et les équations de Reynolds il est possible d'exprimer la viscosité dynamique en fonction des paramètres géométriques du tube de fuite, du débit de fuite et des propriétés du fluide :

$$\mu_{fluid} = \frac{2 \times \Delta P_{tube} \times D_{tube}^2}{\Lambda \times Re \times L_{tube} \times v_{fluid}} \quad (1)$$

Avec :

- ΔP_{tube} : la perte de charge dans le tube de décharge (Pa)
- Λ : coefficient de perte de charge de Darcy (sans dimension)
- D_{tube} : Diamètre interne du tube de décharge (m)
- L_{tube} : Longueur du tube de décharge (m)
- ρ_{fluid} : masse volumique du CO₂ (kg.m⁻³)
- v_{fluid} : vitesse d'écoulement (m.s⁻¹)
- Re : nombre de Reynolds' (sans dimension)
- μ_{fluid} : viscosité dynamique du CO₂ (Pa.s)

Le *coefficient* de perte de charge de Darcy est calculé en fonction du régime d'écoulement, considéré laminaire dans le cadre des essais :

$$\Lambda = \frac{64}{Re}$$

Plusieurs tests ont été réalisés avec différentes fractions d'impuretés, la figure suivante présente les résultats en fonction de la température régnant dans l'autoclave. Chaque point de mesure est associé à une barre d'erreur estimée à partir de l'estimation des fluctuations des mesures de pression.

Comme attendu, la viscosité mesurée pour le CO₂ pur décroît lentement en fonction de la température. Par contre, la présence d'impuretés à une très forte influence sur la mesure. Les valeurs mesurées sont multipliées par deux par rapport au CO₂ pur ce qui est en désaccord avec les résultats attendus et les modélisations numériques. Quelques-unes de ces simulations sont présentées sur la Figure 6 réalisées avec un outil d'ingénieur avec différents modèles thermodynamiques.

⁸ Cette hypothèse est acceptable compte tenu du fait que le calorimètre était vidangé à un débit extrêmement faible (inférieur au g/s)

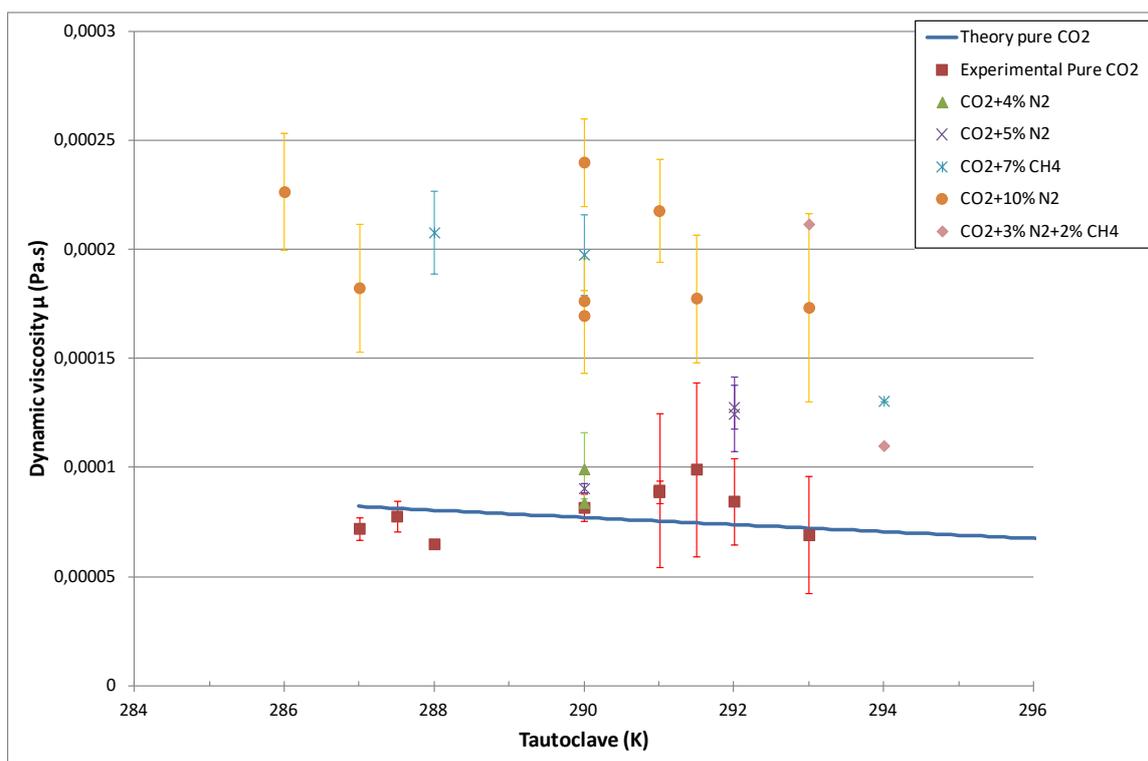


Figure 5 : Evolution de la viscosité en fonction de la température dans l'autoclave

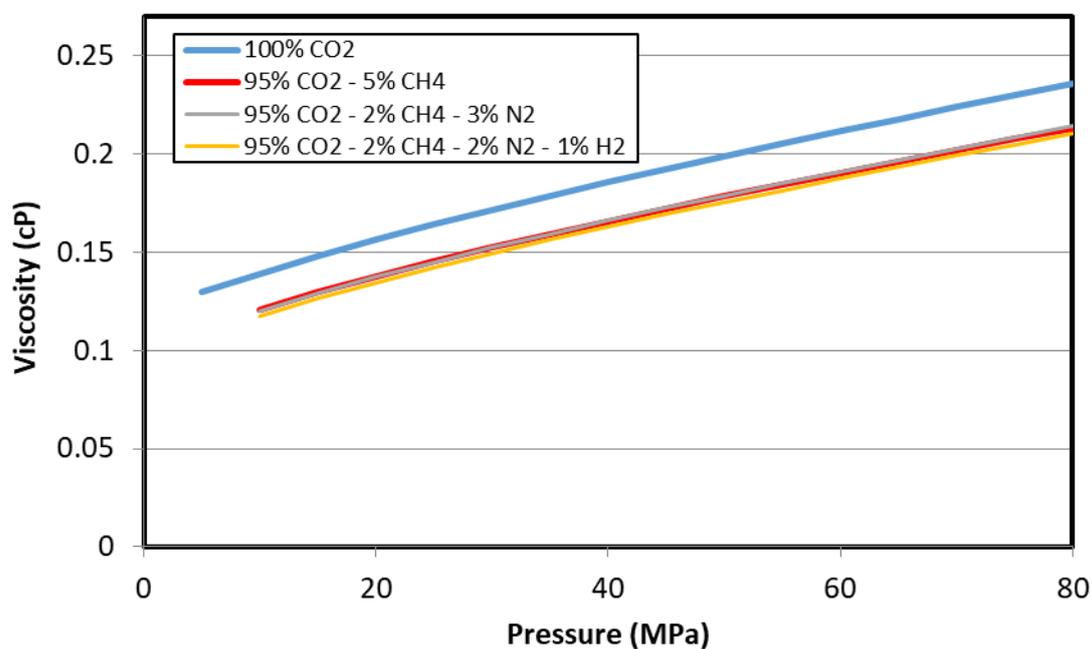


Figure 6 : Viscosités prédites à 260K en fonction de la pression pour différents mélanges : CO_2 pur, 95 mol % CO_2 - 5 mol % CH_4 , 95 mol % CO_2 - 2 mol % CH_4 - 3 mol % N_2 et 95 mol % CO_2 - 2 mol % CH_4 - 2 mol % N_2 - 1 mole % H_2

Les modélisations pour le CO₂ donnent une bonne estimation de la viscosité, si l'on compare aux valeurs des bases de données telles que le NIST⁹ et la DIPPR¹⁰. Lorsque l'on ajoute des impuretés, les valeurs de viscosité sont légèrement inférieures en fonction de la teneur et de l'impureté, et ces résultats contredisent les valeurs obtenues expérimentalement. Il est très probable que divers phénomènes conduisent à la formation de bulles et à l'établissement d'un écoulement à deux phases à l'intérieur du tube de décharge. Étant donné que la plupart des expériences ont été réalisées dans des conditions proches des conditions de saturation du mélange, les impuretés (plus volatiles que le CO₂) pourraient avoir été vaporisées. De plus, la diffusion moléculaire dans la phase liquide et les phénomènes capillaires pourraient avoir affecté la composition locale de la phase liquide, entraînant à nouveau la vaporisation de gaz inerte. Dans tous les cas, les conditions d'écoulement à deux phases entraîneront une chute de pression plus élevée à travers la ligne de décharge et des estimations de viscosité "apparente" plus élevées. Cet effet est d'autant plus plausible qu'il a été observé expérimentalement lors de la décharge de canalisation à plus grande échelle.

Un travail additionnel serait donc nécessaire afin d'améliorer le dispositif expérimental pour limiter la vaporisation lors du transfert du fluide dans le tube de décharge. Un moyen serait d'augmenter la pression dans l'autoclave pour s'éloigner de la zone diphasique, il faudrait pour cela renforcer le dispositif.

Il serait également intéressant de ralentir encore l'écoulement afin de garantir l'hypothèse de régime laminaire.

⁹ <https://www.nist.gov/srd>

¹⁰ <https://www.aiche.org/dippr> et <https://www.aiche.org/dippr>

2.2 Caractérisation du terme source et du nuage en champ proche dans le cas d'un rejet continu de CO₂ dense

Cette deuxième campagne expérimentale s'appuie sur une sphère de 2 m³ (diamètre interne d'environ 790 mm), en acier, capable de supporter des pressions internes de 200 bar, calorifugée et munie d'un dispositif de chauffage qui permet de réguler sa température depuis l'ambiante jusqu'à 200°C. Une description du dispositif est donnée dans [13, 14, 15]. La sphère peut être reliée à une canalisation de 50 mm de diamètre interne de longueur variable jusqu'à 6 m (Figure 7) instrumentée en pression et température à intervalles réguliers. Toutes les vannes sont à boisseau sphérique à passage intégral de même section que la canalisation. Des orifices de fuite calibrés sont percés dans des bouchons filetés que l'on vient visser à l'extrémité de la canalisation.

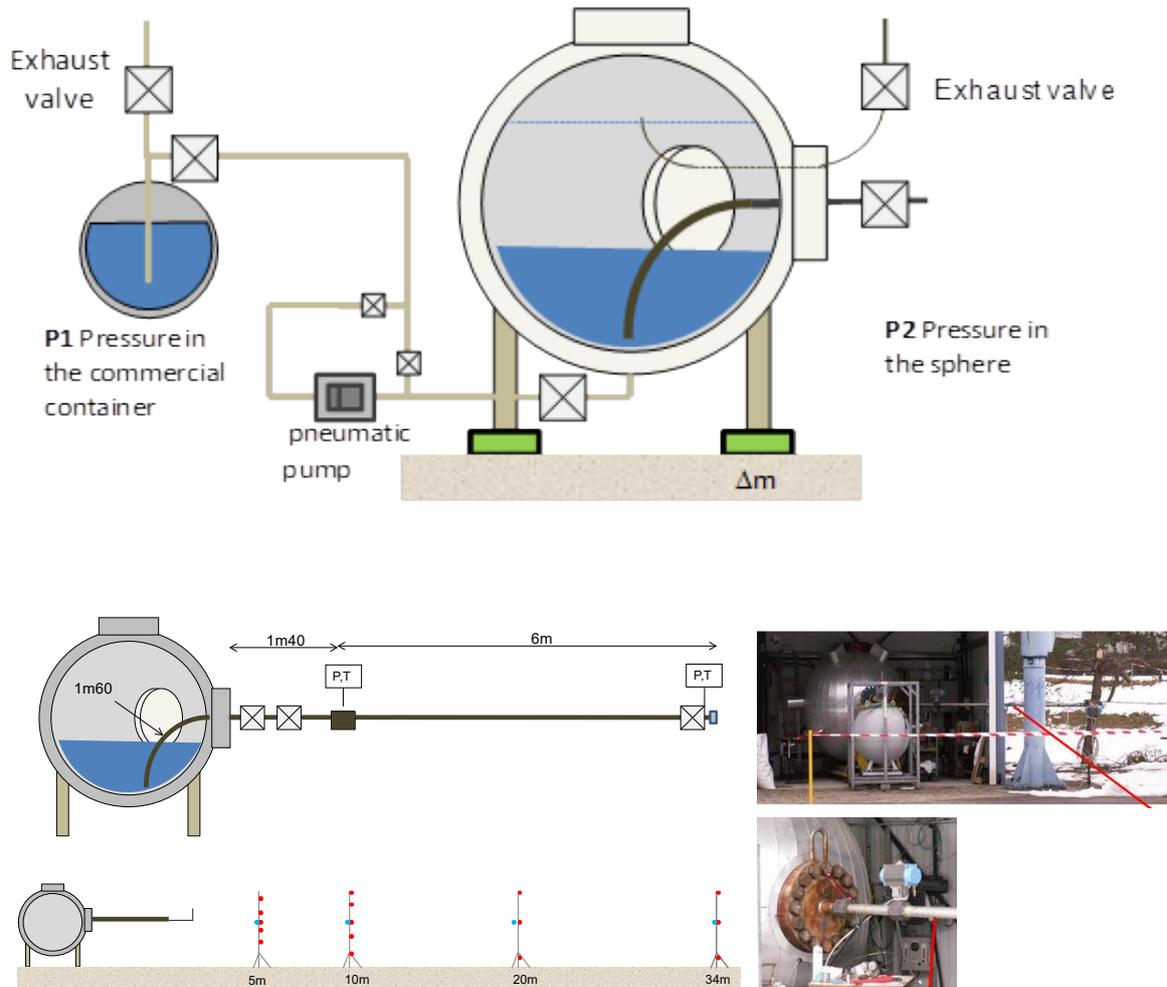


Figure 7 : Dispositif expérimental utilisé pour caractériser un rejet continu de CO₂ dense

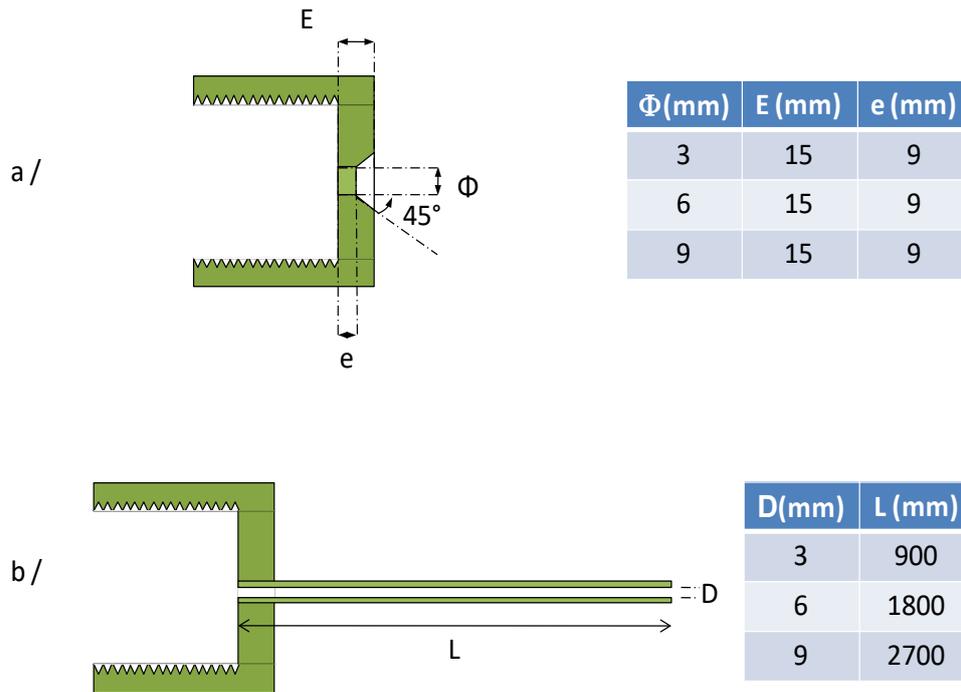


Figure 8 : Dimensions des orifices de fuite. a : ras de paroi – b : tube de laminage

Pour certains essais, des tubes ont été fixés pour prolonger les orifices de façon à représenter une rupture de canalisation. Leur longueur a été calculée de façon à obtenir un coefficient L/D constant égal à 300 (Figure 8).

La cuve est montée sur pesons, ce qui permet de connaître sa masse à chaque instant et d'en déduire le débit massique de fuite. Cette technique de mesure très fiable permet par la même occasion de valider d'autres techniques de mesure de débit potentiellement utiles pour des essais à plus grande échelle. L'erreur d'estimation du débit massique est inférieure à 5% lorsque la variation de masse est supérieure à 50 kg. Pour les fuites massives (grands orifices), le débit massique diminue avec la pression dans le réservoir. Une erreur d'environ 10 % est obtenue sur le débit instantané (dérivée de la masse sur le temps) lorsque le signal brut est moyenné sur 10 points (représentant une durée de 1 s pour une cadence d'acquisition de données de 10Hz).

A température ambiante, le CO₂ est principalement liquide dans la sphère avec une pression de vapeur d'environ 5 MPa. Pour réaliser des essais avec une pression allant jusqu'à 12 MPa, de l'hélium est injecté dans la sphère pour la pressuriser. Comme l'hélium peut être dissous dans le CO₂ liquide, un contrôle de la concentration d'hélium dans le CO₂ dans la phase liquide avant et après chaque test est réalisé à l'aide d'un analyseur (chromatographe avec détecteur catharométrique d'Agilent) par prélèvement de la phase liquide dans la conduite. Nous avons observé qu'une forte stratification s'établit à l'intérieur du réservoir. Nous admettons donc qu'en dessous d'une valeur limite de 1% en masse, l'hélium dissous ne modifie pas les propriétés thermocinétiques du CO₂ liquide.

Pour connaître l'état thermodynamique dans la zone de détente du jet, en amont du début de la zone de mélange avec l'air, la température locale et la pression totale ont été mesurées entre 0 et 0,5 m de l'orifice. L'équipement est représenté sur la Figure 9. Quatre thermocouples sont alignés sur l'axe de l'écoulement et 3 autres sont installés hors axe. La pression totale est mesurée sur l'axe. Pour effectuer ces dernières mesures, deux capteurs de pression statique sont reliés à une canalisation orientée vers le flux entrant. Grâce à cette méthode, les capteurs sont protégés des conditions mécaniques et thermiques difficiles. Ce dispositif a été utilisé comme alternative pour estimer le débit massique.

Le panache extérieur est instrumenté à l'aide principalement de thermocouples et de quelques lignes de prélèvement d'oxygène (Figure 10). En effet, le dispositif expérimental a été modifié pour tenir compte des spécificités de chaque essai, généralement après réalisation de modélisations notamment par les différents partenaires des projets.

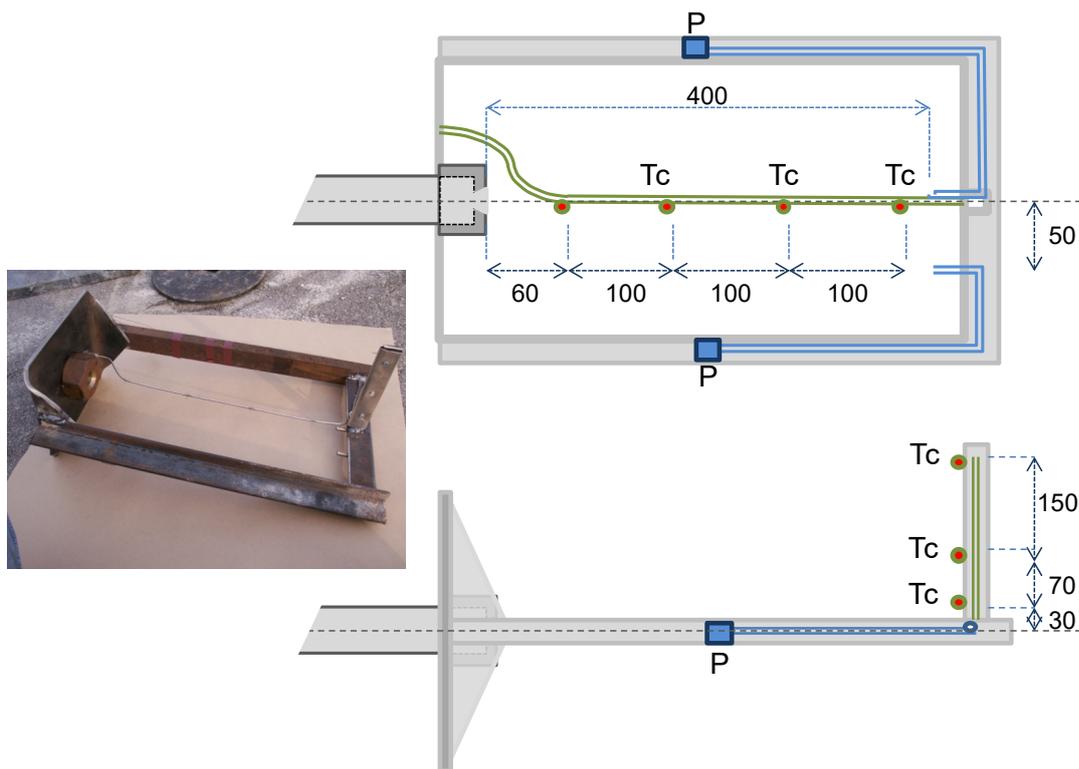


Figure 9 : Instrumentation spécifique mise en œuvre pour caractériser l'écoulement en champ proche

Les conditions environnementales (vitesse du vent, température et humidité) ont été contrôlées lors de chaque essai. Les essais ont été réalisés dans des conditions de vent quasiment nul, afin d'éviter des vents latéraux trop importants et que le panache puisse traverser le champ d'instrumentation disposé selon la direction du rejet.

Pour définir les caractéristiques du panache, il est nécessaire de connaître la répartition du CO_2 et aussi les différentes forces agissant sur le nuage notamment les effets dus aux variations de densité du mélange. Ainsi, la densité locale du mélange est déterminée en mesurant sa température. En admettant que le processus de mélange entre le CO_2 froid sortant de l'orifice et l'air ambiant "chaud" est adiabatique, alors toute différence de température (par rapport à l'ambiante) dans l'atmosphère entourant le point de fuite devrait être due à la présence de CO_2 . Si ce lien entre la concentration locale de CO_2 dans le mélange et la température peut être établi, alors l'estimation de la densité est possible en utilisant par exemple la loi des gaz parfaits. En pratique, mesurer la température est simple en utilisant des thermocouples suffisamment rapides et robustes. Ils sont faciles à tester et peuvent être utilisés en grand nombre si cela est nécessaire. Pour calibrer cette technique et avoir un double contrôle sur la mesure de concentration en CO_2 , quelques points de prélèvement ont été disposés le long de l'axe du panache. La concentration en CO_2 a été déduite de la mesure en continu de la teneur en oxygène dans le panache. Toute diminution de la teneur en oxygène ne pourrait résulter que d'une augmentation de la proportion du « diluant » (CO_2). Les équations et hypothèses utilisées sont détaillées dans le chapitre 4.

Un exemple de la répartition des différents capteurs est présenté sur la Figure 10.

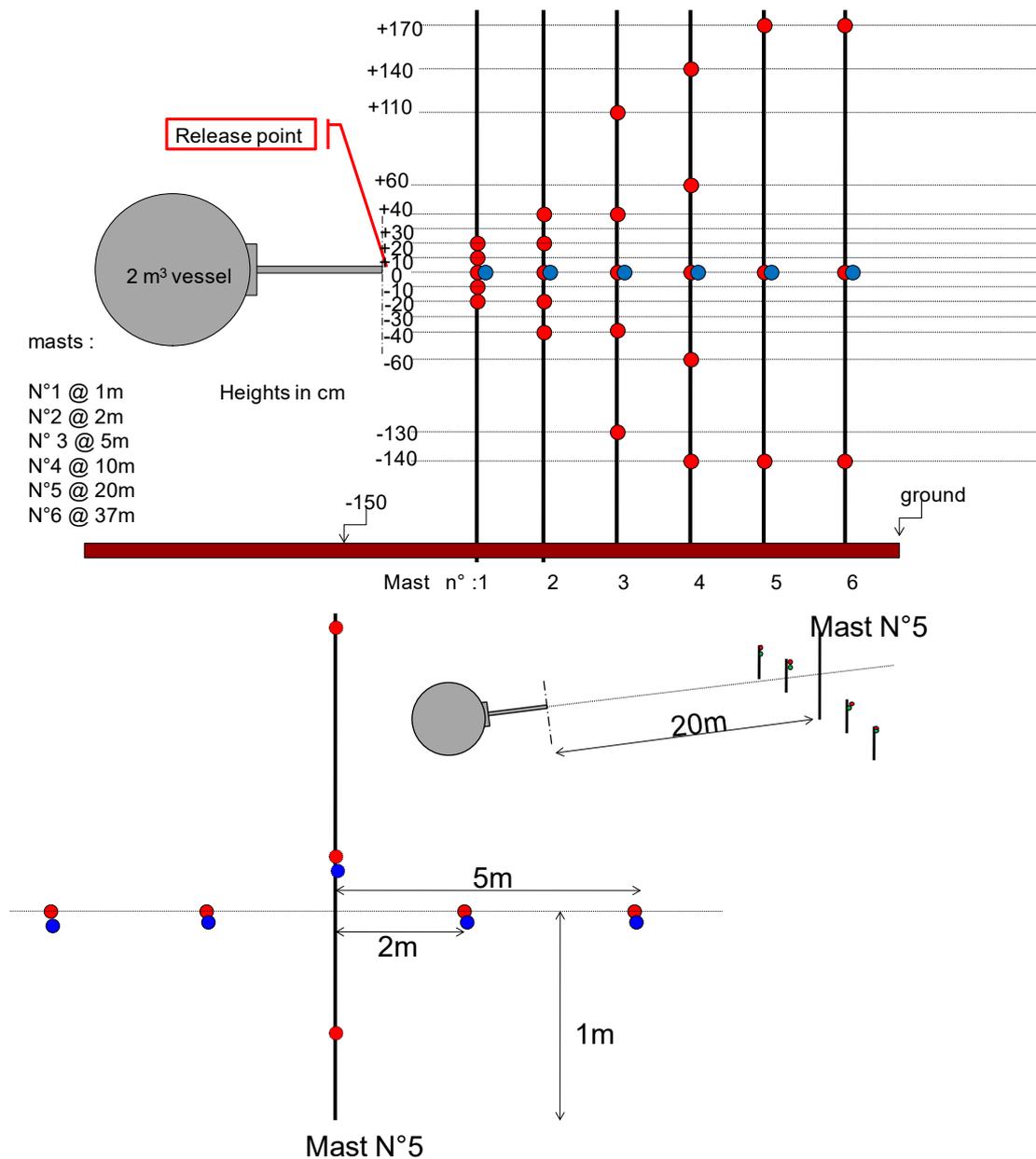


Figure 10 : Exemple de distribution des capteurs pour un rejet massif de CO₂ dense

Différentes conditions de rejet ont été étudiées, notamment en pression et température permettant d'avoir des résultats sur tout type de rejet, gazeux, diphasique, liquide et supercritiques. Plusieurs orientations ont également été testées : rejets horizontaux, rasant, à 45° et impactant le sol.

Les essais ont été réalisés principalement avec du CO₂ en phase dense, soit stocké à température ambiante (à la saturation), soit chauffé au-delà du point critique (34°C, 73,8 bar), soit comprimé avec de l'hélium injecté dans le ciel gazeux (jusqu'à environ 120 bar).

2.3 Caractérisation de l'écoulement dans le cas d'une décompression de canalisation de CO₂ dense

L'objectif de ce troisième banc d'essai [16] était de mieux appréhender le comportement du CO₂ dense, pur ou mélangé avec une impureté, dans le cas d'un rejet accidentel se manifestant par la vidange rapide d'une canalisation de transport.

Pour ce faire, l'Ineris a utilisé une canalisation de 50 mm de diamètre interne et d'environ 40 m de longueur (Figure 11). A mi-longueur, celle-ci était dotée d'une section transparente (Figure 12) pour pouvoir visualiser l'écoulement. Les essais visaient à simuler des scénarios de fuite ou de rupture franche de canalisation par l'emploi, en bout de ligne, d'un orifice calibré de diamètre 6 ou 12 mm (Figure 13) ou d'un dispositif pyrotechnique d'ouverture rapide (Figure 14).



Figure 11 : Banc d'essai canalisation de transport en 2009 (haut) et 2021 (bas)

La canalisation est équipée de plusieurs thermocouples et capteurs de pression placés à intervalles réguliers (Figure 15). La canalisation est placée sur des pesons à intervalles réguliers (Figure 12) afin de mesurer sa masse pendant la fuite et ainsi estimer le débit massique.

Une boucle de recirculation (Figure 12) a été mise en place afin de faciliter l'homogénéisation du fluide à l'intérieur. Ce procédé sera par ailleurs très utile lorsqu'il sera nécessaire d'injecter des impuretés dans le CO₂ et d'atteindre un mélange homogène.

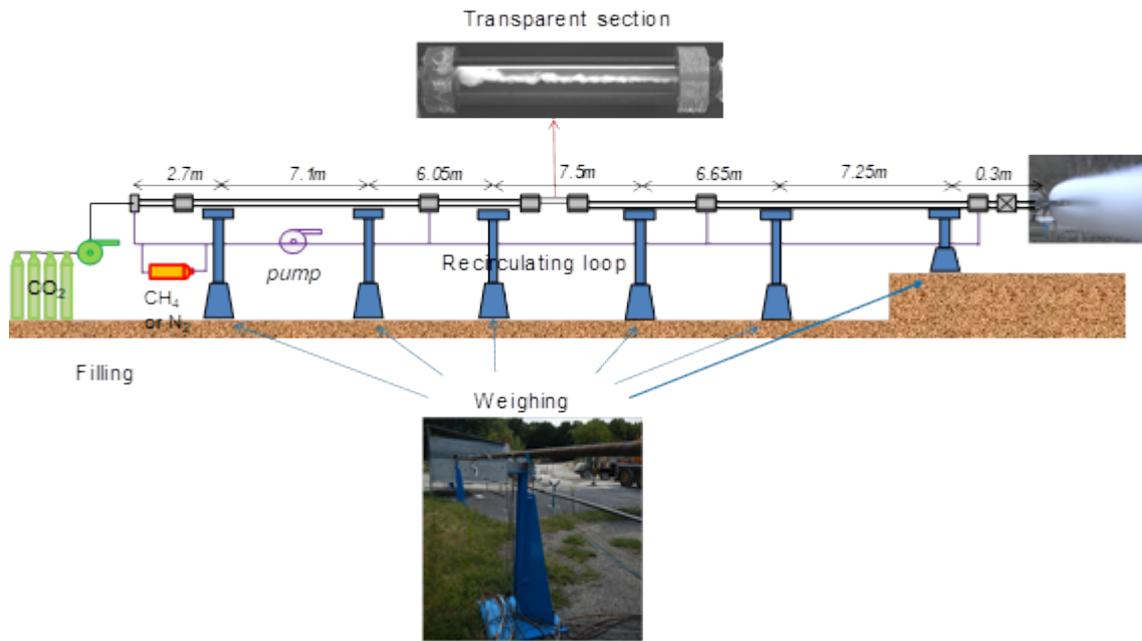


Figure 12 : Divers équipements de la canalisation : tronçon transparent placé au centre, sept mâts équipés de pesons (mesure de la masse), système de recirculation

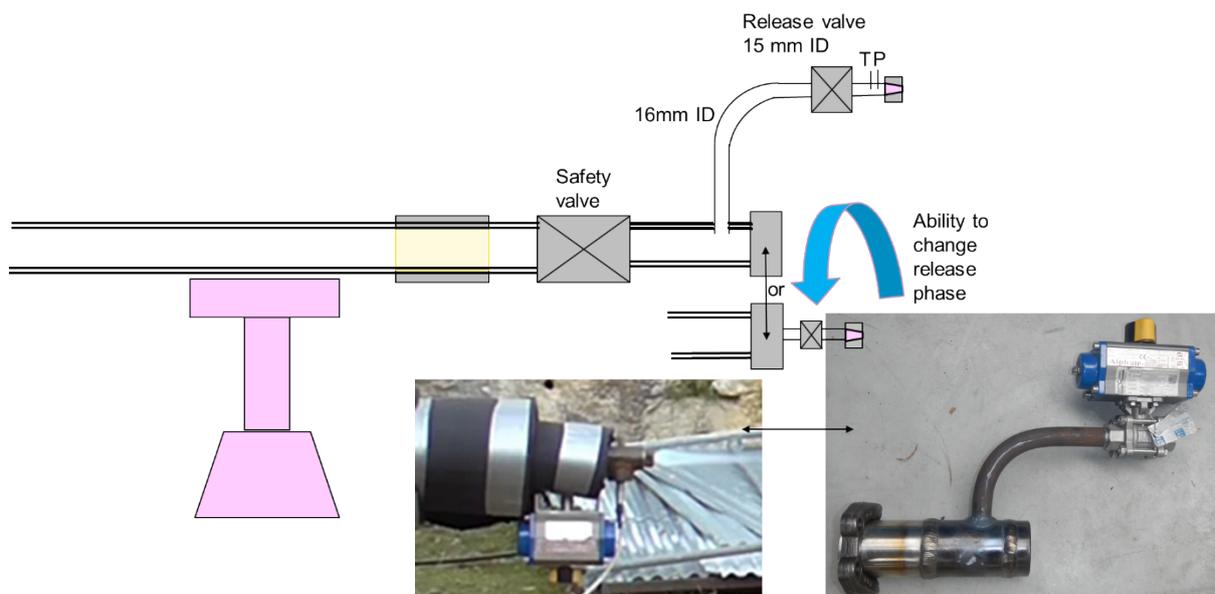


Figure 13 : Plusieurs dispositifs de rejet instrumentés permettant de choisir la phase de rejet, le diamètre, l'orientation

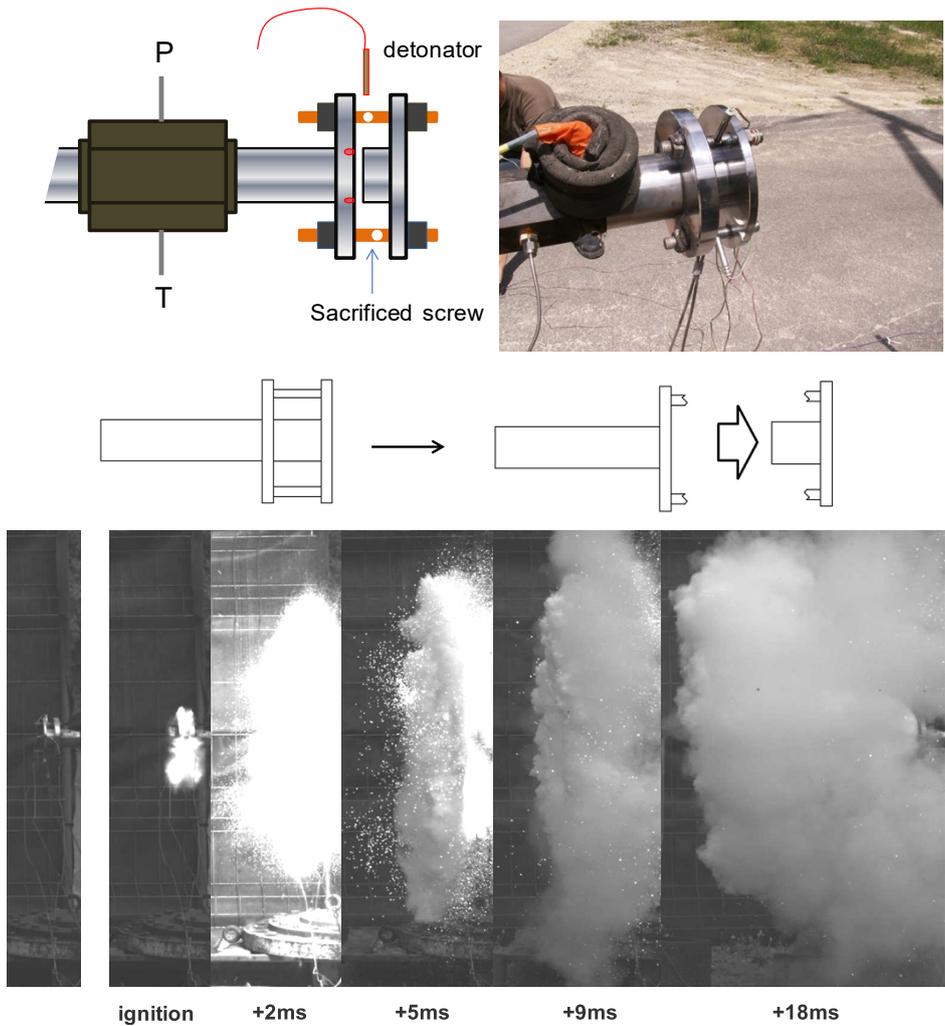


Figure 14 : Fonctionnement du système pyrotechnique de déclenchement de rupture franche de canalisation

Les essais ont été réalisés principalement avec du CO₂ en phase dense, soit stocké à température ambiante (à la saturation), soit chauffé au-delà du point critique (34°C, 70 bar), soit comprimé avec de l'hélium injecté dans le ciel gazeux (jusqu'à 120 bar).

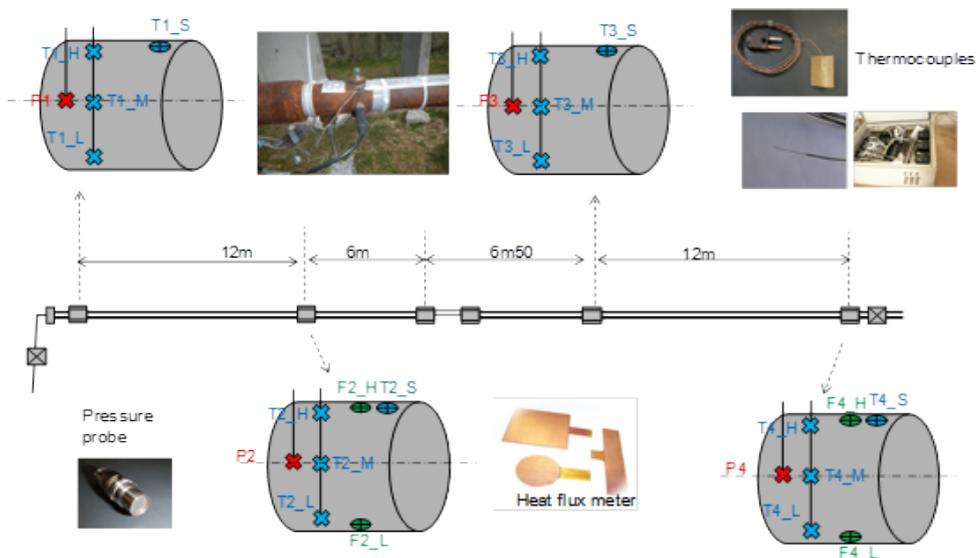


Figure 15 : Instrumentation interne de la canalisation à intervalles réguliers (pression, températures, flux thermiques...)

Pour caractériser l'écoulement dans la zone d'expansion (c'est-à-dire à l'extérieur de la canalisation, en zone très proche de la brèche), un système métrologique spécifique a été mis en place afin de mesurer pression et température dans la zone d'expansion en sortie d'orifice.

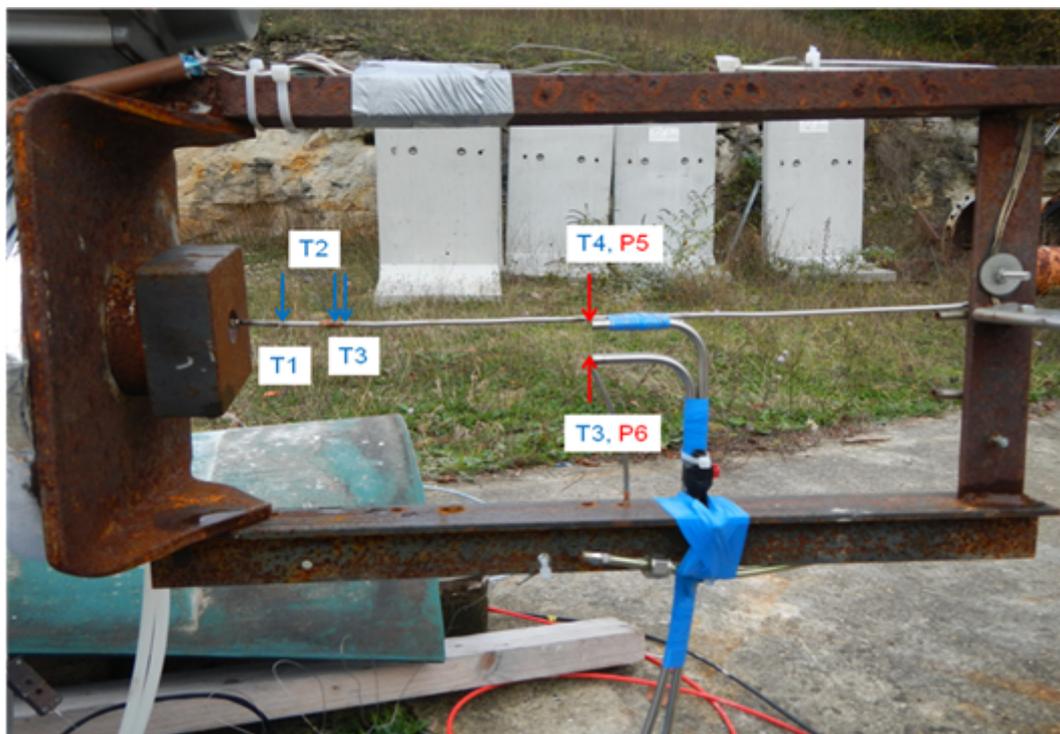


Figure 16 : Equipement de mesure de température et de pression dans le champ proche

3. Termes sources

3.1 Evaluation du débit pour des rejets continus

La vidange de la sphère de 2 m³ à travers un orifice simple a permis de cartographier le débit en fonction de la pression pour différentes conditions de stockage et de diamètre de fuite. On constate des variations pratiquement linéaires, avec cependant quelques essais dont la valeur de débit est un peu supérieure à la tendance moyenne. C'est le cas des essais pour lesquels le point de rejet est positionné au niveau du sol (tirs rasants et à 45°). Les variations de température au gré des remplissages successifs et le niveau de remplissage de la sphère peuvent exercer une influence significative.

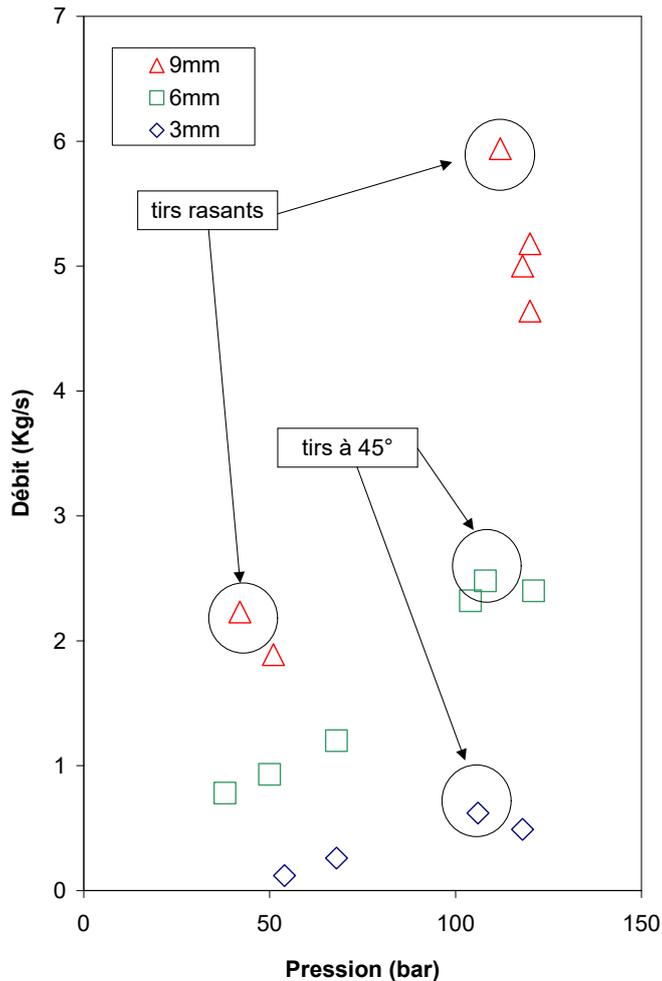


Figure 17 : Débit en fonction de la pression (pris en début de rejet) dans la sphère pour trois diamètres de fuite (sans tube de laminage)

Sur la Figure 18, les débits initiaux expérimentaux sont comparés à un calcul de débit liquide à pression initiale et en considérant des hypothèses sur les pertes de charges suivantes [17] :

- Coefficient de contraction : $C_d = 0,6$ (orifices) ;
- Rugosité de la canalisation : $\lambda = 0,015$ mm (correspondant à la rugosité d'un tube en acier neuf) ;
- Coefficient de perte de charge singulière liée au passage de la canalisation de 50mm de diamètre à la canalisation de rejet : $K=1$.

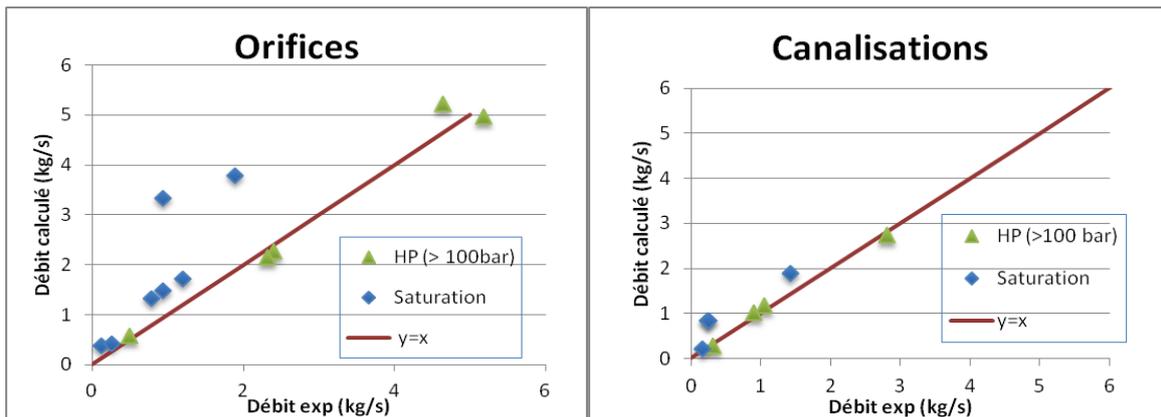


Figure 18 : Comparaison des débits expérimentaux avec le calcul (gauche : orifices, droite : canalisations) pour les rejets à saturation (bleu) et les rejets à haute pression (HP, en vert)

Pour les écoulements à travers un orifice, et lorsque la pression dans la sphère est supérieure à 100 bar (haute pression : HP), le débit calculé est cohérent avec le débit expérimental. L'écoulement peut donc être considéré liquide. De plus, l'hypothèse selon laquelle l'orifice est petit devant la canalisation de 50 mm de diamètre s'avère valide, c'est-à-dire que les pertes de charges liées aux équipements situés en amont de l'orifice n'ont pas d'influence sur l'écoulement. Ces résultats sont à nuancer au regard des incertitudes liées au calcul des pertes de charge.

Dans le cas de l'écoulement en canalisation, les mêmes conclusions semblent s'appliquer à haute pression.

En revanche, lorsque les conditions dans la sphère sont proches des conditions de saturation, le modèle de calcul de débit liquide surestime le débit pour les deux configurations orifice et canalisation. Pour les rejets à travers des orifices de 9 mm, la surestimation va jusqu'à un facteur 2. Une vaporisation d'une partie de l'écoulement à l'orifice peut expliquer cette différence.

NB : la pression mesurée dans la sphère ne correspond pas toujours à la pression de saturation calculée à partir de la température mesurée dans la sphère. L'écart peut aller jusqu'à 15% dans certains cas. Cette différence peut s'expliquer notamment par l'inertie du système qui, par une stratification thermique dans la sphère, engendre une erreur sur la mesure de température qui ne correspond plus aux conditions d'équilibre dans le ciel gazeux.

Le calcul n'a pas été fait pour les autres configurations (rejets impactant, rasant et à 45°), non seulement car les pertes de charges sont beaucoup plus difficiles à calculer en raison des géométries complexes (coudes, restrictions...) mais aussi car l'incertitude sur les débits mesurés avec la masse de la sphère est plus grande (par effet levier, ou parce qu'un élément de la canalisation repose au sol).

Les deux graphes suivants montrent l'évolution des débits en fonction du diamètre de l'orifice pour des diamètres de fuites allant jusqu'à la pleine section (50mm de diamètre). La courbe rouge correspond au carré du diamètre sur la Figure 19. Les tendances observées sont les mêmes que précédemment. Pour une section de passage de canalisation, de très importantes pertes de charge et une vaporisation massive dans la canalisation ont été observées.

Les essais sur les diamètres intermédiaires de 12 et 25 mm ont été réalisés à haute pression en comprimant le ciel gazeux à l'aide d'azote ou d'hélium jusqu'à une pression supérieure à la pression de saturation. Si la pression initiale est suffisante pour compenser les pertes de charges et le réchauffement au passage dans le dispositif de rejet, le débit de fuite reste purement liquide.

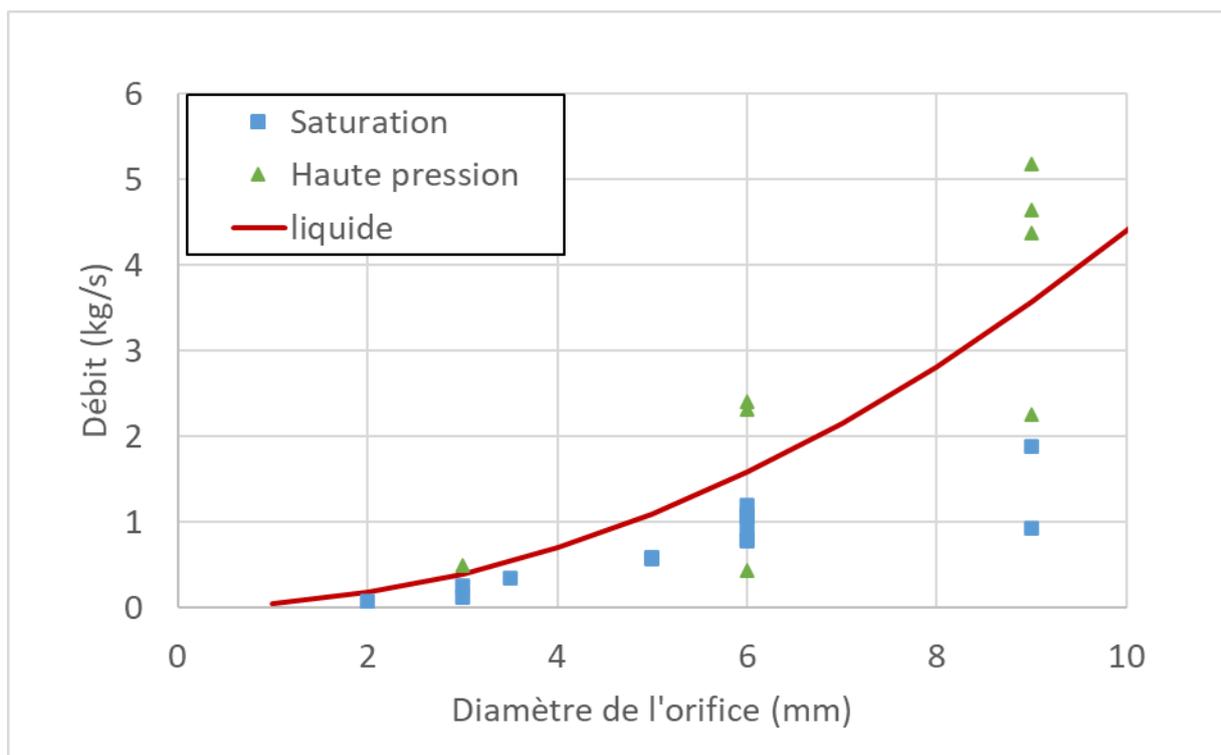
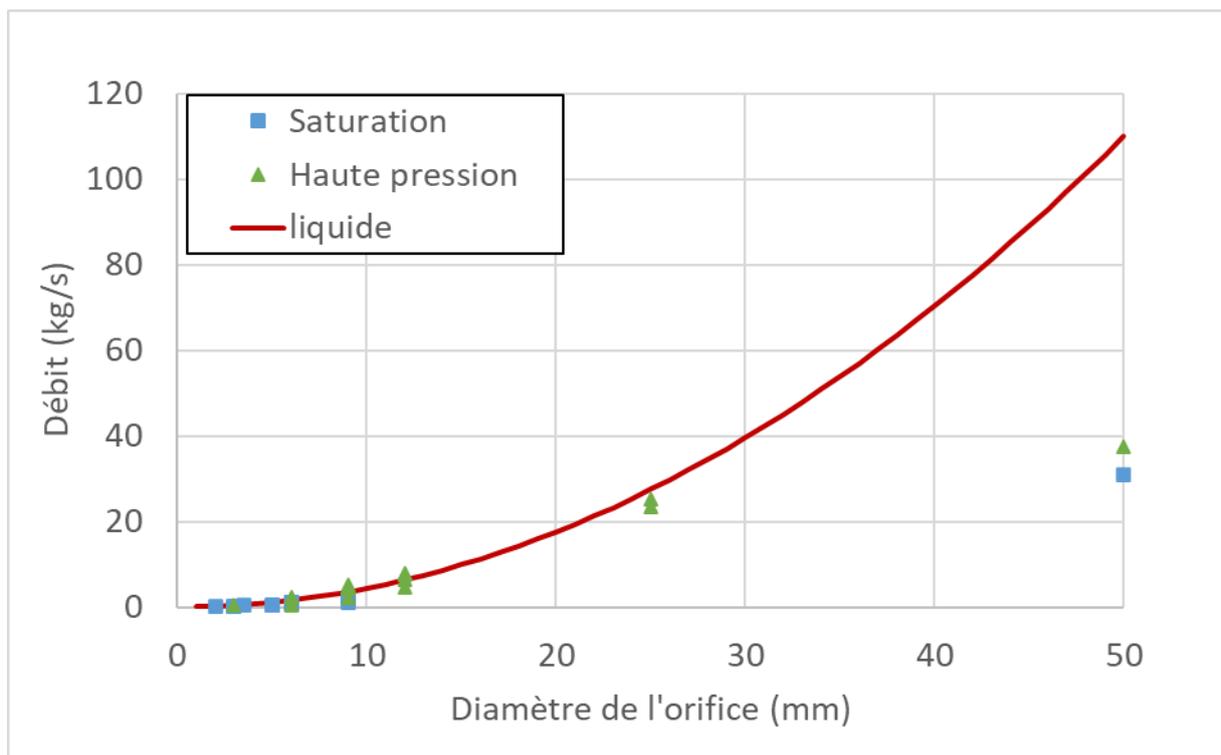


Figure 19 : Estimation du débit en fonction du diamètre de l'orifice pour du CO₂ stocké à la saturation à température ambiante ou comprimé à haute pression (haut : tout diamètre, bas : focus sur les petits diamètres < 10 mm)

3.2 Décompression de canalisation en phase dense

Des essais de rupture franche de canalisation ont été effectués à moyenne échelle grâce à la canalisation de 40 m décrite dans le paragraphe 2.3 et grâce au dispositif expérimental basé à l'université de Dalian en Chine (DUT) [18]. Ce dispositif est composé d'un tronçon de canalisation de 257 m et de diamètre interne de 233 mm muni d'un dispositif permettant de simuler une rupture guillotine et instrumenté en capteurs de pression et de température tel que décrit dans la figure suivante.

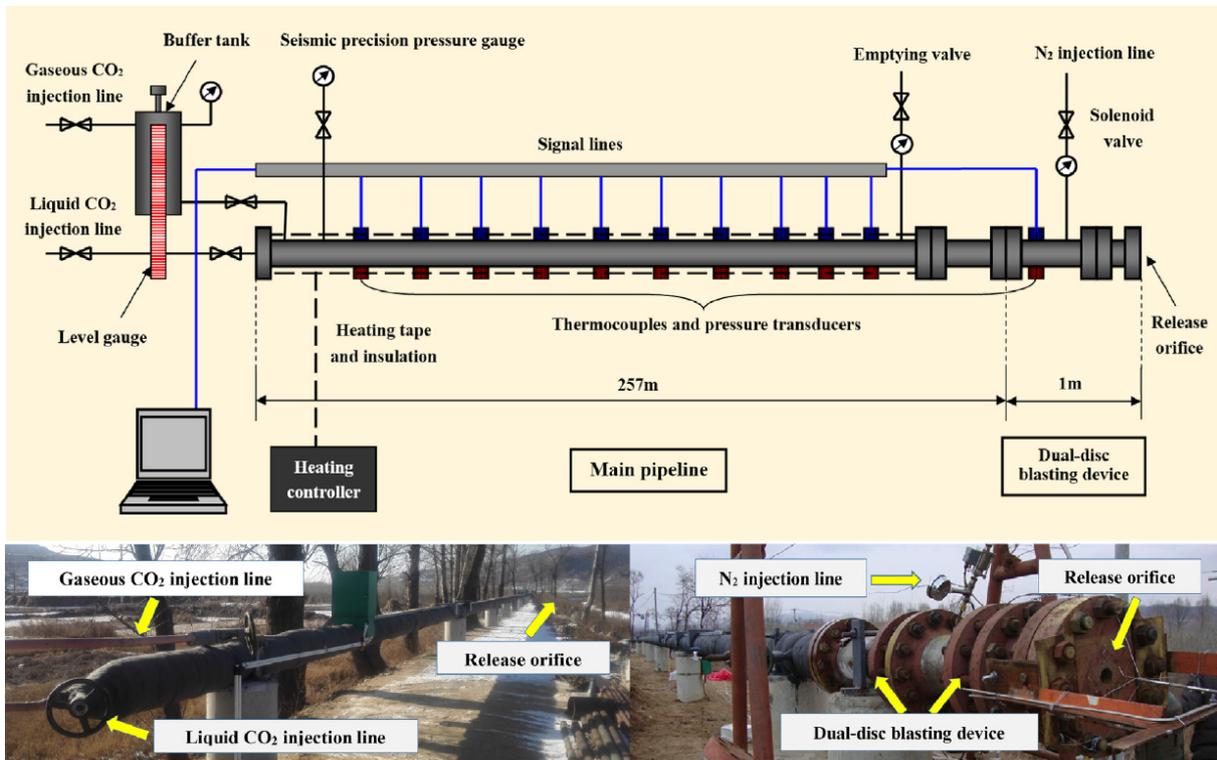


Figure 20 : Descriptif de la canalisation de 257 m installée au DUT [18]

Lors de la décompression rapide de la canalisation de l'Ineris, un mélange se forme et on observe une certaine homogénéité du mélange liquide /vapeur pendant toute la vidange. L'utilisation d'une hypothèse de mélange homogène semble pleinement justifiée.

L'observation de l'évolution de la pression en fonction du temps sur les deux figures suivantes permet de suivre l'onde de pression qui se propage de l'ouverture vers l'extrémité fermée à une vitesse d'environ 320 m/s. On remarque également que la pression dans la canalisation n'est pas homogène dans la phase de décompression.

On remarque une chute de pression rapide en 2 à 6 secondes en fonction du point de mesure.

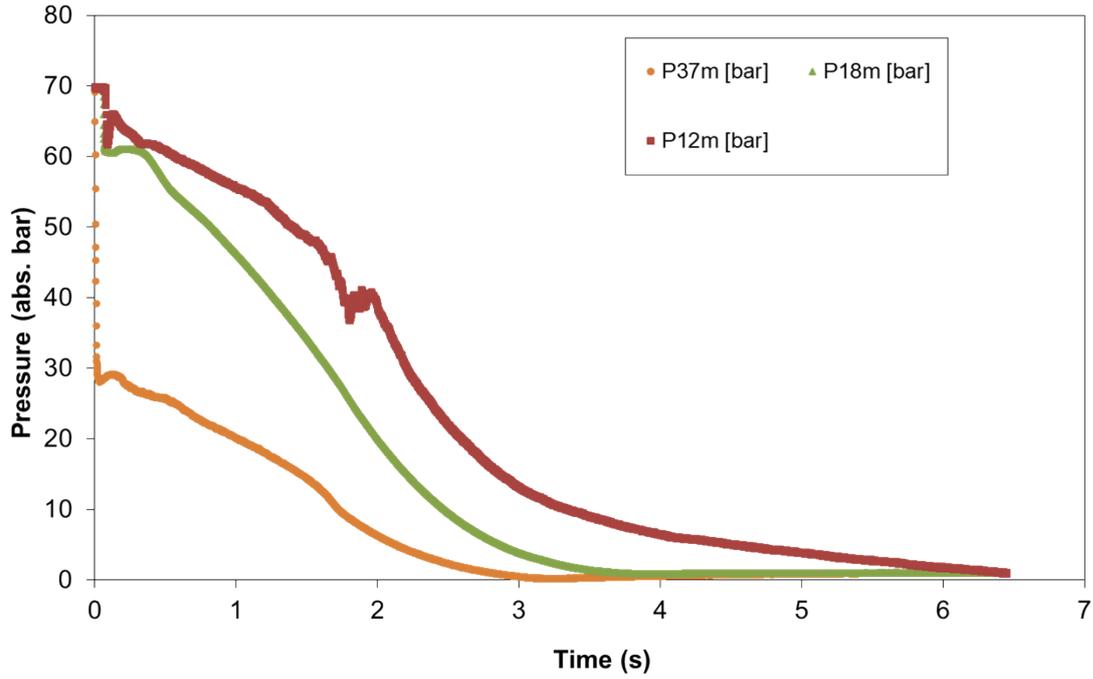


Figure 21 : Evolution de la pression lors de la vidange de la canalisation de 40 m

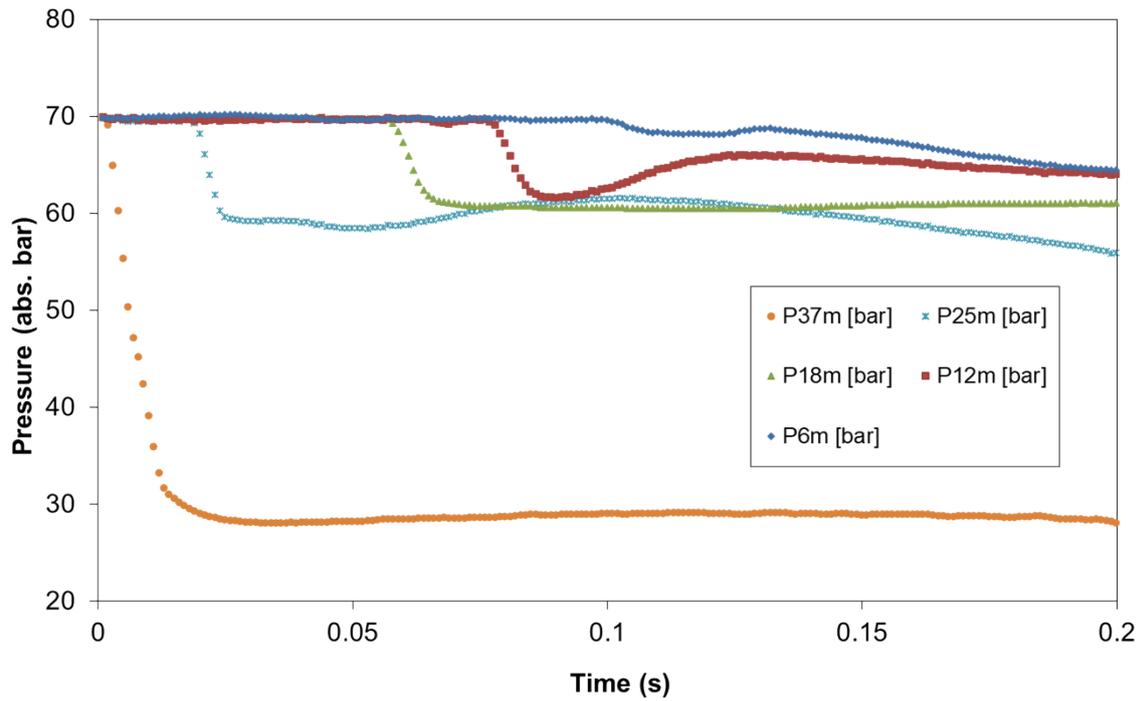
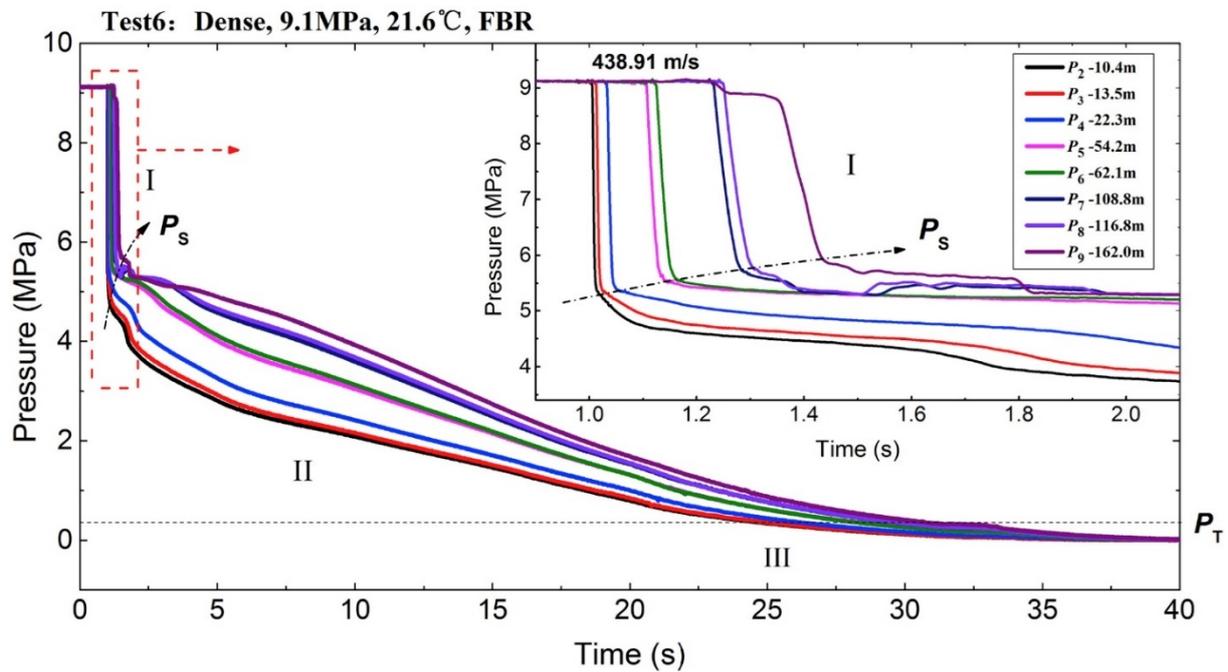


Figure 22 : Evolution de la pression lors de la vidange de la canalisation de 40 m : zoom sur les premiers instants

Dans le cas du tronçon plus long du DUT, des vitesses plus importantes sont déduites des signaux de pression présentés sur la figure suivante (autour de 440 m/s). On notera une pression initiale plus importante de 91 bar. Le temps de décompression est ici d'environ 25 s.



(c) Test6-FBR

Figure 23 : Evolution de la pression lors de la vidange de la canalisation de 257 m

3.3 Hypothèses de modélisations du terme source d'un rejet de CO₂

Pour modéliser un terme source lié à un rejet de CO₂ en phase dense, deux situations sont à distinguer : une fuite continue (généralement une petite fuite sur un stockage volumineux), et une vidange rapide d'un réservoir comme une canalisation de transport par exemple. Les modèles utilisés seront très différents. Dans le cas du rejet continu, la modélisation est une étape relativement simple, l'hypothèse de rejet liquide restant majorante et permettant une estimation prudente dans le cas où la fuite se situe sur la phase liquide (ou si sa localisation est inconnue).

Dans le cas d'une décompression de canalisation, il est généralement nécessaire d'évaluer l'évolution de la pression en fonction du temps et de simplifier le terme source pour se ramener à un rejet continu (ou plusieurs rejets continus successifs) afin de faciliter la modélisation de la dispersion.

Une comparaison de la décompression obtenue à l'aide du modèle Longpipe de Phast (version 8.7) qui est basé sur une hypothèse de mélange liquide/vapeur homogène, permet de se rendre compte des écarts entre la modélisation et les essais pour les deux cas expérimentaux exposés ci-avant :

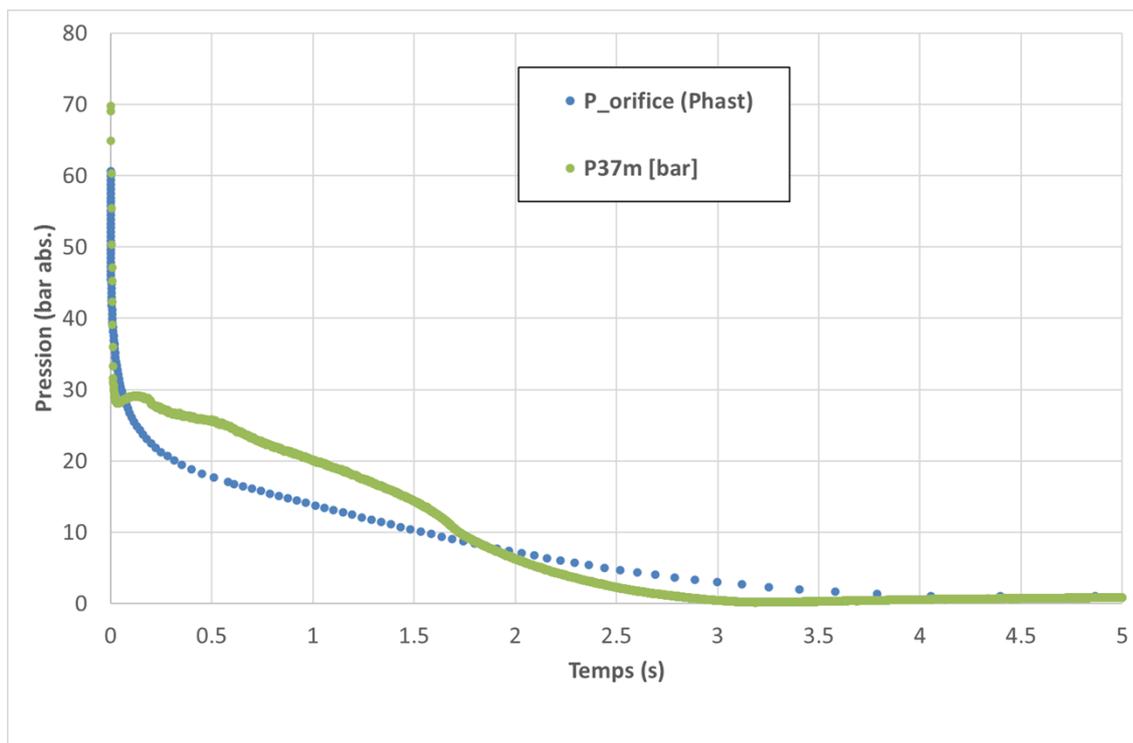


Figure 24 : Comparaison des évolutions de pression mesurées et calculées avec Phast pour une canalisation de 37 m

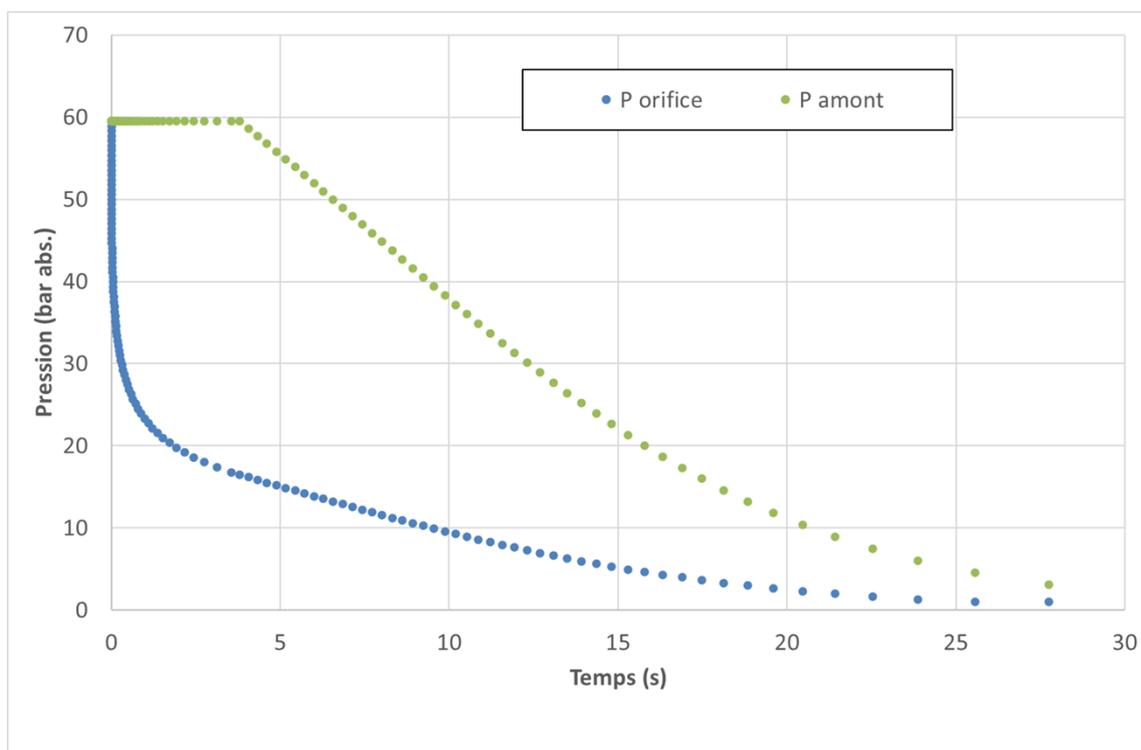


Figure 25 : Evolution de la pression modélisée avec Phast pour une canalisation de 257 m

Dans les deux cas, le modèle a tendance à surestimer la perte de pression initiale, et ceci est d'autant plus vrai que la canalisation est longue (on pourra comparer les courbes de la Figure 23 et de la Figure 25). Les temps de décompression calculés sont néanmoins du bon ordre de grandeur. Le débit estimé sera donc majorant.

4. Champ proche et formation de glace carbonique

4.1 Analyse du champ proche

L'analyse du comportement du rejet en champ proche s'appuie dans un premier temps sur un essai relativement massif et donc transitoire : la pression dans la sphère de 2 m³ était de 77 bar, la canalisation avait une longueur de 9 m et le diamètre de l'orifice de sortie était de 25 mm.

La Figure 26 montre des images de la zone d'expansion du rejet de CO₂ dense et l'évolution des pressions mesurées dans cette zone à l'aide du système métrologique décrit précédemment dans le paragraphe 2.2, Figure 16 :

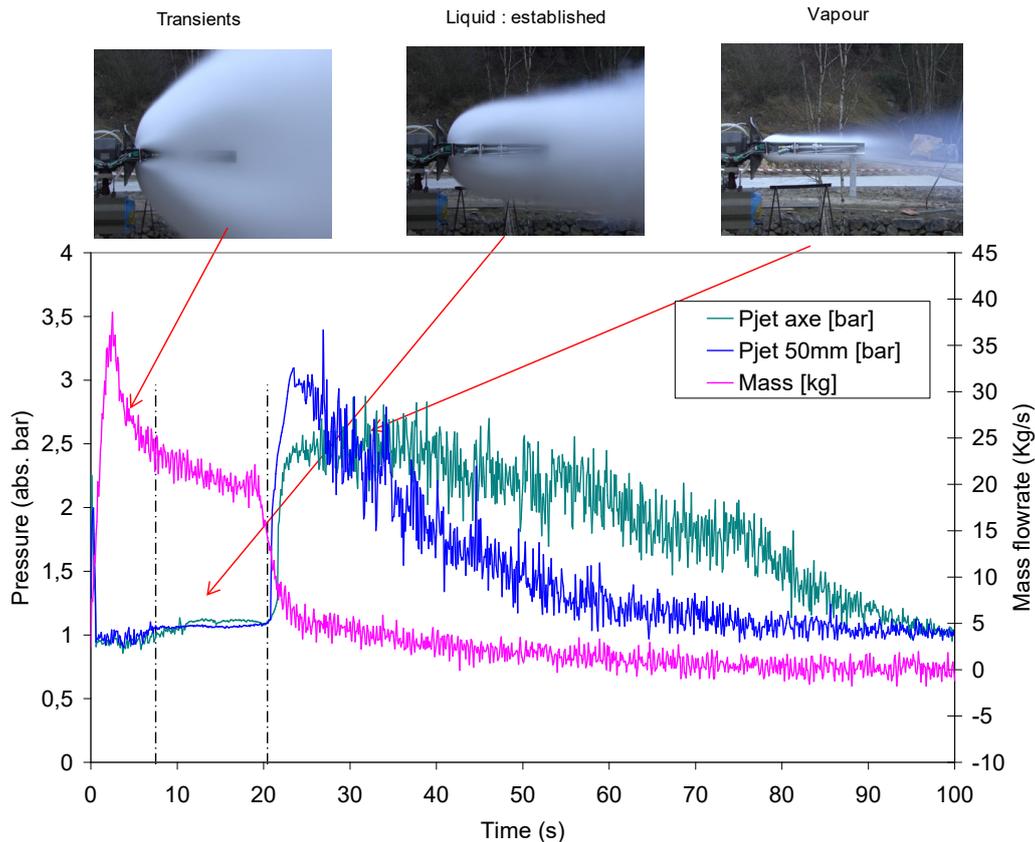


Figure 26 : Visualisation de la zone d'expansion et évolution des paramètres mesurés dans cette zone (test 12 de [15])

Il est observé :

- D'abord une phase transitoire. Celle-ci dure environ 10 s et est caractérisée par un débit variant rapidement et un jet fortement évasé et battant. Le fait que la pression totale mesurée dans la zone d'expansion soit faible est plutôt cohérent avec la forme du jet.
- Puis une phase stabilisée de rejet liquide. La pression totale est alors inférieure à 100 mbar ce qui suggère que l'écoulement est animé d'une vitesse relativement faible d'environ 50 m/s
- Lorsque l'extrémité de la canalisation n'est plus immergée dans la phase liquide de la sphère, le rejet devient alors purement gazeux, la section du jet se réduit drastiquement et la pression totale augmente de façon importante jusqu'à quelques bars. La vitesse de l'écoulement se rapproche alors de la vitesse du son, soit 380 m/s.

La Figure 27 montre les évolutions de température dans le champ proche. Ces mesures ont été effectuées dans l'axe du jet, et plus précisément à 60 mm, 160 mm, 260 mm, 360 mm, 1 m, 5 m, 20 m et 34 m de l'orifice. Dès le début du rejet, c'est-à-dire pendant la phase transitoire identifiée précédemment, les températures mesurées au début de la zone d'expansion peuvent chuter jusqu'à -100°C. Une valeur aussi faible suscite des interrogations puisque le point de sublimation du CO₂ est de -78,5°C (cf. Figure 2). On note également que l'intérieur de la sphère, zone où l'écoulement se fait à faible vitesse, peut aussi se refroidir jusqu'à -100°C. Une explication possible est que le CO₂ gazeux ne se refroidit pas en suivant la courbe de sublimation mais est sous-refroidi. On s'attend dans tous les cas à la formation de glace carbonique. Selon la Figure 27, cette formation est susceptible de durer pendant les deux premières phases de rejet (c'est-à-dire pendant les 20 premières secondes pour le test présenté ici) et jusqu'à une distance inférieure à 1 m de l'orifice (au-delà, la température est a priori trop élevée).

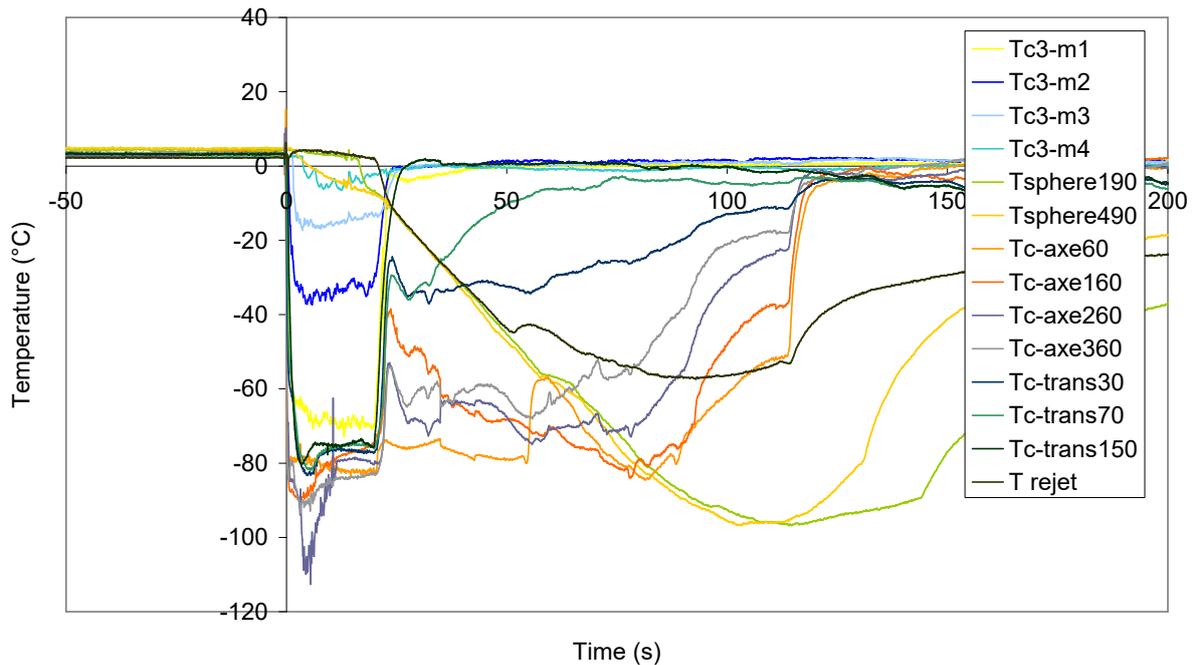


Figure 27 : Distribution de température dans le champ proche (essai 25 mm 77 bar, légèrement comprimé au-dessus de la pression de saturation)

A 0,36 m de l'orifice, les images de jet sur la Figure 26 montrent que les lignes de courant sont relativement parallèles lorsque le rejet est stabilisé. Cela signifie que la pression statique y est proche de la pression atmosphérique (en application des équations d'Euler). La pression totale mesurée à l'aide du dispositif métrologique correspond donc à une pression dynamique. Connaissant cette pression dynamique P_{dyn} [Pa], le débit rejeté Q [kg/s] et la section apparente du jet A_{jet} [m²/s] (mesuré visuellement à l'aide de la vidéo), il est alors possible d'estimer la densité moyenne ρ_{moy} [kg/m³] et la vitesse moyenne U_{moy} [m/s] à l'aide des relations suivantes :

$$\rho_{moy} = \frac{Q^2}{2 \times P_{dyn} \times A_{jet}^2} \quad \text{Equation 1}$$

$$U_{moy} = \frac{2 \times P_{dyn} \times A_{jet}}{Q} \quad \text{Equation 2}$$

Les résultats sont présentés dans le Tableau 3. Bien que ces résultats constituent des approximations, on constate que la densité moyenne (ρ_{moy}) est significativement supérieure à la densité du CO₂ purement gazeux (ρ_{vap}) calculée à la température de - 80°C et à la pression atmosphérique. Cela tend donc à confirmer la présence de glace carbonique dans la zone proche de la brèche.

P _{dyn}	Température à 360 mm	P _{sphère}	U _{orifice}	ρ_{vap}	\varnothing_{jet}	Q	ρ_{moy}	U _{moy}
[Pa]	[°C]	[Pa]	[m/s]	[kg/m ³]	[mm]	[kg/s]	[kg/m ³]	[m/s]
6000	- 80	61	110	2,8	350	23,4	4,9	49

Tableau 3. Paramètres dans le champ proche

NB : Nous pouvons par ailleurs constater qu'aucun dépôt de CO₂ sous forme solide n'a été observé, même dans le cas de l'essai pour lequel des obstacles ont été ajoutés autour du rejet.

4.2 Mesures de concentration dans la zone d'entraînement

On peut essayer de quantifier plus finement cette quantité de glace carbonique formée dans la zone d'expansion en tirant profit des mesures de concentration et de température effectuées plus loin en aval. Dans cette zone, dite d'entraînement, si l'on fait l'hypothèse que le mélange CO₂ – air ambiant est adiabatique, la concentration obtenue en un point est reliée localement à la température mesurée par un bilan d'énergie telle que :

$$C \approx \frac{C_{p,air}(T_{amb} - T_m) + y_{H_2O} [C_{p,H_2O}(T_{amb} - T_m) + L_{H_2O}]}{[C_{p,CO_2}(T_m - T_{CO_2}) + y_{CO_2} L_{CO_2}] + C_{p,air}(T_{amb} - T_m) + y_{H_2O} [C_{p,H_2O}(T_{amb} - T_m) + L_{H_2O}]} \quad \text{Equation 3}$$

Avec :

C [ppm] : concentration calculée,

C_{p,air} : chaleur spécifique de l'air ambiant (= 1040 J/kg.K),

C_{p,H₂O} : chaleur spécifique de l'eau (= 4160 J/kg.K),

L_{H₂O} : chaleur latente de liquéfaction de l'eau (= 2500 kJ/kg),

L_{CO₂} [J/kg] : chaleur latente de condensation du CO₂ (= 570 kJ/kg),

T_{amb} [K] : température de l'atmosphère ambiante,

T_{CO₂} [K] : température du CO₂ à la fin de l'expansion,

T_m [K] : Température mesurée localement,

y_{H₂O} [m/m] : fraction massique de l'humidité de l'air

y_{CO₂} [m/m] : fraction massique de glace carbonique à la fin de l'expansion

La quantité d'énergie échangée par unité de temps entre le CO₂ et l'air entraîné se calcule à une position donnée dans la zone d'entraînement du jet comme suit :

$$P_{air} = \dot{m}_{CO_2} \times C_{p,CO_2} \times (T_m - T_{CO_2}) + \dot{m}_{CO_2} \times y_{CO_2} \times L_{CO_2} \quad \text{Equation 4}$$

La quantité d'énergie échangée par convection entre le CO₂ et le sol est donnée par :

$$P_{sol} = h \times x \times \varphi \times \frac{T_m - T_{CO2}}{2} \quad \text{Equation 5}$$

Et la quantité d'énergie échangée par rayonnement (en supposant un coefficient d'émissivité de 1) par :

$$P_{ray} = \sigma \times \varphi^2 \times x \times \left(T_m^4 - \left(\frac{T_m + T_{CO2}}{2} \right)^4 \right) \quad \text{Equation 6}$$

Avec :

h : coefficient d'échange thermique entre le nuage et le sol, typiquement de l'ordre de 1 W/m².K.

∅ [m] : diamètre du nuage à la distance x de l'orifice

σ : constante de Stefan-Boltzmann (= 5,67×10⁻⁸ J/m².s.K⁴)

Pour un gaz pur, P_{air} est de l'ordre de du gigawatt quand P_{sol} et P_{ray} sont plutôt de l'ordre quelques kilowatts. Pour un gaz pur on peut en conclure que l'énergie échangée entre le CO₂ et l'air entraîné représente la majorité de l'énergie totale échangée avec le CO₂. L'hypothèse que le mélange CO₂ – air ambiant est adiabatique est donc solide et doit être confirmée en fonction du taux de solidification dans cette zone.

Si l'on considère les mesures de température dans le champ proche, on peut faire l'hypothèse que $T_{CO2} = -80^\circ\text{C}$ (cf. Figure 27). D'une manière générale, nous remarquons que d'un test à l'autre, ce paramètre évolue peu. L'approche consiste ensuite à faire varier la fraction massique de CO₂ solide y_{CO2} dans cette formule de telle sorte que la relation théorique prédise au mieux les concentrations et les températures obtenues à l'aide des capteurs O₂ et des thermocouples. En utilisant $y_{CO2} = 0,30$ dans l'équation 3, on obtient une corrélation entre la température et la concentration cohérente avec les mesures expérimentales présentées alors sur la figure suivante :

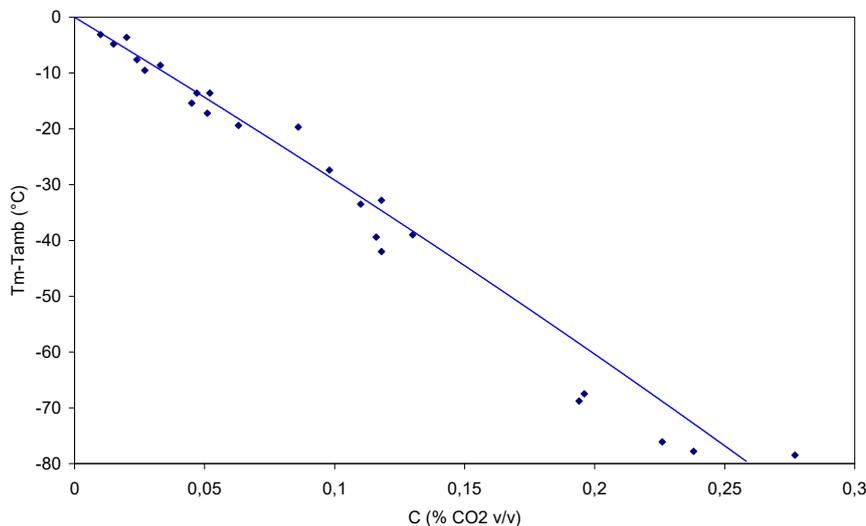


Figure 28 : Relation locale entre la température et la concentration (points = mesures expérimentales / courbe = Equation 3)

Il est maintenant intéressant de vérifier que cette valeur pour y_{CO2} reste pertinente pour d'autres tests dont les conditions d'expérimentation sont similaires. La Figure 29 compare la concentration prédite par l'Equation 3 (en utilisant $y_{CO2} = 0,30$) avec la concentration déduite des capteurs O₂ en différents points de la zone d'entraînement du rejet. On constate que les deux approches donnent des résultats relativement similaires.

Grâce à cette analyse, on conclut qu'environ 30% du CO_2 rejeté à l'orifice s'est solidifié dans la zone d'expansion. En se rappelant que cette zone d'expansion s'étend entre 0,36 et 1 m depuis l'orifice et que la vitesse de l'écoulement y est de 50 – 100 m/s, le « temps de gel » est donc de l'ordre de 10 ms. Ce temps est suffisamment faible pour que seuls de petites particules de CO_2 solide aient pu se former ce qui expliquerait alors pourquoi il n'a pas été observé de dépôt solide au sol durant les essais.

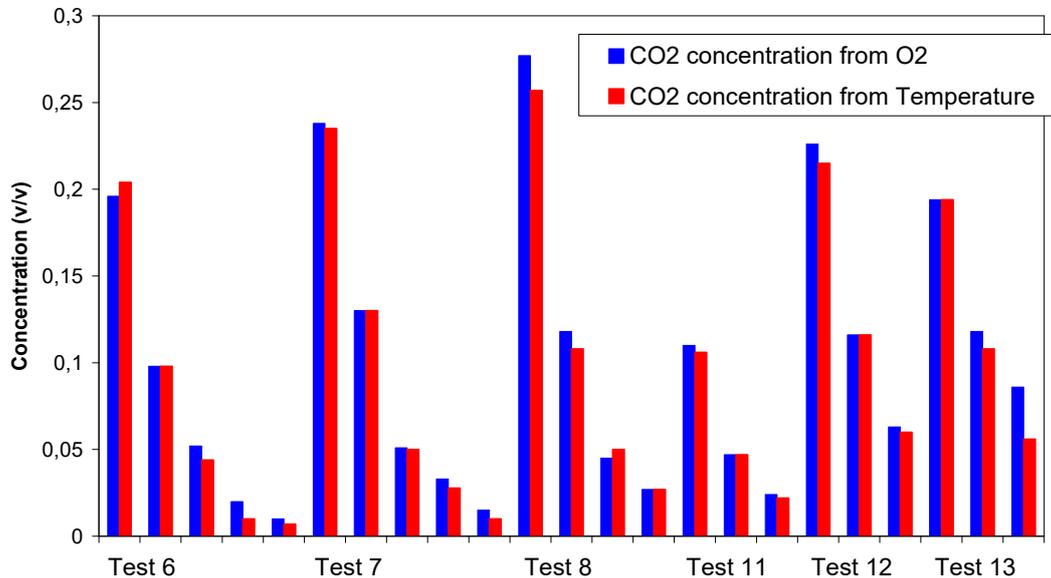


Figure 29 : Comparaison de la concentration déduite de l'Equation 3 (avec $y_{\text{CO}_2} = 0,3$) et celle mesurée à l'aide des capteurs O_2 pour quelques tests réalisés dans des conditions d'essais

Sachant désormais que 30% de la masse rejetée en CO_2 s'est solidifiée en fin de zone d'expansion, il est possible de faire l'application numérique de chacune des trois équations (4, 5 et 6). On en conclut alors que l'énergie échangée entre le CO_2 et l'air entraîné représente près de 95% de l'énergie totale échangée avec le CO_2 .

Le deuxième intérêt de cette analyse est de démontrer le lien entre concentration et température dans le nuage. En pratique, cela facilite grandement l'instrumentation des nuages, les thermocouples étant des capteurs plus faciles à manipuler et moins onéreux que les oxygéno-mètres ou les capteurs de CO_2 .

5. Dispersion d'un nuage de CO₂ (pur) en fonction des conditions de stockage de la fuite

5.1 Discussion générale

Dans le cas d'un rejet continu de CO₂ dense à l'atmosphère, nous avons pu noter qu'environ 30% du CO₂ rejeté peut se solidifier dans la zone d'expansion, conduisant à la formation d'un nuage froid. La dispersion se déroule donc comme celle d'un gaz lourd jusqu'à ce que le niveau de dilution soit suffisant pour que la dispersion du panache soit gouvernée par les seules caractéristiques de l'écoulement atmosphérique (dispersion passive). Lors des diverses campagnes expérimentales de dispersion atmosphérique de CO₂, des mesures de concentrations (directes ou à l'aide de mesures de température) ont permis de réaliser une cartographie des nuages pour en déduire des distances d'effets, en particulier aux seuils réglementaires SEI (5%vol.) et SEL (10%vol.)¹¹ pour un rejet horizontal proche du sol.

5.2 Rejets horizontaux : abaques

Les profils de concentrations en fonction de la hauteur du jet (z) qui sont présentés sur les deux figures suivantes ne nous permettent pas de conclure que le comportement de gaz est lourd pour les rejets 9 mm (débits de 2 à 4 kg/s) aux concentrations qui nous intéressent.

Dans le cas d'un rejet massif de quelques dizaines de kilogrammes par seconde, l'effet nuage lourd semble plus marqué. Visuellement, un nuage aussi massif semble s'attacher au sol (voir les images d'un nuage issu d'un rejet massif sur la Figure 31). On considère que le nuage est visible à partir d'une concentration de 0,5 à 1% (pour une condition de journée à 15°C pour 70% d'humidité, c'est-à-dire un point de rosée autour de 12°C), cette valeur étant variable en fonction du point de rosée et de la température ambiante (ou du taux d'humidité).

Les profils verticaux de concentration montrent une asymétrie par rapport à l'axe du jet (même si les données manquent près du sol).

¹¹ SEI = Seuil des Effets Irréversibles et SEL = Seuil des premiers Effets Létaux correspondant à des concentrations en CO₂ respectivement égales à 5% et 10 % v/v.

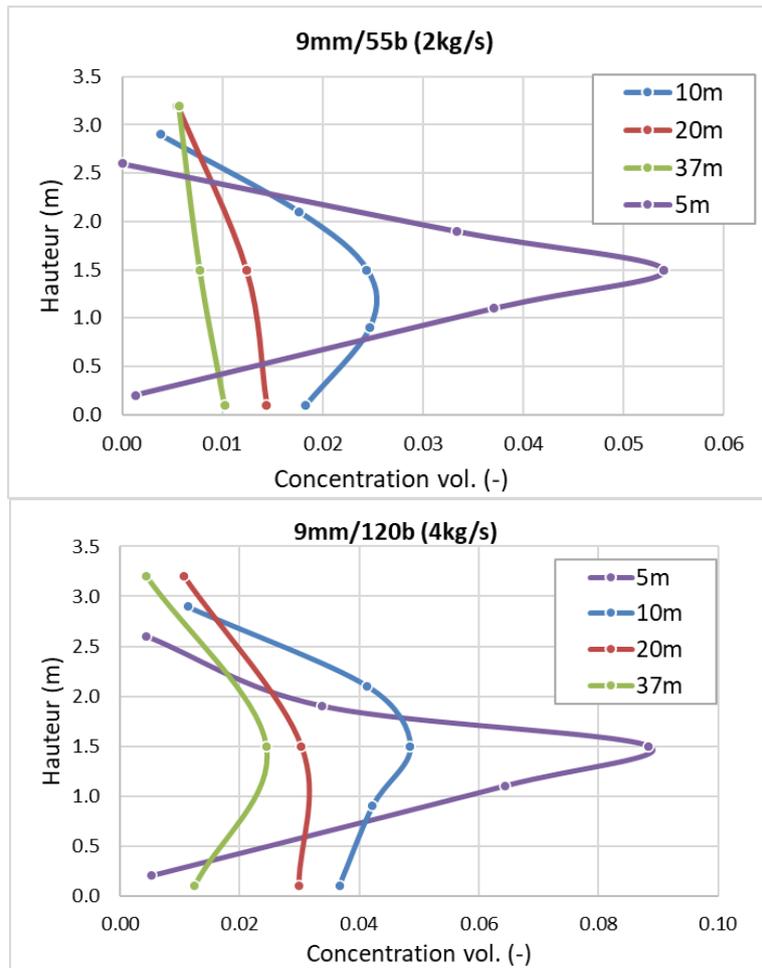


Figure 30 : Profils de concentration en fonction de la hauteur à plusieurs distances de la source (haut : liquide à saturation ; bas : liquide comprimé)



Figure 31: Différentes prises de vue d'une fuite massive de CO₂

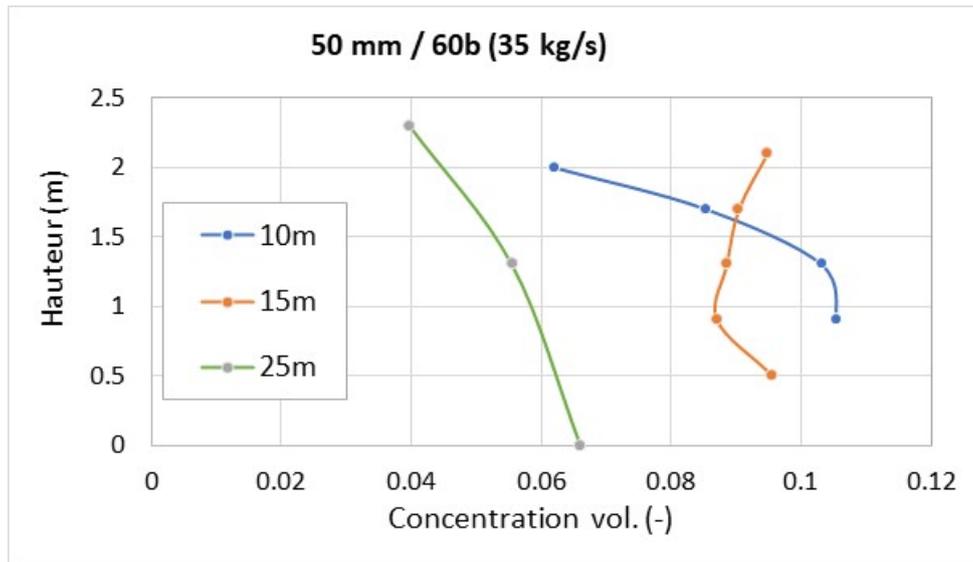


Figure 32 : Profils de concentration en fonction de la hauteur à plusieurs distances de la source pour un rejet massif de CO₂ liquide à saturation

Si l'on regarde les profils de concentration dans l'axe du jet, celui-ci semble adopter un comportement pseudo similaire dans sa partie inertielle. En effet, les inverses des concentrations qui sont présentées sur la figure suivante évoluent linéairement en fonction de la distance. L'exemple est donné pour 3 configurations de rejet à travers un orifice de 3, 6 et 9 mm.

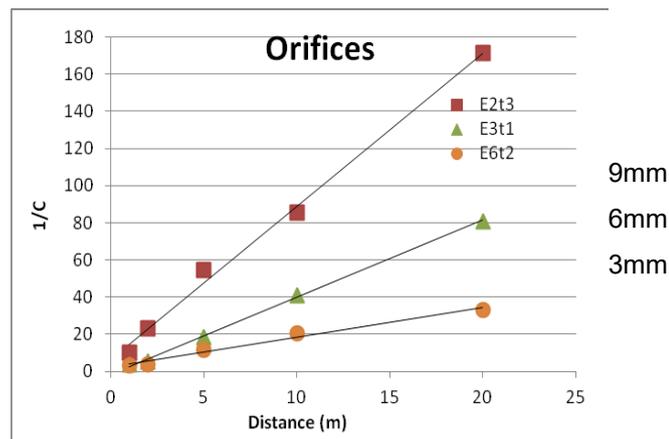


Figure 33 : Profils de concentration en fonction de la distance depuis la fuite

En conclusion, le mélange dans le nuage est raisonnablement adiabatique si bien que la température diminue suffisamment pour que les forces de densité apparaissent. Elles semblent significatives à partir d'un débit supérieur à 8 kg/s. Elles deviennent dominantes au-dessus de 20 kg/s.

On peut vérifier que le nuage visible englobe la zone "dangereuse" mais est nettement plus grand. La bordure visible semble correspondre au point de rosée atmosphérique (90 % d'humidité de l'air dans l'exemple de la Figure 34) et correspond à une concentration de CO₂ inférieure à 0,5 % vol. L'impact du débit massique peut être estimé. Il apparaît que le nuage a tendance à s'affaisser à une distance supérieure à 10 m de l'orifice de fuite, suggérant des effets de densité. Ces effets sont donc peu visibles à 4,5 kg/s mais nets au-dessus de 8 kg/s (Figure 35).

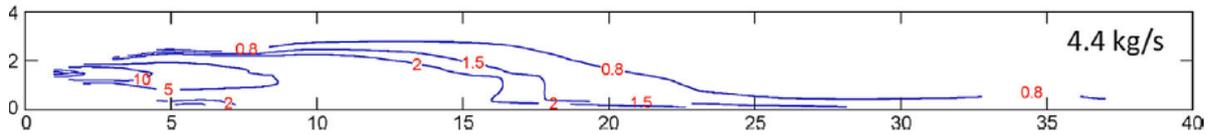


Figure 34 : Image extraite d'une vidéo associée (haut) associée aux isolignes de concentrations (%vol.) pour un essai de rejet 9mm à 95 bar

Des travaux précédents, notamment Gant et al. (2013) [19] ont montré que des rejets massifs de CO₂ en phase dense sont très peu sensibles aux conditions de vent, principalement parce que le comportement du nuage est dominé par les effets de gravité jusqu'à des concentrations de l'ordre du pourcent volumique, lorsque le jet est dans la même direction que le vent (« co-flow »).

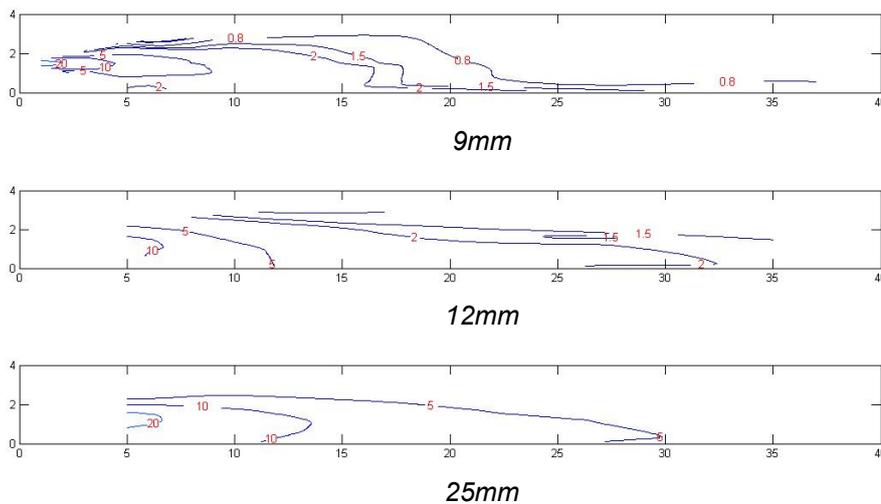


Figure 35 : Iso concentrations pour des diamètres de fuite allant de 9 à 25 mm

La figure suivante présente des abaques de distances d'effets mesurées expérimentalement pour les seuils de concentration toxiques en fonction du débit pour différentes conditions de stockage (CO₂ stocké à saturation, à température ambiante, dans un état supercritique c'est-à-dire chauffé au-dessus de 31°C ou comprimé au-delà de la pression critique, soit typiquement au-dessus de 60 bar) aux seuils réglementaires.

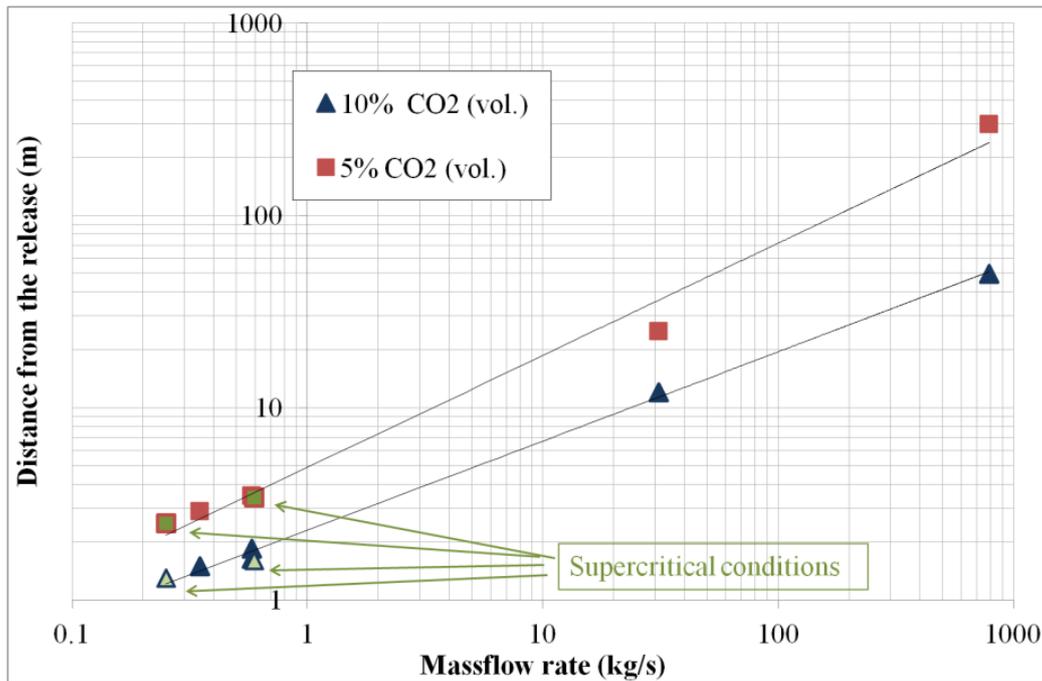


Figure 36 : Distances aux concentrations de 5% et 10% vol. pour des rejets de CO₂ dans différents états de stockage [13, 14, 20]

5.3 Rejets multi directionnels

Plusieurs configurations de rejets ont été envisagées au cours des différentes campagnes d'essais :

- Des rejets verticaux ;
- Des rejets rasants (horizontaux à quelques centimètres du sol) ;
- Des rejets à 45° ;
- Des rejets impactant des obstacles.

En ce qui concerne le panache issu d'un rejet vertical ou à 45° par rapport au sol (Figure 37), celui-ci semble se disperser avant de retomber, ne montrant aucun comportement de gaz lourd pour des concentrations de quelques pourcents de CO₂ dans l'air. En effet, les concentrations mesurées sur les mâts situés après 10 m sont très faibles (<1%vol.). Pour ces deux cas, la quantité de mouvement pilote la dispersion jusqu'aux concentrations qui nous intéressent.



Figure 37 : Nuage visible dans une configuration d'essai de rejet vertical et à 45°



Figure 38 : Nuage visible dans une configuration d'essai de rejet rasant

Nous n'observons par ailleurs aucun dépôt de CO₂ sous forme solide, même dans le cas de l'essai pour lequel des obstacles ont été ajoutés autour du rejet (voir la configuration sur la figure suivante).



Figure 39 : Configuration de rejet impactant avec obstacles

5.4 Formation d'un cratère

Un essai complémentaire avec des conditions de rejets similaires aux rejets à 45° a été réalisé à l'aide d'une boîte en acier qui est utilisée pour simuler la présence d'un cratère (qui se formerait en cas de véritable rupture de canalisation). La quantité de mouvement du jet a probablement été diminuée par l'impact avec les parois de la boîte. En première conséquence, le jet est orienté à 45° (Figure 40). On peut en outre observer que, contrairement au test à 45° ou au test vertical, l'extrémité du nuage tombe au sol à une certaine distance (où une concentration supérieure à 0,5% vol. de CO₂ est bien détectée), indiquant qu'une incidence des forces de gravité apparaît grâce à la diminution de la quantité de mouvement de la fuite.



Figure 40 : Nuage visible pour une simulation de rejet en cratère (enveloppe visible du nuage estimée ici à 0.5%vol. de CO₂)

5.5 Effet d'accumulation dans une cuvette

Les deux figures suivantes présentent quelques images extraites de la vidéo d'un essai de vidange totale d'une cuve de 2m³ remplie de CO₂ liquide à température ambiante. La vidange se fait au travers d'une tuyauterie de 50 mm de diamètre interne et de 4 m de longueur environ, sur le site expérimental de l'Ineris à Montlavoie, qui a la particularité d'être entouré de reliefs. Le rejet s'effectue donc dans une cuvette. La figure suivante présente des images de la dispersion du nuage, à une vitesse élevée près de la brèche, puis, lorsque le nuage a atteint une certaine distance (environ 15-20 m) il ralentit. Il atteint la colline située face au point de rejet et a encore suffisamment d'inertie pour « escalader » la falaise. A la fin du rejet, lorsque la pression dans la cuve est suffisamment basse, c'est-à-dire après une vingtaine de secondes de rejet, le nuage se stabilise, puis s'affaisse, puis « redescend » la falaise pour s'accumuler dans la « vallée ». Le nuage est encore visible et étendu sur toute la zone près d'une minute après la fin du rejet.

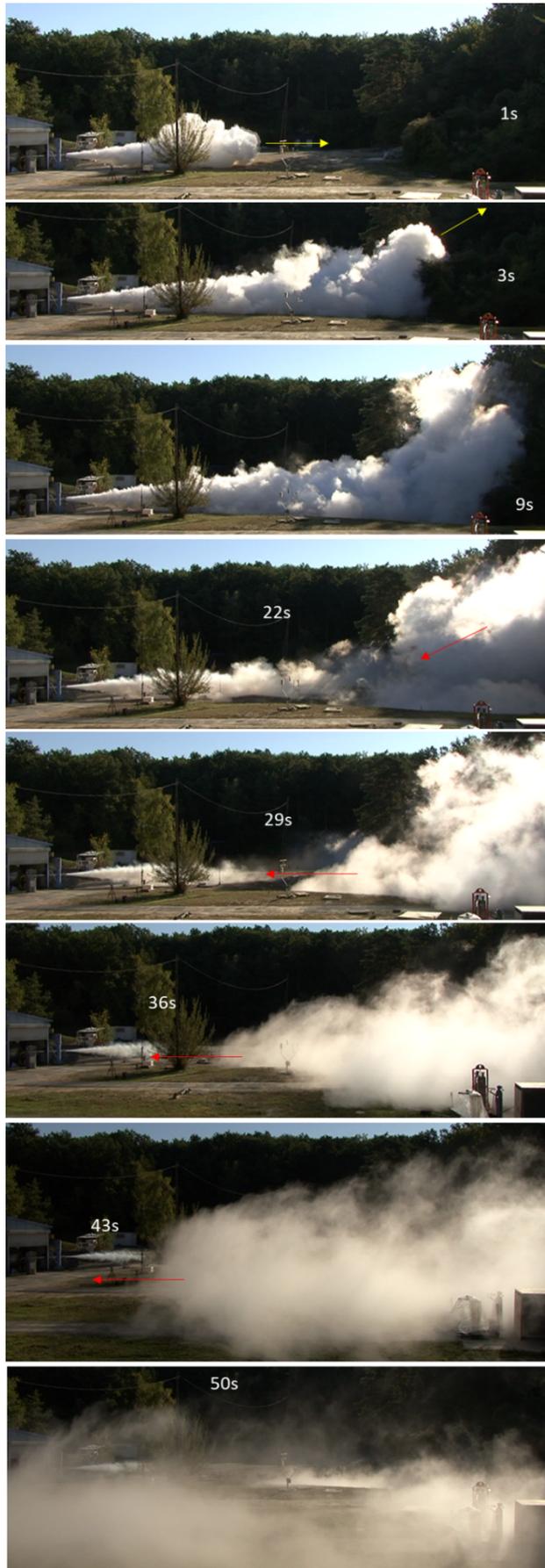


Figure 41 : Dispersion d'un nuage massif de CO_2

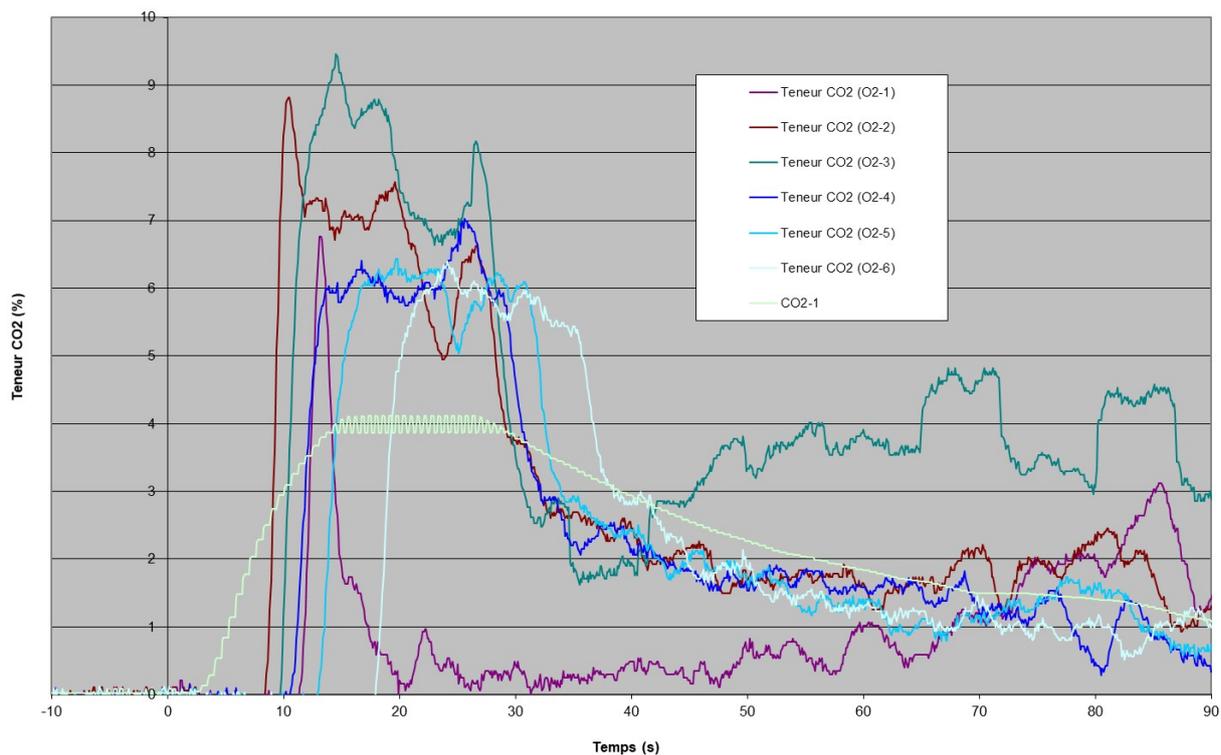


Figure 42 : Concentrations mesurées à différents points du nuage

Les concentrations mesurées dans le nuage montrent un premier plateau (entre 10 et 30 s environ) correspondant à la durée de rejet¹².

Les capteurs situés au milieu de la zone, O2-3 est un bon exemple, montrent des niveaux de concentrations en CO₂ qui ne redescendent pas à 0, même après la fin du rejet comme on aurait pu s'y attendre mais on observe sur les signaux des pics de concentrations jusqu'à 5 %vol¹³.

Une forte déclivité du sol est donc un élément à prendre en compte pour le calcul des distances d'effets lorsque le nuage a un comportement de gaz lourd piloté par les forces de gravité comme c'est le cas pour un rejet massif de CO₂.

¹² le décalage en temps correspond au temps de circulation du mélange dans les tubes d'échantillonnage, plus le capteur est éloigné de la source, et plus il faut du temps pour transporter le mélange et l'analyser

¹³ correspondant au seuil des effets irréversibles

6. Influence des impuretés

Le processus de purification du CO₂ dépend du type de captage. Dans tous les cas, plus le CO₂ est purifié pour le transport et plus les coûts associés sont importants. En pratique, les impuretés ont deux effets majeurs en termes de sécurité, le premier est lié à leur toxicité qui sera prise en compte dans les modélisations à travers un calcul de seuil toxique équivalent grâce à la loi de Haber (paragraphe 1.1.2) ; le second est lié aux modifications thermodynamiques qu'elles induisent par leur présence, et notamment des modifications des propriétés de changement de phase du fluide. Celles-ci peuvent augmenter la quantité de CO₂ solidifiée, entraînant des risques de bouchage et de casse de matériel. Cet effet concerne potentiellement tout type d'impuretés.

Plusieurs essais de vidange de la canalisation de 37 m ont été réalisés avec du CO₂ mélangé à quelques pourcents d'azote ou de méthane. La figure suivante est une comparaison du comportement thermodynamique de 3 mélanges de CO₂ avec différentes proportions de méthane lors d'un rejet liquide (l'ouverture se fait en bas de la canalisation) avec un orifice de fuite de 6 mm de diamètre.

Les conditions d'essais initiales diffèrent (en pression entre 60 et 80 bar et en température entre -4 et 8°C) et dans tous les cas, la première phase de décompression se fait à iso température. Ensuite, le domaine diphasique¹⁴, plus ou moins vaste suivant la proportion de méthane dissoute dans le CO₂ liquide, est traversé jusqu'au point de rosée (où toutes les courbes finissent par se rejoindre). Lorsque la pression et la température sont suffisamment basses, c'est-à-dire lorsque le point triple est atteint, le liquide restant dans la canalisation se solidifie. Ce point est matérialisé par un point bleu sur la figure suivante pour le CO₂ pur. L'influence de la présence de méthane se matérialise par le point à partir duquel la courbe pression-température quitte la courbe du point de rosée (courbe continue verte pour le mélange CO₂ +5.6%CH₄).

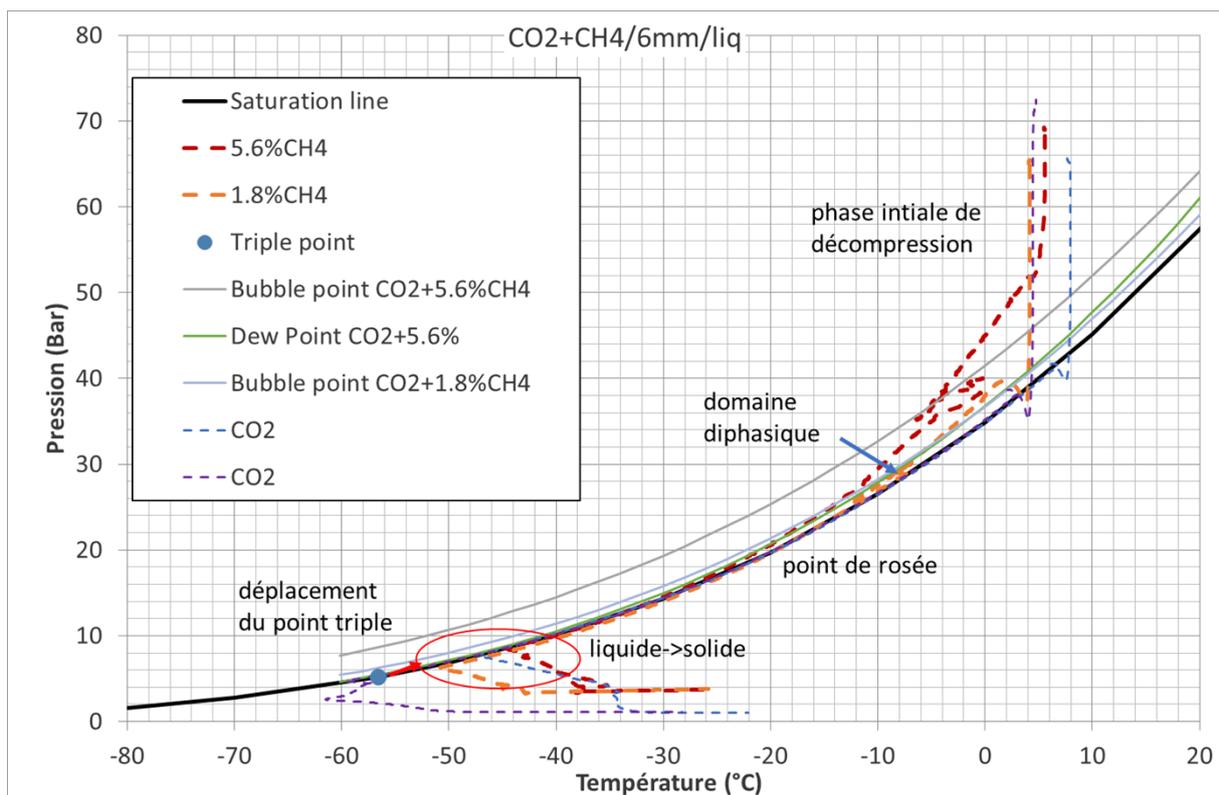


Figure 43 : Diagramme Pression-Température pour la décompression de canalisation en fonction du taux de méthane dissous dans le CO₂

¹⁴ Domaine diphasique : domaine entre la courbe de point d'ébullition (condition nécessaire pour la vaporisation du liquide) et la courbe de point de rosée (condition nécessaire pour l'apparition de gouttes dans le gaz)

La quantité de CO₂ solide formé pour chaque mélange est présentée dans le tableau suivant :

%Vol CH ₄ initial	%Vol CH ₄ à mi-rejet	Masse de CO ₂ finale (kg)
12	2.9	0.8
5.6	2.1	1.2
1.8	0.1	0.9
CO ₂ pur		0.7
CO ₂ pur		0.7

Tableau 4. Masse de CO₂ solide obtenue en fonction de la proportion de méthane contenu dans le CO₂ liquide

Même si le méthane a dégazé entre le début et le milieu de rejet (2ème colonne du tableau) et que la proportion réelle de méthane en fin de rejet est difficile à évaluer dans le liquide au moment de la formation de glace carbonique, il semble que la présence de méthane a une influence notable sur le point triple du mélange et a une tendance à augmenter la solidification quand on ajoute des impuretés, mais cette augmentation reste difficile à quantifier précisément.

7. Modélisation

7.1 Modélisation de la dispersion de CO₂ en terrain plat et champ libre

Les travaux expérimentaux réalisés par National Grid [21] pour étudier la faisabilité de transporter du CO₂ par canalisation ont montré que des rejets verticaux de CO₂ ne produisent pas d'effets au sol. Sous réserve de connaître les conditions de transport, il est possible de modéliser la dispersion atmosphérique d'un nuage de CO₂ à l'aide des outils de modélisations « standards ».

Dans l'ensemble, les concentrations prévues à partir des divers modèles étaient en accord raisonnable avec les mesures, mais généralement en moins bon accord que ce qui a été rapporté précédemment pour des modèles de dispersion similaires dans d'autres rejets de CO₂ en phase dense. D'après [19], les modèles (Phast, ANSYS-CFX) ont une tendance générale à surestimer les concentrations de CO₂ en particulier entre 3 et 7% vol. Par conséquent, la distance entre l'orifice et le point où la concentration de CO₂ est tombée à la valeur IDLH de 4 % vol/vol est potentiellement surestimée d'un facteur deux.

En pratique, les modèles de dispersion en terrain plat sont plutôt majorants, même pour les rejets massifs. Néanmoins, ceux-ci ne permettent pas de prendre en compte la déclivité du terrain qui peut exercer une influence importante.

7.2 CFD

La prise en compte de la topologie du terrain est réalisée simplement dans les modèles intégraux utilisés par l'intermédiaire d'un coefficient de rugosité qui permet de prendre en compte l'effet du relief sur le profil de vitesse du vent, c'est-à-dire son influence sur la turbulence atmosphérique.

Pour prendre en compte l'effet de la présence d'une pente, il est nécessaire de faire appel à des outils plus élaborés du type CFD¹⁵. Un exemple de modélisation de l'essai présenté précédemment est proposé sur la figure suivante. Si les paramètres utilisés ne sont pas identiques (la représentation du relief est assez grossière), cette modélisation prometteuse permet néanmoins d'illustrer la capacité d'un outil CFD à prendre en compte ces paramètres et à simuler l'affaissement du nuage après le rejet.

Diverses simplifications (modèles de turbulence, représentation simplifiée des obstacles, incapacité à représenter les écoulements choqués, etc...) sans lesquelles les temps de calcul seraient rapidement rédhibitoires, font d'un code CFD un outil difficile à utiliser pour la prédiction. .

Pour rendre le calcul CFD prédictif, une étape de validation avec des données expérimentales est indispensable. Cette validation peut être très coûteuse et n'est possible que si le nombre de configurations à étudier reste raisonnable. Dans le cas du transport par canalisation par exemple, pour lequel une fuite est possible n'importe où sur le tronçon, il est difficile d'imaginer pouvoir faire des modélisations CFD sur toute la longueur du tracé. Il faut donc réfléchir à une méthode qui permette de prendre en compte l'effet de la pente de manière plus forfaitaire à partir de résultats obtenus dans le cas générique (terrain plat, rejet en champ libre) avec les modèles classiques « simples ».

Dans un premier temps, il est possible de recenser les configurations susceptibles d'engendrer des distances d'effets plus importantes que dans la situation de rejet générique :

- la fuite a lieu en hauteur et le nuage est susceptible de dévaler une pente (exemple de retour d'expérience : l'accident de Satartia décrit en introduction) ;
- la fuite est susceptible de remplir une vallée, (exemple : accident du lac Nyos) ;
- le nuage s'affaisse sous son propre poids et redescend dans une vallée sous l'effet de la gravité (situation observée expérimentalement et décrite ci-avant).

Il sera ensuite nécessaire de corriger les distances obtenues dans le cas afin de prendre en compte ces situations particulières.

¹⁵ Computational Fluid Dynamics

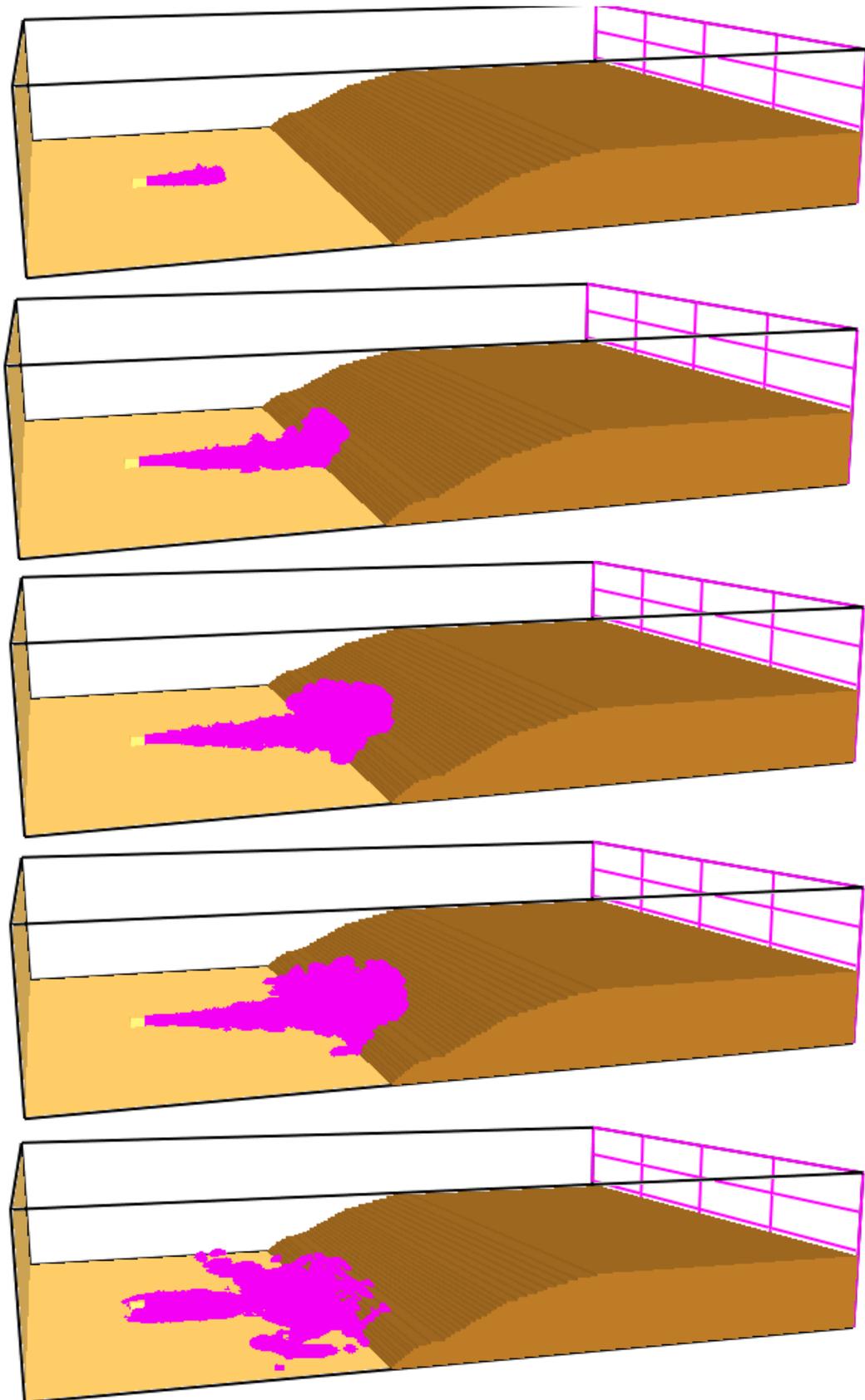


Figure 44 : Modélisation CFD de la dispersion d'un nuage de CO₂ en présence d'un relief

7.3 Cratère

Une fuite sous haute pression enterrée a suffisamment de quantité de mouvement (et c'est d'autant plus vrai pour le CO₂ en phase dense) pour former un cratère. Le rejet sera donc potentiellement impactant dans le cratère ce qui modifiera sa quantité de mouvement (cet effet a été observé expérimentalement dans les essais décrits dans le paragraphe 5.4) et piégera une partie du CO₂ solide formé¹⁶. Les conditions atteintes à la sortie du cratère (vitesse, taux de dilution, taux de CO₂ solide piégé, etc...) sont des paramètres d'entrée indispensables pour les modèles de dispersion du nuage.

Des modèles existent pour évaluer la taille des cratères [22, 23] et pour prendre en compte leur influence sur le terme source. Ces modèles représentent plus ou moins bien la physique du cratère en limitant la quantité de mouvement du rejet résultant. En pratique, de tels modèles augmentent les distances d'effets par rapport à un rejet vertical.

Un modèle de cratère a été développé par DNV GL en marge du projet de recherche COOLTRANS [23] dans lequel des essais de rupture de canalisation ont été réalisés à grande échelle, dont notamment des essais de fracture de canalisation. Les expériences de fuite ont montré que le rejet et le chemin qu'il crée vers la surface (formation d'un cratère) sont indissociables.

Si un cratère se forme, aucune retombée solide n'a été observée dans le cratère (les essais à moyenne échelle de l'Ineris ont permis d'arriver aux mêmes conclusions). La présence de CO₂ solide n'a été constatée qu'après les expériences dans lesquelles des cavités souterraines ont été formées, mais ce n'était que des quantités relativement faibles.

Il a été montré que sous certaines conditions, le rejet stagnait au-dessus du cratère en formant une sorte de couverture. La dispersion d'un tel nuage est plus lente et les distances d'effets peuvent être sensiblement augmentées. La modélisation de ce type de nuage est beaucoup plus complexe et nécessite de définir des critères pour lesquels cet effet sera observé et de définir un terme source équivalent au niveau du sol.

7.4 Méthodologie de modélisation

A l'aide de tous ces éléments, l'Ineris a construit une méthodologie pour la modélisation des distances d'effet d'une fuite sur un stockage de CO₂ dense. La première étape consiste à évaluer le terme source. Si le rejet est constant, c'est-à-dire que la fuite est petite devant le volume de stockage ou devant le diamètre de la canalisation de transport, il est possible d'utiliser les méthodes de calculs de débit liquide. Le débit calculé est majorant lorsque la pression de stockage est proche de la saturation mais cette problématique est commune aux autres gaz liquéfiés.

Pour les ruptures totales de tuyauterie, comme une canalisation de transport, l'utilisation d'un modèle de décompression (du type « long pipeline » de Phast) peut-être utile. Il est alors nécessaire de choisir le temps de moyenne du terme source en fonction du temps d'établissement du nuage. Un exemple est donné sur la Figure 45 de l'évolution du débit en fonction du temps pour une canalisation de 300 mm de diamètre interne, de 10 km de long (la rupture se situe en son milieu) à 150 bar (CO₂ dans un état dense). La moyenne du débit sur 60 s est alors d'environ 1150 kg/s.

¹⁶ Même si cela n'a pas été observé expérimentalement à l'Ineris, le retour d'accident montre que sous certaines conditions, des accumulations de CO₂ dans le cratère sont possibles.

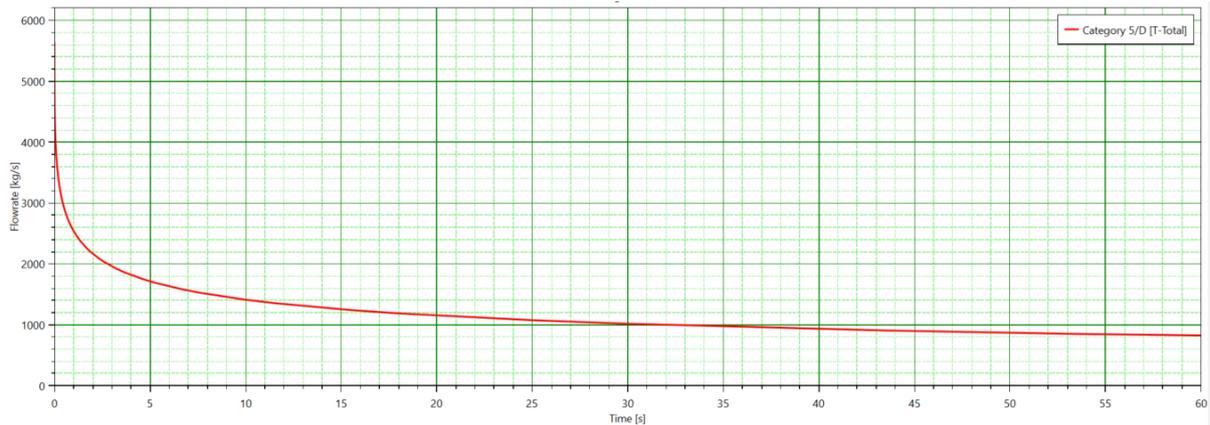


Figure 45 : Evolution du débit massique total (somme des contributions des tronçons amont et aval)

A partir de ce terme source, la dispersion en considérant un rejet vertical est présentée sur la Figure 46 pour les deux conditions météorologiques réglementaires (F3 : classe de stabilité stable F et vitesse de vents de 3 m/s représentant des conditions plutôt défavorables de nuit et D5 : classe de stabilité neutre et vitesse de vent de 5 m/s représentant des conditions typiques de jour). Les courbes de concentrations aux seuils français sont présentées (5, 10 et 20 %vol.), le seuil de 1% vol. est ajouté représentant approximativement le seuil de visibilité du nuage.

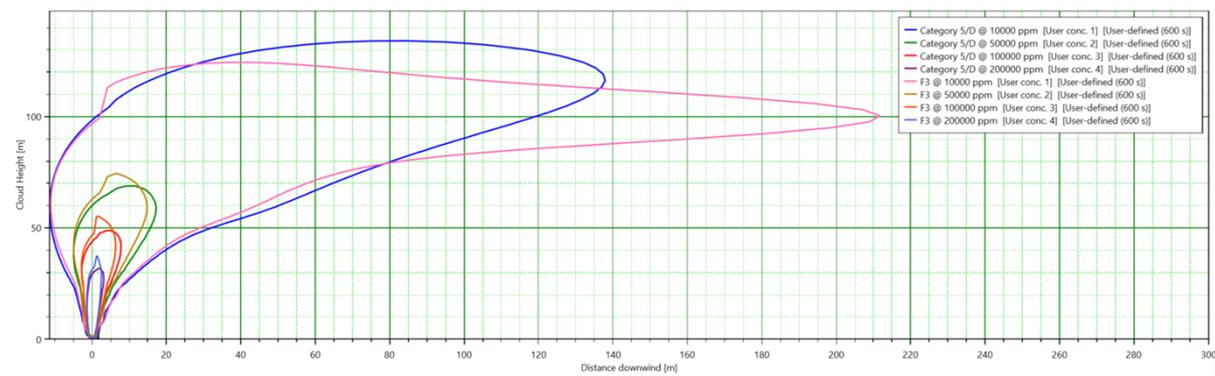


Figure 46 : Dispersion du nuage avec une hypothèse de rejet vertical

Les seuils ne sont pas atteints au niveau du sol, le nuage est ascendant et ne retombe pas.

Il est possible de prendre en compte la formation du cratère de façon simplifiée en diminuant la quantité de mouvement du rejet, c'est en dire en diminuant la vitesse de rejet. En théorie, cette vitesse finale est dépendante de la géométrie du cratère. Cependant, les modèles permettant de définir la taille de cratère sont très nombreux et donnent des résultats très dispersés. En pratique, les essais présentés dans les paragraphes précédents nous permettent d'évaluer cette vitesse à environ 1/6^{ème} de la vitesse du jet, soit environ 40 m/s. La dispersion du nuage en prenant en compte cette vitesse réduite est présentée sur la figure suivante :

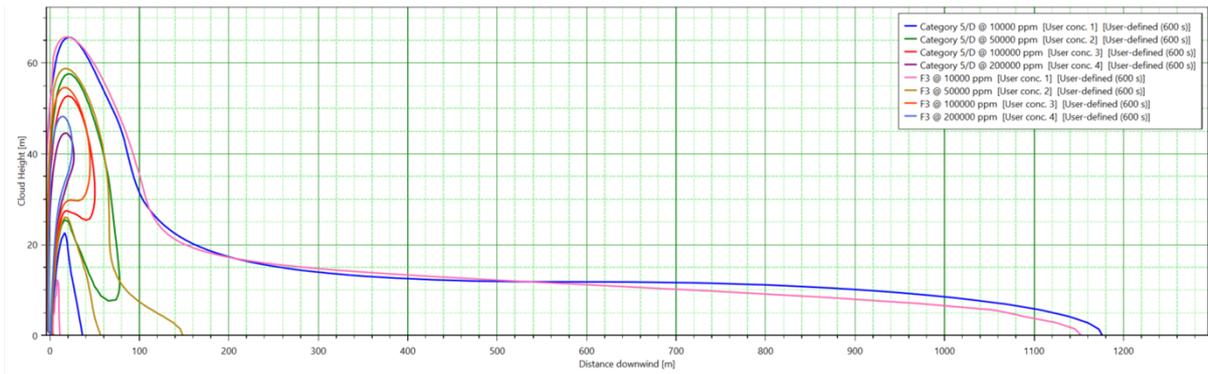


Figure 47 : Dispersion du nuage avec une hypothèse de formation de cratère ayant une influence sur la quantité de mouvement du rejet

Le nuage a une tout autre forme, l'effet nuage lourd est beaucoup plus marqué et les seuils de concentrations visibles et irréversibles (respectivement 1 et 5 % vol.) sont dans ce cas-là atteints au niveau du sol.

Cette méthode reste très rudimentaire et doit être affinée. Comme évoqué au paragraphe précédent, DNV a développé, à la suite des essais grande échelle, un modèle permettant le calcul de la géométrie du cratère et des conditions de rejet dans celui-ci (vitesse, prémélange du CO₂ avec l'air dans le cratère). La figure suivante présente les résultats de dispersion avec ce modèle, en utilisant un terme source identique :

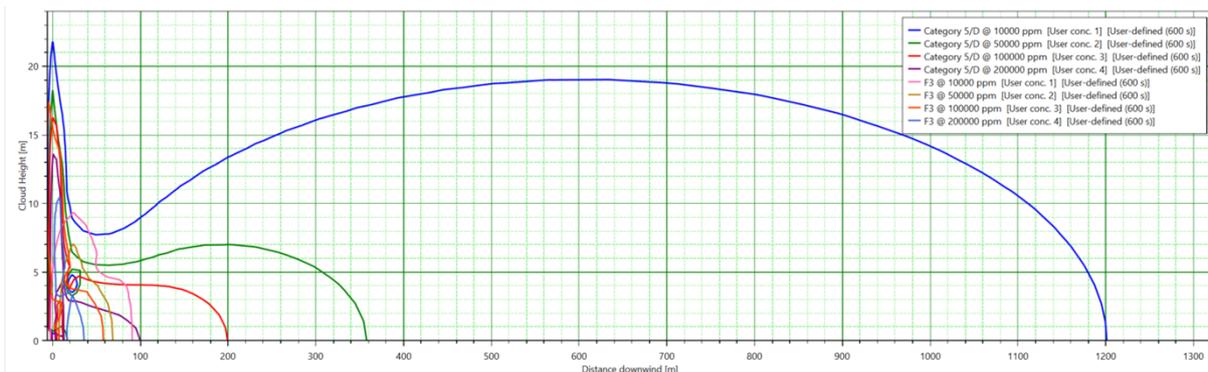


Figure 48 : Dispersion du nuage avec le modèle « cratère » de DNV

La forme globale du nuage est assez similaire mais les seuils létaux réglementaires sont ici atteints au niveau du sol. En pratique, ce modèle peut donner des résultats très majorants dans certaines situations, avec des distances d'effets qui peuvent être supérieures aux distances obtenues lorsque le rejet est horizontal, notamment pour les seuils létaux. Les résultats de la configuration horizontale sont présentés sur la Figure 49 :

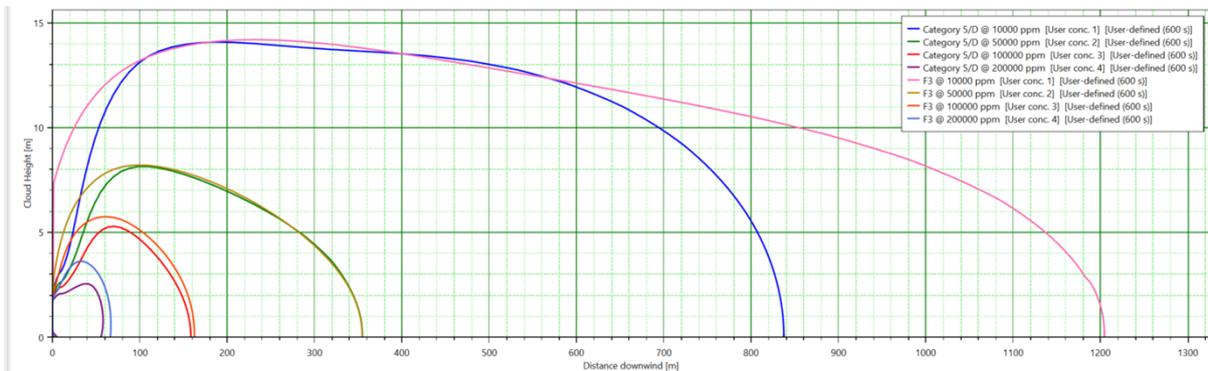


Figure 49 : Dispersion du nuage avec une hypothèse de rejet horizontal

Il y a donc un travail de développement de modèle à réaliser pour prendre en compte l'influence du cratère sur le terme source, et notamment sur la vitesse du rejet sans être exagérément majorant. L'approche forfaitaire de réduction de la vitesse semble en attendant la plus pertinente, et présente l'avantage de pouvoir être utilisée avec tous les modèles de dispersion.

8. Conclusions et perspectives

De nombreuses configurations de fuites, en rejet continu, ou de vidanges massives de réservoir ou de canalisation ont été effectuées dans différents programmes de recherche à l'Ineris. De nombreuses données sur le terme source, sur le comportement du CO₂ dense, pur ou en mélange avec des impuretés et sur la dispersion du nuage ont ainsi pu être collectées pour une meilleure compréhension globale des mécanismes de dispersion. Plusieurs techniques expérimentales de mesure de débit ou de concentrations ont pu être testées.

Les méthodes de calcul des distances d'effets habituellement utilisées ont pu être comparées et ont globalement donné satisfaction pour la modélisation du terme source (débit) et de la dispersion du nuage en champ libre et sur terrain plat, que le CO₂ soit stocké en phase gazeuse, dense ou supercritique, en rejet continu ou lors de la décompression d'une canalisation.

Ce travail a néanmoins permis d'identifier plusieurs difficultés techniques pour la modélisation :

- Le choix des seuils toxiques doit être consolidé, il y a notamment des écarts importants entre les différents pays sur le choix des seuils et sur l'influence du temps d'exposition.
- La formation d'un cratère aura une influence négative sur la dispersion du nuage issu d'une fuite située sous terre (canalisation de transport) en favorisant un régime de « gaz lourd », c'est-à-dire un effet de nuage stagnant lié à la perte de quantité de mouvement dans le cratère due à l'impact du jet. Cette réduction de vitesse peut être considérée forfaitairement dans les modélisations en attendant un travail de recherche expérimental et le développement d'une approche éventuellement plus pertinente.
- La déclivité du terrain peut augmenter les distances. Des accidents passés impliquant du CO₂ ont montré que la topographie pouvait avoir un impact majeur sur les distances de sécurité. Puisque la dispersion atmosphérique du CO₂ pourrait être dominée par les effets de la gravité, les outils de modélisation qui supposent que la zone de dispersion est complètement plate peuvent s'avérer totalement inadaptés en cas de pente. Les modélisations des rejets dans des environnements où la topographie serait propice à l'augmentation des distances peuvent être traitées à l'aide d'outils qui prennent en compte le relief. Il est aussi envisagé de développer une méthode qui permettrait de « corriger » les distances obtenues par les modèles intégraux en terrain plats. Des critères permettant de définir la correction à apporter sont à définir.

Une campagne expérimentale de rejets de CO₂ à moyenne échelle serait utile pour déterminer l'impact d'une pente variable sur le champ de concentration et permettrait une validation des modèles numériques.

Un rejet massif de CO₂ pourrait également avoir lieu dans un environnement encombré. Là encore, les outils de modélisation habituels ne sont pas capables de rendre compte de la présence d'obstacles significatifs à la dispersion des gaz.

Ces deux points devront faire l'objet de programmes de recherche expérimentaux dans les prochaines années.

La présence d'impuretés dans le CO₂ a été étudiée d'un point de vue thermodynamique et pour leur influence sur la création potentielle de glace carbonique, qui peut être une cause d'accident (par bouchage notamment). Les conditions de création de solide font l'objet d'un projet de recherche nommé ENCASE¹⁷ auquel l'Ineris participe.

¹⁷ A European Network of Research Infrastructures for CO₂ Transport and Injection

9. Références

- [1] WILDAY J., PALTRINIERI N., FARRET R., HEBRARD J. et BREEDVELD L., « Addressing emerging risks using carbon capture and storage as an example », *Process Safety and Environmental Protection*, 89, pp. 463-471, 2011.
- [2] Note du 16 novembre 2007 relatif à la concentration à prendre en compte pour l'O₂, le CO₂, le N₂ et les gaz inertes (<https://aida.ineris.fr/reglementation/note-161107-relatif-a-concentration-a-prendre-compte-lo2-co2-n2-gaz-inertes>).
- [3] P. HARPER, J. WILLDAY AND M. BILIO, Assessment of the major hazard potential of carbon dioxide (CO₂), Health and Safety Executive, 2011.
- [4] RAPPORT D'ÉTUDE INERIS N°DRC-07-82347-07520A, Méthodologie de détermination des valeurs seuils de toxicité aiguë françaises en cas d'émission accidentelle de substances chimiques dans l'atmosphère.
- [5] RAPPORT D'ÉTUDE INERIS N° DRC-08-94398-02798A, Guide pratique de choix des valeurs seuils de toxicité aiguë en cas d'absence de valeurs françaises, 2008.
- [6] Evaluation of the acute toxicity of CO₂, RIVM, october 2nd 2009 (<https://www.rivm.nl>).
- [7] PORTER, R. T. J.; FAIRWEATHER, M.; POURKASHANIAN, M.; WOOLLEY, R. M. The Range and Level of Impurities in CO₂ Streams from Different Carbon Capture Sources. *Int. J. Greenh. Gas Control* 2015, 36, 161– 174, DOI: 10.1016/j.ijggc.2015.02.016.
- [8] BROWN, S. MARTYNOV, H. MAHGEREFTEH, M. FAIRWEATHER, R.M. WOOLLEY, C.J. WAREING, ET AL. ; CO2QUEST: Techno-economic assessment of CO₂ quality effect on its storage and transport, *Energy Procedia*, 63 (2014), pp. 2622-2629.
- [9] PORTER R ET AL., Techno-economic assessment of CO₂ quality effect on its storage and transport: CO2QUEST: An overview of aims, objectives and main findings, *International Journal of Greenhouse Gas Control*, Volume 54, Part 2, November 2016, Pages 662-681.
- [10] PORTER ET AL., The Work and Preliminary Results of the C4u Project on Advanced Carbon Capture for Steel Industries Integrated in Ccus Clusters, *Proceedings of the 16th Greenhouse Gas Control Technologies Conference (GHGT-16)* 23-24 Oct 2022.
- [11] FERRANDINI V., "Experimental assessment of CO₂ transport properties when mixed with impurities", rapport de stage, Université de Technologie de Compiègne, 2016.
- [12] PROUST C., JAMOIS D. et HEBRARD J., « Small scale CO₂ release experimental design : hardware and instrumentation », livrable 2.1.2, avril 2013.
- [13] HEBRARD J. JAMOIS D., PROUST C., MédiuMs cale CO₂ releases, *Energy procedia* 86, 2016, 479-488.
- [14] JAMOIS D., PROUST C., HEBRARD J., "Hardware and instrumentation to investigate massive releases of dense phase CO₂", *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, vol. 93, issue 2, 2014.
- [15] PROUST C., JAMOIS D. et HEBRARD J., « Experimental investigation of the dispersion of CO₂ in the atmosphere », livrable 2.1.5, avril 2013.

- [16] PROUST C., JAMOIS D. et HEBRARD J., « Experimental investigation of high velocity flow throughout a long pipe », livrable 2.1.4, avril 2013.
- [17] Memento des pertes de charge, Idel'cik, éditions EROLLES, 1999.
- [18] GUO et al., Pressure response and phase transition in supercritical CO₂ releases from a large-scale pipeline, Applied Energy 178 (2016) 189–197.
- [19] GANT et al., Evaluation of multi-phase atmospheric dispersion models for application to Carbon Capture and Storage, Journal of Loss Prevention in the Process Industries 32(2014) 286-298.
- [20] AHMAD M AND AL., Study of the thermohydraulics of CO₂ discharge from a high pressure reservoir. International Journal of Greenhouse Gas Control 37 (2015) 340–353.
- [21] ALLASON ET AL, Experimental studies of the behaviour of pressurised releases of carbon dioxide, SYMPOSIUM SERIES NO. 158, Hazards XXIII, 2012.
- [22] D. HOUSSIN ET AL., “Consequences of a 12-mm diameter high pressure gas release on a buried pipeline. Experimental setup and results”, Journal of Loss Prevention in the Process Industries, Volume 54, July 2018, Pages 183-189.
- [23] COOPER ET AL., “Pipelines for transporting CO₂ in the UK”, Energy Procedia 63 (2014) 2412 – 2431.

