



AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

UNIVERSITE DE LORRAINE
Ecole Nationale Supérieure de Géologie de Nancy
Laboratoire GeoRessources
Ecole doctorale RP2E -Ressources Procédés Produits Environnement

THESE

Présentée à l'université de Lorraine
En vue de l'obtention du titre de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE LORRAINE
en Mécanique - Génie civil

Par

Kanssouné SALIYA

MODELISATION DES COUPLAGES CHIMIO-POROMECHANQUES
APPLIQUEE AU STOCKAGE DE CO₂ DANS LE CHARBON

Soutenue publiquement le 4 septembre 2014 devant la commission d'examen

Membres de jury :

M. Philippe	COSENZA,	Rapporteur
M. Dashnor	HOXHA,	Rapporteur
M. Jianfu	SHAO,	Examineur
M. Kwai Kwan	WONG,	Examineur
M. Albert	GIRAUD,	Directeur de thèse
M. Dragan	GRGIC,	Co-directeur de thèse
M. Richard	GIOT,	Co-directeur de thèse

Avant propos

Je tiens à remercier en premier lieu mes directeurs et co-directeurs de thèse, Dragan GRGIC, Richard GIOT et Albert GIRAUD. Leur encadrement et leurs conseils avisés m'ont permis de mener à bien ce travail de thèse. En plus d'être des scientifiques passionnés, ils disposent de qualités humaines indéniables qui ont facilité nos échanges et le déroulement de ces 4 années de thèse.

Je remercie donc Albert GIRAUD, professeur à l'ENSG de m'avoir accueilli dans son équipe, de m'avoir encadré et conseillé pendant toute cette longue période, et d'avoir mis à ma disposition son expérience et ses connaissances. Qu'il reçoive ici ma gratitude.

Un sincère merci à Dragan GRGIC, maître de conférences (HDR) à l'ENSG et co-directeur de ma thèse, pour le temps qu'il a consacré pour l'aboutissement de mes travaux de thèse, ses idées et conseils précieux ainsi que ses suggestions. Qu'il reçoive ici ma gratitude.

Un sincère merci aussi à Richard GIOT, maître de conférences (HDR) à l'ENSG et co-directeur de ma thèse, sans qui je ne m'en sortirai pas aussi bien avec le Code_Aster. Par son expérience et ses grandes compétences, il m'a montré les techniques du numérique. Même à minuit, il répondait à mes mails de secours. Qu'il reçoive ici ma gratitude.

Monsieur Philippe COSENZA, professeur à l'université de Poitiers, et Monsieur Dashnor HOXHA, professeur à l'école Polytechnique de l'université d'Orléans, ont accepté d'être rapporteurs de ce travail de thèse. Ils l'ont jugé et estimé ; j'en suis très fier et très honoré, et les remercie sincèrement. J'associe à ces remerciements, Monsieur Jianfu SHAO, professeur à Polytech-Lille et Monsieur Kwai Kwan WONG, professeur à l'université de Lyon, qui ont accepté d'être les examinateurs de ma thèse et d'assister à ma soutenance.

Un grand merci à Théophile, Fabrice, Luc, Zemenu pour leurs conseils et encouragement qu'ils m'ont toujours donné. Je remercie aussi mes nombreux amis du bâtiment E qui ont toujours été là pour moi pour les bons et les mauvais moments : Romain, Wadoud, Hossein, Marbe, Noémie, Maxime, Luc, Fengjuan, Tidjani, Ahmed !

Je remercie les nombreuses personnes travaillant au laboratoire GéoRessources, chercheurs (Michel Bues, Christophe ...), étudiants et techniciens (Eric, Laurent, Patrick, Mohamed, Franck ...), pour avoir participé de près ou de loin à mes travaux et de leur amitié.

Je remercie finalement toute ma famille qui m'a toujours soutenu et encouragé pendant ses nombreuses années. Un merci sincère à toi Joseph pour tout ce que tu as fait pour moi et pour avoir assisté à ma soutenance. Tu m'as montré l'amour digne d'un grand frère.

A la mémoire de mon père

A ma mère

A mes frères et sœur

Table des matières

Table des matières	1
Liste des figures	6
Liste des tableaux.....	11
CHAPITRE 1	12

Introduction générale

1.1. Contexte.....	12
1.2. Problématique.....	15
1.3. Objectifs et plan de la thèse	17
1.4. Références bibliographiques	18
CHAPITRE 2	21

Modélisation des couplages Thermo-Hydro-Mécaniques (THM) dans les roches poreuses

2.1. Introduction	21
2.2. Comportement Thermo - Hydro - Mécanique (THM) des milieux poreux.....	22
2.2.1. Définition d'un milieu poreux	22
2.2.2. Elasticité linéaire	22
2.2.2.1. Le tenseur de déformations (Cauchy et Green-Lagrange).....	22
2.2.2.2. Tenseur de contraintes	23
2.2.2.3. Equation de Navier.....	24
2.2.3. Contrainte effective.....	24
2.2.4. Lois de comportement hydro-poro-élastique	25
2.2.5. Evolution de la porosité.....	26
2.2.6. Les apports de masse fluides	26
2.2.7. Loi de comportement des fluides	27
2.2.8. Transport de fluides au sein d'un milieu poreux	28
2.2.8.1. La loi de Darcy	28
2.2.8.2. La loi de Fick.....	29
2.2.8.3. Solubilité du CO_2 dans l'eau : la loi d'Henry	29
2.2.8.4. La perméabilité intrinsèque	30
2.2.8.5. Le modèle de Mualem Van-Genuchten.....	30

2.2.9. Equations d'état du fluide saturant.....	32
2.2.10. Equations d'état linéarisées du comportement thermo-poro-élastique linéaire	33
2.3. Les couplages Thermo-Hydro-Mécanique et Chimiques (THMC)	34
2.4. Conclusion	36
2.5. Références bibliographiques.....	36
CHAPITRE 3	39

Modélisation du stockage géologique du CO_2 dans le charbon: étude bibliographique

3.1. Introduction	39
3.2. Structure et propriétés des charbons	40
3.3. Classification des charbons.....	42
3.4. Transport de fluides dans les charbons et les phénomènes d'adsorption-désorption ...	43
3.4.1. Le transport de fluides dans les charbons.....	43
3.4.2. Les phénomènes d'adsorption-désorption	44
3.5. Les isothermes de sorption	45
3.5.1. Définition	45
3.5.2. Formes des isothermes de sorption	45
3.6. Les modèles des isothermes de sorption.....	46
3.6.1. Adsorption monocouche, localisée et sans interactions latérales.....	47
3.6.1.1. Le modèle de Henry	47
3.6.1.2. Le modèle de Freundlich.....	47
3.6.1.3. Le modèle de Langmuir	47
3.6.1.4. Modèle de Tóth.....	48
3.6.2. Adsorption monocouche, localisée et avec interactions latérales	48
3.6.3. Adsorption multicouche, localisée et sans interactions latérales	48
3.7. Correction des isothermes classiques par Tóth.....	49
3.8. Les modèles phénoménologiques de perméabilité – porosité existants.....	49
3.8.1. Quelques équations des modèles de perméabilité des charbons	50
3.8.2. D'autres modèles	57
3.8.3. Quelques conclusions sur les modèles analytiques de perméabilité du charbon ..	57
3.9. La perméabilité des charbons dans la littérature	58
3.10. Point sur les paramètres de Langmuir	60
3.11. Conclusion	61
3.12. Références bibliographiques.....	62

CHAPITRE 4	71
Calculs THMC de l'injection de CO_2 dans le charbon avec l'isotherme de Langmuir	
4.1. Introduction	71
4.2. Première partie : les calculs théoriques et numériques 1D sous Code_Aster	72
4.2.1. Modèle de porosité eulérienne	72
4.2.2. Calculs théoriques	73
4.2.2.1. Cas sans Langmuir	74
4.2.2.2. Cas avec Langmuir	75
4.2.3. Calculs numériques 1D sous Code_Aster	82
4.2.3.1. Description du modèle 1D	83
4.2.3.2. Résultats des calculs 1D sous Code_Aster	85
4.2.3.3. Discussions sur les résultats de calculs 1D sous Code_Aster	94
4.2.4. Conclusion sur les calculs 1D	94
4.3. Deuxième partie : les calculs numériques 2D avec Code_Aster	95
Thermo-Hydro-Mechanical modeling with Langmuir's adsorption isotherm of the CO_2 injection in coal	96
Abstract	96
1. Introduction	96
2. Theoretical framework	97
2.1. Dual porosity of coal	98
2.2. Poro-elasticity equations	98
2.3. Langmuir's isotherme	100
2.4. Homogenized equation	100
2.5. Diffusion and transport equations	101
2.6. Solubility of CO_2 in water	102
3. Description of the model	102
3.1. Code_Aster: presentation	102
3.2. Implementation	102
3.3. Mesh and boundary conditions	103
3.4. Model Parameters and different calculations	104
4. Results	106
4.1. General results and effects of CO_2 dissolution in water	106
4.2. Influence of Biot's coefficient b : water-saturated case	109

4.3.	Influence of the Langmuir's parameters ε_L and β_L	111
4.4.	Influence of the initial pressure of liquid P_l : water-saturated and dry cases.....	113
4.5.	Influence of the drained Young's modulus E_o	115
4.6.	Model with two injection wells	115
5.	Discussion	116
5.1.	General observations and effects of CO_2 dissolution in water	116
5.2.	Influence of hydro-mechanical properties of coal (Biot's coefficient, bulk modulus).....	118
5.3.	Effects of Langmuir's isotherm parameters and initial water pressure in coal ..	120
6.	Conclusions	120
	Acknowledgments	121
7.	References.....	121
	Commentaire sur les deux premières parties.....	126
4.4.	Troisième partie : autres calculs numériques 2D avec Code_Aster.....	127
4.4.1.	Influence de la pression initiale de liquide P_l dans le massif du charbon : cas sans prise en compte de la dissolution du CO_2 dans l'eau interstitielle	127
4.4.2.	Effets de la perméabilité intrinsèque	129
4.4.3.	Cas de contraintes initiales déviatoriques.....	132
4.4.4.	Cas de deux puits d'injection	137
4.4.4.1.	Maillage et conditions aux limites.....	137
4.4.4.2.	Résultats et commentaires	138
4.4.5.	Conclusions	141
4.5.	Conclusions	141
4.6.	Références bibliographiques.....	143
	CHAPITRE 5	145
	Modélisations de l'injection de CO_2 dans un charbon saturé en méthane CH_4 (Isotherme de Langmuir généralisé)	
5.1.	Introduction	145
5.2.	Modélisations sous Code_Aster avec l'isotherme de Langmuir généralisée	147
5.2.1.	Isotherme de Langmuir généralisée.....	147
5.2.2.	Loi d'évolution de la porosité Eulérienne	149
5.2.3.	Calculs théoriques.....	151
5.2.4.	Calculs 1D sous Code_Aster	156
5.2.4.1.	Description du modèle	157
5.2.4.2.	Résultats des calculs et discussions	158

5.3. Injection du CO_2 dans un massif saturé en eau et contenant du méthane CH_4 : Calculs sous HYTEC	162
5.3.1. Introduction	162
5.3.2. Description du code HYTEC avec transport réactif	163
5.3.2.1. Description	163
5.3.2.2. Equations de transport réactif	164
5.3.2.3. Base de données	165
5.3.3. Calculs 1D sous HYTEC	165
5.3.3.1. Description et paramètres du modèle	166
5.3.3.2. Résultats et commentaires	168
5.4. Modèle couplé Code_Aster – HYTEC	178
5.4.1. Pourquoi utiliser HYTEC ?	178
5.4.2. Description et méthodologie du modèle de couplage	179
5.4.2.1. Calcul des vitesses sous Code_Aster	180
5.4.2.2. Quelques précisions techniques	181
5.5. Conclusion	183
5.6. Références bibliographiques	184
CHAPITRE 6	188

Conclusions générales et perspectives

6.1. Conclusions générales	188
6.2. Perspectives	191
Références bibliographiques générales	193
Annexes	209
<i>Résumé</i>	215
<i>Abstract</i>	216

Liste des figures

Figure 1. Centrales thermique et éoliennes. Peine, Basse-Saxe, Allemagne.....	12
Figure 2. Estimation des émissions de CO_2 du monde par région.....	13
Figure 3. Injection de CO_2 avec récupération assistée du méthane CH_4 (source BRGM).	15
Figure 4. Schéma du gonflement de la matrice et réduction de la porosité (a), du retrait de la matrice et augmentation de la porosité (b).....	16
Figure 5. Le milieu poreux vu comme la superposition de deux milieux continus: au même point géométrique coïncident une particule du squelette et une particule fluide (Coussy 1991).	22
Figure 6. Schéma de couplage Thermo-Hydro-Mécanique et Chimique (THMC).....	34
Figure 7. Schéma d'une vue en plan des deux principaux types de fractures existant dans le charbon, les fractures transversales (face cleat) et les fractures longitudinales (butt cleat). D'après Harpalani (1999).	41
Figure 8. Géométries idéalisées du système des fractures du charbon (Van Golf-Racht 1982): en (a) anisotropie (3 cleat sets) et en (b) isotropie (2 cleat sets).	42
Figure 9. Mécanismes de l'adsorption et de la désorption. D'après http://www.activatedcarbon.com/images/fig6.gif	45
Figure 10. Différents types d'isothermes selon la classification de l'IUPAC.....	46
Figure 11. Influence du coefficient de Biot b : cas théorique sans Langmuir. En a) la porosité φ et en b) le rapport de perméabilité k/k_0	75
Figure 12. Influence du module de Young drainé E_0 : cas théorique sans Langmuir. En a) la porosité φ et en b) le rapport de perméabilité k/k_0	75
Figure 13. Déformation volumique pour les trois groupes de paramètres de Langmuir.....	76
Figure 14. Influence du coefficient de Biot b sur la porosité φ pour les trois groupes de paramètres: en a) les paramètres de Palmer and Mansoori, en b) les paramètres de Connell et al., en c) les paramètres de Wu et al., et en d) une comparaison pour $b = 1$	77
Figure 15. Influence du coefficient de Biot b sur le rapport de perméabilité k/k_0 pour les trois groupes de paramètres: en a) les paramètres de Palmer and Mansoori, en b) les paramètres de Connell et al., en c) les paramètres de Wu et al., et en d) une comparaison pour $b = 1$	78
Figure 16. Influence du coefficient de Biot b : en a) sur la porosité φ et en b) sur le rapport de perméabilité k/k_0 , avec $\varepsilon_L = 0,023$ et $\beta_L = 4,4 \text{ MPa}^{-1}$	78
Figure 17. Influence du paramètre de Langmuir ε_L sur la déformation de gonflement.	79
Figure 18. Influence du paramètre de Langmuir ε_L : en a) sur la porosité φ et en b) sur le rapport de perméabilité k/k_0	80
Figure 19. Effets du paramètre de Langmuir β_L sur la déformation de gonflement.	80
Figure 20. Influence de β_L : en a) sur la porosité φ et en b) sur le rapport de perméabilité k/k_0	81
Figure 21. Influence du module de Young drainé E_0 : en a) sur la porosité φ et en b) sur le rapport de perméabilité k/k_0	82

Figure 22. Maillage du modèle 1D.	83
Figure 23. Propagation de la pression de CO_2 dans la roche: (a) sans l'isotherme de Langmuir, (b) avec l'isotherme de Langmuir.	85
Figure 24. Comparaison de la progression de gaz entre le cas sans Langmuir (SLGM) et le cas avec Langmuir (LGM) pour les durées de simulation de 10 et 100 ans.	85
Figure 25. Variations de la porosité ϕ (a, c) et du rapport de perméabilité k/k_0 (b, d) dans la roche: (a, b) sans l'isotherme de Langmuir, (c, d) avec l'isotherme de Langmuir.	86
Figure 26. Effets du coefficient de Biot b sur la propagation de la pression de CO_2 : (a, b) sans l'isotherme de Langmuir, (c, d) avec l'isotherme de Langmuir.	87
Figure 27. Effets du coefficient de Biot b sur les variations de la porosité (a, b) et sur le rapport de perméabilité k/k_0 (c, d) sans l'isotherme de Langmuir.	88
Figure 28. Effets du coefficient de Biot b sur les variations de la porosité (a, b) et sur le rapport de perméabilité k/k_0 (c, d) avec l'isotherme de Langmuir.	88
Figure 29. Effets du paramètre de Langmuir ε_L sur la propagation de la pression de CO_2 dans la roche.	89
Figure 30. Effets du paramètre de Langmuir ε_L sur les variations de la porosité (a, b) et sur le rapport de perméabilité k/k_0 (c, d).	90
Figure 31. Effets du paramètre de Langmuir β_L sur la propagation de la pression de CO_2 dans la roche.	91
Figure 32. Effets du paramètre de Langmuir β_L sur les variations de la porosité (a, b) et sur le rapport de perméabilité k/k_0 (c, d).	91
Figure 33. Effets du module de Young drainé E_0 sur la propagation de la pression de CO_2 dans la roche: (a, b) sans l'isotherme de Langmuir, (c, d) avec l'isotherme de Langmuir.	92
Figure 34. Effets du module de Young drainé E_0 sur les variations de la porosité ϕ (a, b) et sur le rapport de perméabilité k/k_0 (c, d) sans l'isotherme de Langmuir.	93
Figure 35. Effets du module de Young drainé E_0 sur les variations de la porosité ϕ (a, b) et sur le rapport de perméabilité k/k_0 (c, d) avec l'isotherme de Langmuir.	93
Figure 1. Conceptual illustration of coal fracture system: plan view.	98
Figure 2. Geometry of the 2D (plane strains) model for CO_2 injection and boundary conditions.	104
Figure 3. CO_2 pressure propagation in the rock mass: (a, c) with CO_2 dissolution, (b, d) without CO_2 dissolution, (a, b) without Langmuir's isotherm, (c, d) with Langmuir's isotherm.	106
Figure 4. Evolution of the porosity ϕ in the rock mass: (a, c) with CO_2 dissolution, (b, d) without CO_2 dissolution, (a, b) without Langmuir's isotherm, (c, d) with Langmuir's isotherm.	107
Figure 5. Evolution of the permeability ratio k/k_0 : (a, c) with CO_2 dissolution, (b, d) without CO_2 dissolution, (a, b) without Langmuir's isotherm, (c, d) with Langmuir's isotherm.	108
Figure 6. Evolution of the radial displacement: (a, c) with CO_2 dissolution, (b, d) without CO_2 dissolution, (a, b) without Langmuir's isotherm, (c, d) with Langmuir's isotherm.	108

Figure 7. Evolution of the effective radial stress: (a, c) with CO_2 dissolution, (b, d) without CO_2 dissolution, (a, b) without Langmuir's isotherm, (c, d) with Langmuir's isotherm.	109
Figure 8. . Influence of Biot's coefficient b on CO_2 pressure propagation (a, c) and on the radial displacement (b, d): (a, b) without Langmuir's isotherm, (c, d) with Langmuir's isotherm ($t = 100$ years).	110
Figure 9. Influence of Biot's coefficient b on the porosity φ (a, c) and on the permeability ratio k/k_0 (b, d): (a, b) without Langmuir's isotherm, (c, d) with Langmuir's isotherm ($t = 100$ years).	111
Figure 10. Influence of the Langmuir's parameter ε_L noted EL in the figure ($t = 100$ years): on the gas pressure propagation (a), on the radial displacement (b), on the porosity φ (c) and on the permeability ratio k/k_0 (d).	112
Figure 11. Influence of Langmuir's parameter β_L (in MPa^{-1}) noted BL in the figure ($t = 100$ years): on the gas pressure propagation (a), on the radial displacement (b), on the porosity φ (c) and on the permeability ratio k/k_0 (d).	112
Figure 12. Influence of the initial pressure of liquid P_l ($t = 100$ years): on the gas pressure propagation (a), on the radial displacement (b), on the porosity φ (c) and on the permeability ratio k/k_0 (d).	114
Figure 13. Evolution of porosity φ (a, c) and permeability ratio k/k_0 (b, d): (a, b) without Langmuir's isotherm, (c, d) with Langmuir's isotherm (dry case).	114
Figure 14. Difference of porosity ($\varphi - \varphi_0$) in rock mass ($t = 100$ years): (a) $k_0 = 10^{-18} m^2$ and (b) $k_0 = 10^{-14} m^2$ (dry case, i.e. $P_l = 0$).	115
Figure 15. Influence of drained Young modulus E_0 on CO_2 pressure propagation (a, c) and on the radial displacement (b, d): (a, b) without Langmuir's isotherm, (c, d) with Langmuir's isotherm ($t = 100$ years).	116
Figure 16. Influence of drained Young modulus E_0 on the porosity φ (a, c) and on the permeability ratio k/k_0 (b, d): (a, b) without Langmuir's isotherm, (c, d) with Langmuir's isotherm ($t = 100$ years).	117
Figure 17. Isovalues of gas pressure propagation (in Pa) from the two injection wells in rock mass: (a) for 1 year, (b) for 5 years, (c) for 10 years and (d) for 100 years.	118
Figure 18. Isovalues of the porosity variation ($\varphi - \varphi_0$) in rock mass: (a) for 1 year, (b) for 5 years, (c) for 10 years and (d) for 100 years.	119
Figure 36. Influence de la pression initiale du liquide P_l ($t = 100$ ans): sur la propagation de la pression de gaz (a), sur le déplacement radial (b), sur la porosité φ (c) et sur le rapport de perméabilité k/k_0 (d).	128
Figure 37. Influence de la pression initiale du liquide P_l ($t = 100$ ans) sur les variations de la contrainte effective radiale : (a) cas avec dissolution du CO_2 dans l'eau interstitielle et en (b) sans dissolution du CO_2 dans l'eau interstitielle.	129
Figure 38. Effets de perméabilité sur la propagation de la pression de gaz à $t = 100$ ans: en (a) sans Langmuir et en (b) avec Langmuir.	130
Figure 39. Profils des contraintes effectives radiales juste après le creusement (1jour): en (a) sans Langmuir et en (b) avec Langmuir.	130
Figure 40. Effets de la perméabilité sur l'évolution des contraintes effectives radiales à $t = 100$ ans: en (a) sans Langmuir et en (b) avec Langmuir.	131

Figure 41. Effets de la perméabilité sur l'évolution de la porosité φ à $t = 100$ ans: en (a) sans Langmuir et en (b) avec Langmuir.	131
Figure 42. Effets de la perméabilité sur l'évolution du rapport de perméabilité k/k_0 à $t = 100$ ans: en (a) sans Langmuir et en (b) avec Langmuir.	132
Figure 43. Profils théoriques des contraintes radiales et orthoradiales pour $\sigma_i = 0$: en (a) Lamé, en (b) Kirsch pour $\theta = 0^\circ$ et en (c) Kirsch pour $\theta = 90^\circ$	133
Figure 44. Profils théoriques des contraintes radiales et orthoradiales pour $\sigma_i = 7$ MPa : en (a) Lamé, en (b) Kirsch pour $\theta = 0^\circ$ et en (c) Kirsch pour $\theta = 90^\circ$	134
Figure 45. Profils des contraintes effectives après excavation suivant x (a, c) et suivant y (b, d) : en isotropie (a, b) et déviatorique (c, d).	135
Figure 46. Variations de la pression de gaz pour les cas isotrope (a) et déviatorique (b), une comparaison entre le cas isotrope et déviatorique suivant la direction x (c) et y (d).	135
Figure 47. Variations des contraintes effectives suivant x (a, c) et suivant y (b, d) : en isotropie (a, b) et déviatorique (c, d).	136
Figure 48. Évolution de la porosité pour les cas isotrope (a) et déviatorique (b), une comparaison entre le cas isotrope et déviatorique suivant la direction x (c) et y (d).	137
Figure 49. Géométrie du modèle 2D (déformation plane) pour deux (2) puits d'injection et conditions aux limites.	138
Figure 50. Propagation de la pression de gaz (Pa) au sein du massif au cours du temps.	139
Figure 51. Variations de la contrainte effective horizontale (SIXX en Pa) au cours du temps.	139
Figure 52. Variation de la contrainte effective verticale (SIYY en Pa) au cours du temps. .	140
Figure 53. Variations de la porosité ($\varphi - \varphi_0$) au cours du temps.....	140
Figure 54. L'évolution des fractions de moles de CO_2 et de CH_4 en fonction de la pression partielle du CO_2 : sans diminution de P_{CH_4} (a) et avec diminution de P_{CH_4} (b).	152
Figure 55. Profils des déformations volumiques : (a, c) pour le CO_2 , (b, d) pour le CH_4 , (a, b) sans diminution de P_{CH_4} et (c, d) avec diminution de P_{CH_4} (b).....	154
Figure 56. Profils des déformations volumiques dues simultanément aux deux gaz avec les différents types de charbon : (a) sans diminution de P_{CH_4} et (b) avec diminution de P_{CH_4} ...	154
Figure 57. L'évolution de la porosité φ (a, c) et du rapport de perméabilité k/k_0 (b, d) : (a, b) sans diminution de P_{CH_4} et (c, d) avec diminution de P_{CH_4} (b).....	155
Figure 58. Maillage 1D pour une injection de CO_2 dans un charbon saturé en CH_4 et d'eau.	157
Figure 59. Propagations de la pression du CO_2 dans le domaine au cours du temps, avec les paramètres de Langmuir du bassin Illinois.....	159
Figure 60. Variations de la porosité φ (a, c) et du rapport de perméabilité k/k_0 (b, d) au cours du temps, (a, b) juste après le creusement, avec les paramètres de Langmuir du bassin Illinois.	159
Figure 61. Propagation de la pression du CO_2 pour les quatre groupes de paramètres de Langmuir, aux instants $t = 1$ an, 5 ans, 10 ans et 100 ans.	161

Figure 62. Variations de la porosité pour les quatre groupes de paramètres de Langmuir, aux instants $t = 1$ an, 5 ans, 10 ans et 100 ans.	161
Figure 63. Variations du rapport de perméabilité k/k_0 pour les quatre groupes de paramètres de Langmuir, pour les instants $t = 1$ an, 5 ans, 10 ans et 100 ans.	162
Figure 64. Schéma de HYTEC	163
Figure 65. Exemple de maillage pour le modèle 1D avec HYTEC montrant la localisation des zones de charbon et les conditions aux limites.	166
Figure 66. Les variations des concentrations en Coal1-0 (a), en Coal1-CH4 (b) en méthane aqueux (c) au cours du temps.....	169
Figure 67. Effets de la porosité sur la concentration en Coal1-0 pour différents instants de simulation : avec une concentration massique variable.	171
Figure 68. Effets de la porosité sur la concentration en Coal1-CH4 pour différents instants de simulation : avec une concentration massique variable.	171
Figure 69. Effets de la masse volumique (MV) sur la concentration en Coal1-0 pour différents instants de simulation.	172
Figure 70. Effets de la masse volumique (MV) sur la concentration en Coal1-CH4 pour différents instants de simulation.....	173
Figure 71. Effets de la masse volumique (MV) sur la concentration du méthane (aq) pour différents instants de simulation.....	173
Figure 72. Effets de la porosité sur la concentration en Coal1-0 pour différents instants de simulation : avec une masse volumiques variable.	175
Figure 73. Effets de la porosité sur la concentration en Coal1-CH4 pour différents instants de simulation : avec une masse volumiques variable.	175
Figure 74. Effets de la porosité sur la concentration en $CH_4(aq)$ pour différents instants de simulation : avec une masse volumiques variable.	176
Figure 75. Effets des différentes concentrations du méthane sur la concentration en Coal1-0 : en (a) $[CH_4]_i = 10^{-4} \text{ mol.l}^{-1}$, (b) $[CH_4]_i = 8,5 \times 10^{-3} \text{ mol.l}^{-1}$ et en (c) $[CH_4]_i = 2 \times 10^{-2} \text{ mol.l}^{-1}$..	177
Figure 76. Effets des différentes concentrations du méthane sur la concentration en Coal1-CH4 : en (a) $[CH_4]_i = 10^{-4} \text{ mol.l}^{-1}$, (b) $[CH_4]_i = 8,5 \times 10^{-3} \text{ mol.l}^{-1}$, en (c) $[CH_4]_i = 2 \times 10^{-2} \text{ mol.l}^{-1}$	177
Figure 77. Effets des différentes concentrations du méthane sur la concentration en $CH_4(aq)$: en (a) $[CH_4]_i = 10^{-4} \text{ mol.l}^{-1}$, (b) $[CH_4]_i = 8,5 \times 10^{-3} \text{ mol.l}^{-1}$ et en (c) $[CH_4]_i = 2 \times 10^{-2} \text{ mol.l}^{-1}$..	178
Figure 78. Schéma de couplage Code_Aster – HYTEC.	179
Figure 79. Schéma des différents maillages pour le couplage : en (a) maillage Voronoï, en (b) maillage triangulaire et en (c) un exemple de superposition du maillage de Voronoï (en rouge) et de sa triangulation de Delaunay (en noir).....	182

Liste des tableaux

Tableau 1. Classification des charbons arrêtée par la Communauté Européenne du Charbon et de l'Acier CECA (http://sfp.in2p3.fr/Debat/debat_energie/websfp/LE%20CHARBON.htm).	43
Tableau 2. Perméabilités des charbons dans la littérature	59
Tableau 3. Paramètres de Langmuir des charbons dans la littérature.	60
Tableau 4. Les trois différents groupes de paramètres de Langmuir utilisés dans nos calculs.	76
Tableau 5. Paramètres utilisés pour l'étude de l'influence du paramètre de Langmuir ε_L	79
Tableau 6. Paramètres utilisés pour l'étude de l'influence du paramètre de Langmuir β_L	80
Tableau 7. Paramètres utilisés pour l'étude de l'influence du module de Young E_0 : cas avec Langmuir.	81
Tableau 8. Les différents paramètres du modèle 1D.	84
Table 1. Values for coal used in the numerical modeling.	105
Table 2. Different kinds of simulations for the parametric study.	105
Tableau 9. Les paramètres de Langmuir utilisés dans le cas CO_2-CH_4	153
Tableau 10. Valeurs des paramètres du modèle numérique 1D.	158
Tableau 11. Paramètres utilisés pour le calcul 1D avec HYTEC.	168

CHAPITRE 1

Introduction générale

1.1. Contexte

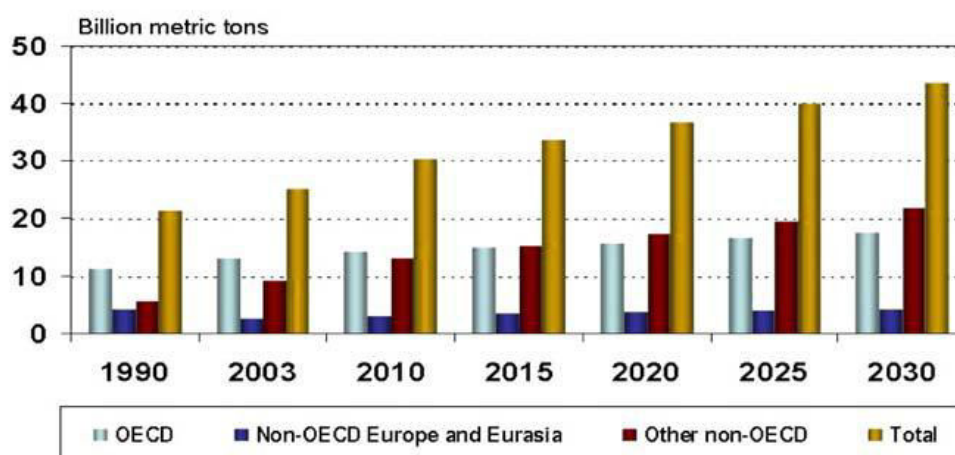
Depuis 1750 (la révolution industrielle du XVIII^e siècle), l'activité humaine a eu un effet considérable sur l'augmentation de la température du globe. En effet, le développement économique depuis ce siècle s'est reposé sur l'usage intensif des sources d'énergie fossiles comme le pétrole, le gaz naturel, l'uranium, le charbon etc., qui fournissent de l'énergie nécessaire pour le développement de l'industrie et le transport. Bien que nécessaire pour le développement, cette utilisation des sources d'énergie fossiles ne reste sans conséquences négatives sur l'environnement : leurs combustions dégagent du dioxyde de carbone CO_2 , gaz impliqué dans le processus de l'effet de serre. Par exemple les centrales au charbon émettent des centaines de milliers de tonnes de CO_2 dans l'atmosphère chaque mois. La Figure 1 montre un exemple de centrales thermique et éoliennes (Basse-Saxe, Allemagne) dégageant une immense fumée de CO_2 dans l'atmosphère. Pour cela, les gaz impliqués dans le processus de l'effet de serre (le dioxyde de carbone CO_2 , le méthane CH_4 , l'oxyde nitreux encore appelé protoxyde d'azote ou hémioxyde d'azote N_2O) ont vu leurs concentrations atmosphériques augmenter. D'après le National Energy Technology Laboratory (USA), plusieurs milliards de tonnes métriques de gaz à effet de serre ont été émis dans le monde : 30 milliards de tonnes métriques en 2010 et une estimation de plus de 40 milliards de tonnes métriques d'ici 2030 (voir Figure 2).



Figure 1. Centrales thermique et éoliennes. Peine, Basse-Saxe, Allemagne.

Pour le CO_2 , sa concentration est passée de 280 ppm avant la révolution industrielle à une concentration de 385 ppm en 2007, 395 ppm en 2012 et continue d'augmenter dans l'atmosphère. Cette augmentation de la teneur en CO_2 de ces dernières décennies est due en grande partie du développement industriel de pays émergents comme la Chine et d'une forte

augmentation de la combustion de charbon. Cette augmentation de concentrations va alors augmenter la température du globe. Le chimiste suédois Svante August Arrhenius (19 février 1859 – 2 octobre 1927, prix Nobel de chimie en 1903) avait d'ores et déjà établi qu'une augmentation de la concentration en CO_2 atmosphérique devrait provoquer une hausse des températures terrestres. Cette hausse était d'un degré le siècle dernier et les prévisions pour la période de 1980 – 2090 envisagent une augmentation de 1,8 à 4 degrés. Cette augmentation de température ne restera pas sans effet sur l'environnement. En effet, elle intensifie le phénomène d'effet de serre, qui cause un changement climatique qui a et aura de nombreux impacts sur l'environnement et les activités humaines. Selon les scientifiques, le surplus d'effet de serre dû aux activités humaines a joué un rôle déterminant dans le réchauffement climatique des dernières décennies. Par exemple dans les rapports du Groupe d'expert d'Intervention sur l'Evolution du Climat (GIEC) créée en 1988 par l'ONU, en particulier dans son quatrième rapport de synthèse publié en 2007, on peut lire l'affirmation suivante : l'essentielle de l'élévation de la température moyenne du globe observée depuis le milieu du XX^e siècle est très probablement attribuable à la hausse des concentrations de gaz à effet de serre (GES) anthropiques, c'est-à-dire d'origine humaine (<http://www.ipcc.ch/pdf/assessment-report/ar4/syr/ar4syrfr.pdf>). D'autres organisations scientifiques telles que la NASA et l'organisation météorologique mondiale dressent des constats similaires. Cette hausse de concentrations de GES a conduit au chimiste et météorologue néerlandais Paul Josef Crutzen, prix Nobel de chimie en 1995, a baptisé cette ère d'Anthropocène (terme créé et utilisé par certains scientifiques pour désigner une époque géologique qui aurait débuté à la fin du XVIII^e siècle avec la révolution industrielle).



Source: Energy Information Administration, *International Energy Outlook 2006*, DOE/EIA-0484, June 2006

Figure 2. Estimation des émissions de CO_2 du monde par région.

Outre l'industrie, d'autres activités humaines favorisent les rejets de gaz à effet de serre ou ont la capacité de provoquer des modifications importantes de l'environnement terrestre. Il s'agit de l'agriculture (utilisation d'engrais agricoles azotés qui augmente la concentration en protoxyde d'azote N_2O dans l'atmosphère), de l'évolution démographique, des transports, de l'urbanisation, de la déforestation (qui réduit la capacité de l'écosystème à absorber le CO_2), des forêts artificielles, de la fragmentation écologique, de la réduction ou destruction des habitats, de la surpêche, des pollutions etc.

Afin de limiter ce réchauffement de la planète terre, une des solutions est de réduire les émissions de CO_2 anthropique, le plus important des six gaz (CO_2 , CH_4 , l'oxyde nitreux N_2O ,

l'hexafluorure de soufre SF_6 , les hydrofluorocarbures HFC et les perfluorocarbures PFC ou hydrocarbures perfluorés) à effet de serre retenus en 1997 par le protocole de Kyoto (traité international visant à la réduction des gaz à effet de serre signé le 11 décembre 1997) dont la concentration n'a cessé d'augmenter depuis l'ère industrielle, dans le monde. Les rejets anthropiques de ce gaz, essentiellement par la combustion des énergies fossiles qui fournissent 75 % de l'énergie mondiale, sont actuellement d'un ordre de grandeur supérieure aux émissions dues au volcanisme et aux processus métamorphiques, ainsi qu'à la consommation de CO_2 par les processus géologiques. Cette réduction peut donc passer par la réduction de la consommation des énergies fossiles (gaz, pétrole, charbon...), le développement des énergies renouvelables (énergie solaire, énergie photovoltaïque, énergie éolienne, énergie hydraulique...) et le nucléaire, le développement de l'énergie hydrogène (pile à combustible) ou par la capture et le stockage de CO_2 . Le charbon, dont l'utilisation progresse le plus dans le monde ces temps-ci à cause de la Chine, de l'Inde, de la Russie, de l'est de l'Europe etc., est la pire des énergies en ce qui concerne les émissions de CO_2 . Afin de continuer à l'utiliser, le monde doit donc être capable de créer un cycle du charbon où l'on réinjecterait dans le sous-sol tout le CO_2 qu'on extrairait des centrales de charbon. Dans ce cas, on aurait alors au moins une solution temporaire bénéfique pour l'environnement. La réduction par la capture et le stockage sera donc la bienvenue. Afin donc de contrôler le CO_2 et ses déplacements, il faut donc des recherches pour savoir à quel point cette technologie est sûre. Ces recherches permettront aussi de vérifier l'étanchéité, de savoir à quelle pression faut-il faire l'injection (i.e. quelle pression les roches peuvent supporter), de savoir quelle quantité de CO_2 peut-on leur faire absorber etc. Car si la pression est trop forte, les roches peuvent se fracturer, et cela peut entraîner une explosion souterraine et une remontée du gaz vers la surface. Il faut donc mettre au point un dispositif qui permettra de traiter le problème de CO_2 de la source jusqu'à son enfouissement pour continuer à utiliser le charbon et rendre son exploitation « écologiquement compatible ».

C'est dans cette optique que le stockage géologique a vu le jour. Ce stockage peut se faire dans les gisements d'hydrocarbures (huile et gaz) déplétés avec récupération assistée, dans les aquifères profonds (confinés ou infinis) ou encore dans les veines de charbon. C'est dans cet ordre d'idées que Holloway (*Holloway 1997*) avait souligné que l'un des moyens de réduire le taux de CO_2 atmosphérique est de l'injecter dans les réservoirs structuraux des formations géologiques profondes perméables. Dans le cas du stockage de CO_2 dans les veines de charbon des gisements profonds et inexploitable, celui-ci offre à la fois la sûreté du stockage et la possibilité de récupérer le méthane initialement contenu (*Fulton 1980, Reznik et al. 1984, Arri et al. 1992, etc.*). Ce déplacement de méthane par le CO_2 est dû à la sorption préférentielle du CO_2 par rapport au méthane CH_4 à la pression d'injection. La fameuse technique est connue sous le nom de 'the Enhanced Coalbed Methane (ECBM)' qui consiste à une injection du CO_2 dans les veines de charbon avec une récupération assistée du méthane CH_4 (*Reeves et al. 2003; Reeves et al. 2004; Gunter et al. 2005; Jackson 2006; Van et al. 2006; Ross et al. 2009*). L'ECBM est donc défini comme le procédé visant à injecter un gaz ou un mélange gazeux dans une veine de charbon dans le but d'accélérer la désorption du méthane (Coalbed Methane - CBM) et d'augmenter la quantité de CH_4 récupéré. La Figure 3 montre un exemple de cette technique (source BRGM) avec deux puits : un puits d'injection du CO_2 capturé et un puits de production et de purification du méthane.

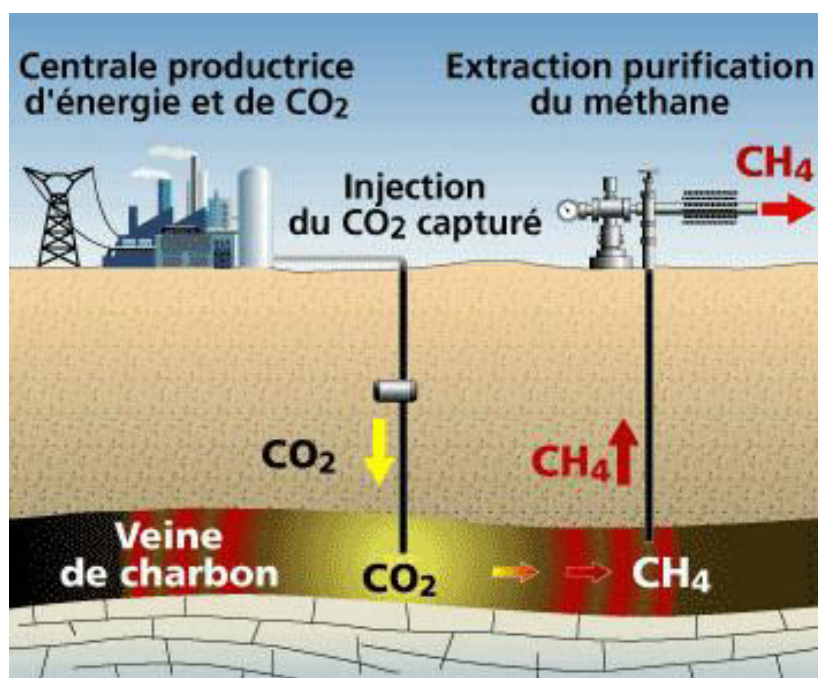


Figure 3. Injection de CO_2 avec récupération assistée du méthane CH_4 (source BRGM).

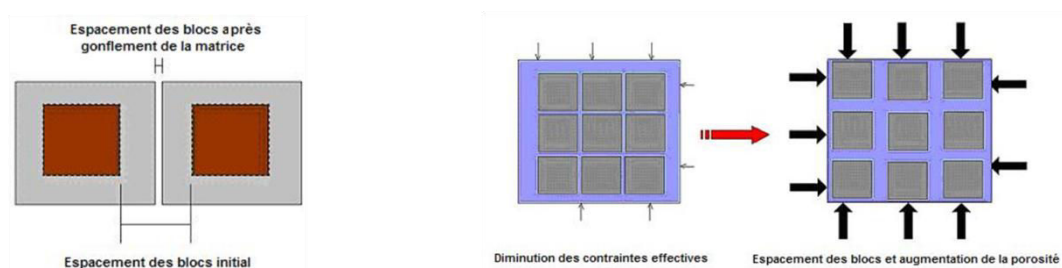
Le fait qu'injecter du CO_2 dans des veines de charbon soit une option fiable pour compenser les émissions de CO_2 mondiales (Benson et al. 1998) a suscité l'intérêt et engendré un développement des connaissances du charbon, de ses propriétés, de ses capacités d'adsorption et de ses interactions avec le CO_2 . C'est dans ce sens que certains projets de part le monde ont vu le jour. RECOPL (Reduction of CO_2 emission by means of CO_2 storage in coal seams in the Silesian Coal Basin of Poland) qui est le projet européen (première expérience de démonstration sur le terrain européen) avait cependant pour objectif principal de démontrer que l'injection du CO_2 dans le charbon dans les conditions européennes est faisable, et prouver aussi que le stockage du CO_2 est une solution sûre et permanente. Cela permettra alors de faire des applications à plus grande échelle et de manière socialement acceptable. En France on peut noter la naissance du projet ANR Géocarbonate INJECTIVITE pour l'étude de la réactivité de roches carbonatées soumises à l'injection de CO_2 , le projet ANR Géocarbonate INTEGRITE pour l'étude de l'intégrité (étanchéité) des roches de couverture soumises à une percolation du CO_2 et le projet ANR CHARCO pour l'expérimentation et la modélisation de l'échange de gaz dans les charbons en vue d'un stockage du CO_2 .

1.2. Problématique

La séquestration géologique du CO_2 reste aujourd'hui l'alternative la plus sûre tant en terme de durée et de capacité de stockage qu'en terme de coût. Les besoins en recherche et en développement restent néanmoins importants pour valider ce concept et déterminer la part qu'il pourra prendre dans les bilans globaux. Il faut par exemple déterminer la capacité des charbons à contenir le gaz. C'est dans ce sens que certaines études ont montré que la capacité d'adsorption des gaz par le charbon dépendait de sa composition macérale et plus précisément de sa fraction organique (Crosdale et al. 1998, Laxminarayana et al. 1999, les travaux de CHARCO (Défossez 2008)). Pour que la séquestration géologique soit efficace, il faut aussi sûrement assurer la durabilité d'un tel type de stockage et vérifier ses risques éventuels à long terme. L'injection du CO_2 peut par exemple perturber les propriétés pétro-physiques (porosité et perméabilité) et mécaniques (déformabilité, rupture) et induire des transformations minéralogiques. Dans le cas de l'injection de CO_2 dans le charbon, les modifications des

propriétés pétro-physiques (porosité, perméabilité) sont dues à deux mécanismes principaux qui agissent de façon opposée :

- L'injection de CO_2 sous pression va induire le gonflement de la matrice rocheuse dû au processus d'adsorption. Ce gonflement va ainsi réduire l'espacement entre les blocs matriciels, ce qui va conduire à une diminution substantielle de la porosité et de la perméabilité du charbon. Cette modification est connue sous le nom de mécanisme physico-chimique de gonflement matriciel et de réduction de porosité associé (voir Figure 4a).
- L'injection du CO_2 sous pression va induire une contraction de la matrice due aux variations des contraintes effectives. Cette contraction de la matrice va augmenter les espacements entre les blocs matriciels et donc augmenter la porosité du charbon. C'est le couplage Hydro-Mécanique d'augmentation de la porosité (voir Figure 4b).



(a) Mécanisme physico-chimique de gonflement matriciel et de réduction de porosité associé.

(b) Mécanisme Hydro-Mécanique d'augmentation de la porosité.

Figure 4. Schéma du gonflement de la matrice et réduction de la porosité (a), du retrait de la matrice et augmentation de la porosité (b).

L'injection du CO_2 dans le charbon modifie donc certaines propriétés de ce dernier. Le gonflement du charbon lié à l'injection du CO_2 ou de méthane CH_4 (Levine 1996, Ottiger et al. 2008) réduit significativement la perméabilité de la roche. Le CO_2 introduit dans le charbon agit comme un plastifiant qui favorise le réarrangement des molécules, ce qui peut modifier la structure du charbon et conduire à une réduction de sa perméabilité (Karacan 2003).

Généralement, le transport dans les roches se fait par la loi d'écoulement de Darcy. Cependant, les charbons ont une caractérisation particulière du fait de leur propriété de roches réservoir à double porosité, avec la présence de micropores et des macropores. Ces caractéristiques des charbons seront données dans le chapitre 3 de ce manuscrit. Pour cela, deux lois de transport seront donc nécessaires afin de décrire le transport de gaz dans les charbons. Les lois souvent utilisées sont celle de Darcy pour décrire l'écoulement de fluides dans les fractures et celle de Fick pour décrire la diffusion dans les micropores.

Un autre phénomène reconnu comme le principal mécanisme de production ou de séquestration de gaz dans les charbons (ex Wu et al. 2010) est à prendre en compte : le phénomène de sorption. Les mécanismes de ce phénomène seront donnés aussi dans le chapitre 3. Il est le plus souvent décrit dans les modélisations par l'isotherme de sorption de Langmuir (voir aussi chapitre 3).

De nos jours, plusieurs chercheurs ont établi des modèles de perméabilité-porosité des charbons permettant de décrire les différents phénomènes inclus dans le processus d'extraction/stockage de gaz des veines de charbon (Gray 1987 ; Harpalani and Zhao 1989 ; Palmer and Mansoori 1998 ; Cui and Bustin 2005 ; etc.). Ces modèles sont brièvement décrits dans le chapitre 3.

1.3. Objectifs et plan de la thèse

Le travail de thèse que nous présentons ici a été fait à l'université de Lorraine, au sein du laboratoire GeoRessources (équipe Hydrogéomécanique Multi-échelle) et s'inscrit dans le cadre d'un contrat doctoral.

La thèse a pour premier objectif de traduire en termes de modèles phénoménologiques les comportements et les couplages chimio-poromécaniques des roches réservoir de type charbon. Des essais de percolation de CO_2 réalisés au LAEGO (Laboratoire Environnement, Géomécanique & Ouvrage), actuellement GéoRessources, sur les roches réservoir (calcaire, grès, charbon) ont fourni de nombreuses informations sur les couplages THMC (Thermo-Hydro-Mécanique et chimique) (Gaucher *et al.* 2011 ; Grgic 2011a, b). Dans le cadre du charbon, l'impact du CO_2 sera traduit en termes de modèles homogénéisés (un modèle pour l'injection simple de CO_2 et un autre modèle permettant de modéliser la récupération assistée du méthane CH_4) prenant en compte l'écoulement (conductivité hydraulique) du CO_2 et son adsorption.

Le deuxième objectif de la thèse consiste à implanter ces modèles de comportement chimio-poromécaniques dans un code de calcul aux éléments finis, un code d'analyse de calcul de structures entièrement couplé THM, Code_Aster, développé par Electricité De France (EDF). Ces modèles de comportement serviront finalement de base à des simulations numériques à l'échelle d'un site de pilote de stockage. Dans le cas d'une récupération assistée du méthane CH_4 , un couplage du Code_Aster et un code de transport réactif (HYTEC, développé par MINES Paris Tech) sera nécessaire pour le calcul des pressions partielles des deux gaz (CO_2 et CH_4). Un travail de développement numérique sur les codes de calcul sera alors nécessaire afin de prendre en compte les écoulements multiphasiques.

On s'intéressera beaucoup plus dans nos modélisations aux deux mécanismes décrits précédemment (Figure 4), à l'impact des propriétés Hydro-Mécaniques de la roche et des paramètres de l'isotherme de Langmuir sur la réponse de la roche (charbon) suite à l'injection de CO_2 .

Le chapitre 2 décrit en premier lieu le comportement Thermo-Hydro-Mécanique (THM) des milieux poreux. En passant par la définition d'un milieu poreux, il décrit les lois qui nous sont nécessaires dans nos modélisations : loi de Darcy, de Fick, de Henry, le modèle de Mualem Van-Genuchten etc. Ensuite, seront présentés quelques rappels sur les couplages Thermo-Hydro-Mécaniques et Chimiques (THMC). Les interactions (les différents couplages) entre les différents phénomènes physiques (Température, Hydrique, Mécanique et Chimique) impliqués dans le processus de stockage seront données.

Le chapitre 3 est consacré à une description bibliographique sur les modélisations du stockage géologique du CO_2 en général, et dans le charbon en particulier. Un rappel sur la structure et les propriétés des charbons, du transport de fluides et les phénomènes de sorption, sera donné. Mais la majeure partie sera consacrée aux équations des modèles de perméabilité-porosité des charbons existants. Un point sur les grandeurs des paramètres de Langmuir et de la perméabilité des charbons dans la littérature sera présenté.

Le chapitre 4 est consacré au développement du modèle de porosité prenant en compte le phénomène d'adsorption et son implémentation dans Code_Aster. Pour des raisons de simplicité, le charbon sera considéré comme un milieu isotrope dans notre modèle. Nous donnerons quelques résultats théoriques du modèle qui concerneront surtout l'effet du coefficient de Biot et des paramètres de Langmuir. Les mêmes résultats seront donnés avec les calculs numériques 2D sous Code_Aster ainsi que l'effet de la perméabilité intrinsèque et

celui des propriétés hydromécaniques de la roche. Dans la plupart de ces calculs, le charbon est considéré comme étant saturé d'eau. L'effet de la pression initiale de l'eau interstitielle sur la réponse du charbon suite à l'injection de CO_2 est testé et le cas d'un charbon sec (pression initiale de l'eau interstitielle nulle) sera aussi présenté. Deux lois de comportement seront utilisées dans le cas d'un charbon saturé en eau : une prenant en compte la dissolution du CO_2 dans l'eau interstitielle et l'autre ne prenant pas en compte cette dissolution. Ceci nous permettra de mettre en évidence l'importance de la prise en compte de la dissolution du CO_2 dans l'eau interstitielle au cours d'une injection. Un cas de calcul avec deux puits d'injection sera aussi présenté dans ce chapitre.

Dans le chapitre 5 nous supposons un charbon saturé en eau et en méthane (généralement sous forme adsorbée) et nous injecterons du CO_2 . Un nouveau modèle sera alors établi prenant en compte la présence de deux gaz (le CH_4 devrait se désorber avec l'injection du CO_2). L'utilisation de l'isotherme d'adsorption de Langmuir généralisé (pour deux gaz dans notre cas) est cependant indispensable. Le nouveau modèle de porosité sera aussi implémenté dans Code_Aster pour nos simulations numériques. Quelques résultats théoriques et numériques 1D sous Code_Aster seront donnés. A cause des limites de fonctionnalité de Code_Aster, les résultats que nous présenterons dans ce chapitre ne prendront pas en compte la diminution de la pression du CH_4 suite à sa désorption : le Code_Aster à lui seul ne pouvant pas gérer les variations de pression de plusieurs gaz. Pour cela, et compte tenu de l'effet de la diminution de la pression de CH_4 suite à sa désorption, le cas 2D d'injection de CO_2 et de récupération de CH_4 n'est pas présenté dans ce travail. Cependant, afin d'atteindre notre objectif, un autre code, HYTEC (un code de transport réactif) est utilisé pour pouvoir gérer ces variations simultanées des deux gaz (CO_2 , CH_4). Avec ce dernier, quelques résultats de calculs d'injection d'une solution de CO_2 dans un massif saturé en méthane seront donnés. Le phénomène de sorption sera simulé à une réaction chimique entre les sites de sorption du charbon et les gaz (CO_2 , CH_4). Le travail de couplage entre Code_Aster et HYTEC pour l'étude d'une injection du CO_2 dans le charbon avec une récupération assistée du méthane CH_4 , est un projet en collaboration avec l'Ecole des Mines ParisTech de Fontainebleau (développeur du code HYTEC). Cependant, le développement dans HYTEC (par Mines ParisTech) n'étant pas fini à temps pour nos modélisations, ce projet de couplage HYTEC/ASTER n'a pas pu être mené à son terme. Néanmoins, une description détaillée de la technique de couplage prévu à cet effet entre les deux codes (Code_Aster – HYTEC) afin de simuler l'injection de CO_2 et la récupération assistée du méthane CH_4 sera donnée en fin de chapitre 5. Ainsi, les simulations couplées HYTEC/ASTER d'injection du CO_2 dans le charbon avec une récupération assistée du méthane CH_4 , sont les premières perspectives de cette thèse.

Dans le chapitre 6, nous présenterons les conclusions générales de ce travail de thèse ainsi que les perspectives.

1.4. Références bibliographiques

Arri, L. E., Yee, D., Morgan, W.D. and Jeansonne, M.W., 1992. “*Modelling Coalbed Methane Production with Binary Gas Sorption.*” Casper, WY, SPE Paper No 24363. Proceedings of the Rocky Mountain Regional Meeting of the Society of Petroleum Engineers. PP 459–472.

Benson, S. M., Chandler W., Edmonds, J., Houghton, J., Levine, M., Bates, L., Chum, H., Dooley, J., Grether, D., Logan, J., Wiltsee, G., Wright, L., 1998. Assessment of Basic Research Needs for Greenhouse Gas Control Technologies.

- Crosdale, P. J., B. Beamish, and M. Valix**, 1998. "Coalbed Methane Sorption Related to Coal Composition." *Int. J. Coal Geology* 35 (1–4): 147–158. doi:10.1016/S0166-5162(97)00015-3.
- Cui, X., and R. M. Bustin**. 2005. "Volumetric Strain Associated with Methane Desorption and Its Impact on Coalbed Gas Production from Deep Coal Seams." *AAPG Bull* 2005; 89:1181-202.
- Défossez P.D.C.**, 2008. *Caractérisation de charbons en vue de leur utilisation dans le cadre du stockage du CO₂*, Rapport n° 1 du projet CHARCO. Rapport BRGM/RP-56017 FR.
- Fulton, P. F., Parente, C.A., Rogers, B.A., Shah, N., Reznik, A.A.**, 1980. *Society of Petroleum Engineers journal*: 65.
- Gaucher, E.C., Défossez, P.D.C., Bizi, M., Bonijoly, D., Disnar, J.-R., Laggoun Défarge, F., Garnier, Ch., Finqueneisel, G., Zimny, T. Grgic, D., Pokryszka, Z., Lafortune, S. & Vidal Gilbert, S.** (2011). "Coal laboratory characterisation for CO₂ geological storage". *Energy Procedia*, Vol. 4, 3147-3154. *Greenhouse Gas Control Technologies 10*, Proceedings of the 10th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies (GHGT-10), 19- 23 September 2010, RAI Amsterdam, The Netherlands. Présentation poster.
- Gray, I.** 1987. "Reservoir Engineering in Coal Seams: Part 1 – the Physical Process of Gas Storage and Movement in Coal Seams". In: Paper SPE 12514, *SPE Reservoir Engineering* (February 1987): pp. 28–34.
- Grgic, D.**, 2011a. "Mechanical and petrographical evolutions of a carbonate rock during injection of CO₂". *Energy Procedia*, Vol. 4. *Greenhouse Gas Control Technologies 10*, Proceedings of the 10th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies (GHGT- 10), 19-23 September 2010, RAI Amsterdam, The Netherlands. Présentation poster.
- Grgic, D.**, 2011b. "The influence of CO₂ on physico-chemical and mechanical properties of an oolitic limestone". *J. Geophys. Res. B: Solid Earth*, article number: 2010JB008176.
- Gunter, W. D., M. J. Mavor, and J. R. Robinson**, 2005. "CO₂ Storage and Enhanced Methane Production: Field Testing at Fenn-Big Valley, Alberta, Canada, with Application". In *Greenhouse Gas Control Technologies 7*, edited by E.S. Rubin, D.W. Keith, C.F. Gilboy, M. Wilson, T. Morris, D.W. Keith J. Gale and Thambimuthu K (eds.). Elsevier Science Ltd: Oxford; 413–421.
- Harpalani, S., Zhao, X.**, 1989. "An investigation of the effect of gas desorption on gas permeability". *Proceedings of the Coalbed Methane Symposium*, University of Alabama, Tuscaloosa, Alabama, pp. 57–64.
- Holloway, S.**, 1997. "An overview of the underground disposal of carbon dioxide". *Energy Convers. Manag.* 38, 193-198.
- Jackson, G.**, 2006. "CO₂ enhanced methane and reduced water production in high permeability, under-saturated coal seams - a modeling study". In: Gale, J., Rokke, N., Zweigel, P., Swenson, H. (Eds.), *Proceedings of Eighth International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies*. Elsevier Ltd, Oxford (CD-ROM).
- Karacan C.O.**, 2003: "Heterogeneous sorption and swelling in a confined and stressed coal during CO₂ Injection". *Energy & Fuel*. 17. 1595-1608.
- Laxminarayana, C., Crosdale, P.J.**, 1999. "Role of coal type and rank on methane sorption characteristics of Bowen Basin, Australia coals". *Int. J. Coal Geology* 40, 309–325.

Levine, J.R., 1996. “*Model study of the influence of matrix shrinkage on absolute permeability of coal bed reservoirs*”. Geological Society, London, Special Publications 109 (1), 197–212.

National Energy Technology Laboratory (USA). “*Carbon sequestration technology Roadmap and Program Plan 2007*”. http://www.netl.doe.gov/technologies/carbon_seq/refshelf/project%20portfolio/2007/2007roadmap.pdf ; 2007 [accessed 10.31.10].

Ottiger S., Pini R., Stirti G., and Mazzotti M., 2008. “*Competitive adsorption equilibria of CO₂ and CH₄ on a dry coal*”. Adsorption 14, 539-556.

Palmer, I., and J. Mansoori. 1998. “*How Permeability Depends on Stress and Pore Pressure in Coalbeds: A New Model*”. In: Paper SPE 52607, SPE Reservoir Evaluation & Engineering (December): 539–544.

Reeves, S., Taillefert, A., Pekot, L. and Clarkson, C., 2003. “*The Allison Unit CO₂ — ECBM Pilot: a Reservoir MODELING Study*”. Topical Report, U.S. Department of Energy, DE-FC26- ONT40924.

Reeves, S.R., Davis, D.A. and Oudinot, A.Y, 2004. “*A Technical and Economic Sensitivity Study of Enhanced Coalbed Methane Recovery and Carbon Sequestration in Coal*”. Topical Report, U.S. Department of Energy, DE-FC26-ONT40924.

Reznik, A.A., Singh, P.K. and Foley, W.L., 1984. “*An analysis of the effect of CO₂ injection on the recovery of in-situ methane from bituminous coal: an experimental simulation*” *Society of Petroleum Engineers Journal*: 521–528.

Ross, H. E., P. Hagin, and M. D. Zoback, 2009. “*CO₂ Storage and Enhanced Coalbed Methane Recovery: Reservoir Characterization and Fluid Flow Simulations of the Big George Coal, Powder River Basin, Wyoming, USA*”. *International Journal of Greenhouse Gas Control* 3 (6): 773–786. doi:10.1016/j.ijggc.2009.06.002.

Van, Bergen, F., Pagnier, H., and Krzystolik, P., 2006. “*Field Experiment of CO₂ ECBM in the Upper Silesian Basin of Poland*”. *Proceedings of the 8th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies*. IEA Greenhouse Gas Program, Cheltenham, UK.

Wu Y., J. Liu, D. Elsworth, Z. Chen, L. Connell, and Z. Pan, 2010. “*Dual Poroelastic Response of a Coal Seam to CO₂ Injection*”. *International Journal of Greenhouse Gas Control* 4 (4): 668–678. doi:10.1016/j.ijggc.2010.02.004.

Modélisation des couplages Thermo-Hydro-Mécaniques (THM) dans les roches poreuses

2.1. Introduction

Le stockage du CO_2 dans les formations géologiques profondes nécessite la connaissance des phénomènes physiques impliqués dans ce processus. Ces phénomènes sont entre autres la thermique, l'hydrique, la mécanique et la chimie. **La Thermique** est l'un des cinq facteurs (nature des réactifs, surface de contact, concentration, la température de la réaction et effet d'un catalyseur) qui influencent sur la vitesse d'une réaction chimique. La température augmente en accélérant les réactions chimiques, en rendant de nombreux solides plus ductiles (dilatation de la roche) et provoquant aussi des changements d'états. La variation de la pression de gaz (**Hydrique**) dans la roche entrainera une variation de la pression interstitielle. Cette dernière va ainsi agir sur le comportement de la roche, particulièrement sur ses propriétés mécaniques. Cela dépendra aussi de la pression d'eau contenue dans la roche. Plus elle est grande, plus on assiste à des changements de phase. Mais la technique de stockage nécessite au préalable le creusement (**Mécanique**) d'un puits d'injection. Lors de ce creusement, on assistera à une variation des déformations de la roche, donc une variation des contraintes mécaniques. Ces variations des propriétés mécaniques de la roche (nous le verrons tout au long de ce manuscrit) auront des effets sur d'autres propriétés de la roche, en particulier celles pétro-physiques (porosité et perméabilité). Cependant, une fois le CO_2 en contact avec la roche (par exemple dans le cas du calcaire), des réactions chimiques peuvent se produire (**Chimie**). Dans le cas des charbons (pour l'injection du CO_2) la réaction chimique la plus rencontrée est celle (par solvatation) entre l'eau H_2O et le dioxyde de carbone CO_2 , donnant naissance à l'acide carbonique H_2CO_3 . Ce dernier libérera à son tour des ions H^+ et HCO_3^- . Cependant, dans cette thèse qui ne concerne que le charbon, nous ne traitons que de la physico-chimie (i.e., utilisation de l'isotherme de Langmuir).

Dans la première partie de ce chapitre, nous décrivons le comportement Thermo-Hydro-Mécanique (THM) des milieux poreux. Concernant le transport de fluides dans un milieu poreux, nous donnons les lois qui nous sont nécessaires dans nos modélisations : loi de Darcy, de Fick, de Henry, le modèle de Mualem Van-Genuchten etc. Nous donnons aussi quelques équations du fluide saturant, les équations d'état linéarisées du comportement thermo-poro-élastique linéaire. Dans la deuxième partie du chapitre, quelques rappels des couplages Thermo-Hydro-Mécaniques et Chimiques sont donnés (sans trop aller dans les détails) avec les différents couplages entre la température, l'hydrique, la mécanique et la chimie.

2.2. Comportement Thermo - Hydro - Mécanique (THM) des milieux poreux

2.2.1. Définition d'un milieu poreux

Un milieu poreux est une superposition de deux milieux en interaction, l'un appelé matrice et l'autre fluide. La matrice encore appelée squelette, est constituée d'une partie solide et d'un espace poreux occlus appelé porosité occluse. Le fluide quant à lui est un espace poreux connecté appelé porosité connectée. La Figure 5 montre un milieu poreux comme superposition de deux milieux d'après Coussy (Coussy 1991).

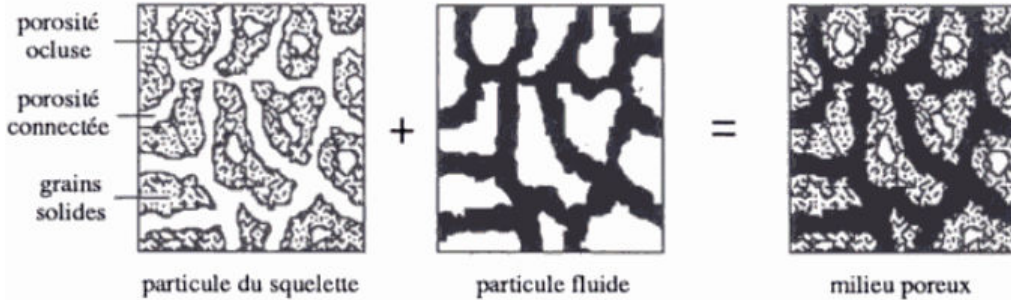


Figure 5. Le milieu poreux vu comme la superposition de deux milieux continus: au même point géométrique coïncident une particule du squelette et une particule fluide (Coussy 1991).

De cette définition ressort qu'un milieu poreux comprend deux types de porosités : une porosité occluse et une porosité connectée. La porosité occluse appelée encore porosité fermée est celle par laquelle aucun échange de matière fluide avec l'extérieur n'est possible. La porosité connectée, appelée aussi porosité ouverte, est par opposition à la porosité occluse ou fermée, l'intermédiaire par laquelle s'effectuent les échanges de matières fluide avec l'extérieur. La porosité occluse n'étant pas accessible par les agents extérieurs, dans la suite la porosité désignera alors celle connectée.

2.2.2. Elasticité linéaire

Dans cette partie sont données, la théorie de l'élasticité linéaire et l'équation de Navier. Il existe plusieurs méthodes expérimentales pour caractériser les paramètres élastiques. Mais celles-ci ne sont pas données dans ce chapitre. Le lecteur pourra s'il le désire, se référer à la littérature (ex : Jaeger and Cook 1979 ; Coussy 1991).

2.2.2.1. Le tenseur de déformations (Cauchy et Green-Lagrange)

En introduisant la notion de vitesse des particules qui forment le milieu, le tenseur de déformations se caractérise de façon naturelle en fonction de la vitesse d'une particule par (modèle de Cauchy) :

$$\varepsilon_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \quad (2-1)$$

Avec x_i la $i^{\text{ème}}$ direction du repère, u_k le déplacement dans la direction k et ε_{ij} les composantes du tenseur de déformations. Pour les solides déformables, les déformations sont caractérisées par un champ de tenseur dit de Green-Lagrange (deux systèmes de coordonnées sont définis et liés à deux repères différents dans ce cas : un repère fixe dans lequel sont mesurées les

positions de points et un repère local lié au matériau. Ces deux différentiels coïncident à une transformation rigide en l'absence de déformation), exprimé de façon non linéaire par rapport aux dérivées partielles du déplacement.

$$\varepsilon_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} + \sum_{k=1}^3 \frac{\partial u_k}{\partial x_i} \frac{\partial u_k}{\partial x_j} \right) \quad (2-2)$$

Pour des déplacements lents (le cas des milieux solides qui se déforment lentement), les termes quadratiques (qui caractérisent la non-linéarité du tenseur) du tenseur de Green-Lagrange peuvent être négligés. Dans ce cas on obtiendra alors un tenseur de déformations linéarisé qui aura même expression que celle de Cauchy (Eq. (2-1)). Le tenseur de déformations de Cauchy se présente donc comme une forme simplifiée de celui de Green-Lagrange.

2.2.2.2. Tenseur de contraintes

Dans le cadre de la description des solides lentement déformables ou dans le cas où l'on impose une linéarité de la loi de comportement élastique reliant le tenseur des contraintes (noté $\underline{\underline{\sigma}}$ et qui décrit en chaque point la répartition des forces internes) à celui des déformations (noté $\underline{\underline{\varepsilon}}$), on utilise la théorie de l'élasticité linéaire. Cette théorie est décrite pour un solide ayant un comportement isotrope, c'est-à-dire ayant le même comportement dans toutes les directions par la loi de comportement de Hooke. Pour des raisons de simplicité dans notre modèle, nous considérerons que le charbon est un milieu isotrope du point de vue mécanique et hydraulique. Ce qui nous permettra de lui appliquer la loi de Hooke.

La loi de comportement de Hooke est donnée par la relation contraintes-déformations élastiques :

$$\sigma_{ij} = \lambda \sum_{k=1}^3 \varepsilon_{kk} \delta_{ij} + 2\mu \varepsilon_{ij} \quad (2-3)$$

Avec δ_{ij} le symbole de Kronecker ($\delta_{ij} = 1$ si $i = j$ et 0 sinon), λ et μ les coefficients de Lamé. En notant E et ν respectivement le module de Young et le coefficient de Poisson du matériau, ils sont fonction de λ et μ par les relations :

$$E = \frac{\mu(3\lambda + 2\mu)}{\lambda + \mu}, \quad \nu = \frac{\lambda}{2(\lambda + \mu)} \quad (2-4)$$

Les déformations élastiques peuvent être données (par inversion du système linéaire de l'équation (2-3)) par :

$$\varepsilon_{ij}(u) = \frac{1+\nu}{E} \sigma_{ij} - \frac{\nu}{E} \sum_{k=1}^3 \sigma_{kk} \delta_{ij} \quad (2-5)$$

Pour un matériau donné, les tests rhéologiques, qui permettent de déterminer les constantes de Lamé, mesurent directement deux autres valeurs : le module de Young et de coefficient de Poisson. Les coefficients de Lamé seront donc en pratique, calculés à partir du module de Young E et du coefficient du Poisson ν (à partir de l'équation (2-4)) :

$$\lambda = \frac{\nu E}{(1+\nu)(1-2\nu)}, \quad \mu = \frac{E}{2(1+\nu)} \quad (2-6)$$

2.2.2.3. Equation de Navier

Elle est obtenue à partir des équations décrivant la théorie de l'élasticité linéaire. Ces équations sont :

- Le tenseur de Cauchy ou de Green-Lagrange (dans le cadre des petites déformations et des petites vitesses) donné par:

$$\varepsilon_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \quad (2-7)$$

- La vitesse et l'accélération respectivement donnée par :

$$v_i = \frac{\partial u_i}{\partial t}, \quad a_i = \frac{\partial v_i}{\partial t} = \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} \quad (2-8)$$

- La loi de conservation de la masse et celle de la conservation du mouvement données respectivement par :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \text{div}(\rho v) = 0, \quad \rho a = \text{div} \sigma \quad (2-9)$$

- Et la loi de comportement de Hooke :

$$\sigma_{ij} = \lambda \sum_{k=1}^3 \varepsilon_{kk} \delta_{ij} + 2\mu \varepsilon_{ij} \quad (2-10)$$

L'équation de Navier s'obtient en substituant les termes des équations (2-7), (2-8) et (2-10) dans Eq. (2-9). Elle sera alors donnée par :

$$\rho a = \mu \text{div}(\text{gradu}) + (\lambda + \mu) \text{grad}(\text{divu}) \quad (2-11)$$

Où *div* et *grad* désignent respectivement la divergence et le gradient.

2.2.3. Contrainte effective

La notion de contrainte effective est issue de la théorie de Terzaghi (*Terzaghi 1923*) sur un sol (défini comme un milieu poreux) saturé. La théorie de Terzaghi stipule que la contrainte (contrainte totale) exercée sur le sol est répartie sur la matrice (grains solides) et sur le fluide. Celle des grains solides est appelée contrainte effective, notée $\underline{\underline{\sigma}}'$, et celle exercée sur le fluide appelée contrainte isotrope, notée σ_f . La contrainte totale $\underline{\underline{\sigma}}$ est donc de la forme :

$$\underline{\underline{\sigma}} = \underline{\underline{\sigma}}' + \sigma_f \underline{\underline{1}} \quad (2-12)$$

Où $\underline{\underline{1}}$ est le tenseur unité du second ordre. Les seules contraintes pouvant exister dans le fluide n'étant que les pressions, la contrainte σ_f n'est rien d'autre que l'opposé de la contrainte de pressions σ_p :

$$\underline{\underline{\sigma}} = \underline{\underline{\sigma}}' - \sigma_p \underline{\underline{1}} \quad (2-13)$$

Dans le cas d'un milieu poreux sec, la contrainte effective sera alors identique à la contrainte totale exercée sur le milieu ($\underline{\underline{\sigma}}' = \underline{\underline{\sigma}}$).

En considérant un milieu rempli par un liquide et un gaz, Bishop (*Bishop 1959*) a présenté la contrainte effective comme une fonction linéaire de la succion :

$$\underline{\underline{\sigma}}' = \underline{\underline{\sigma}} - (1 - \chi) P_g \underline{\underline{1}} - \chi P_l \underline{\underline{1}} \quad (2-14)$$

Où χ est un coefficient compris entre 0 et 1 (nul pour les sols sec et égal à 1 pour les sols saturés), P_g la pression de gaz et P_l la pression de liquide.

La contrainte effective de Biot quant à elle, s'écrit sous la forme :

$$\underline{\underline{\sigma}}' = \underline{\underline{\sigma}} + (b_l dP_l + b_{vp} dP_{vp} + b_{as} dP_{as}) \underline{\underline{1}} \quad (2-15)$$

Avec b_i le coefficient de Biot relative au fluide i dans le milieu et P_i la pression du fluide i .

Lors de l'injection de gaz dans un gisement de charbon, l'augmentation de la pression interstitielle conduit à une diminution des contraintes effectives et à une ouverture des pores (donc augmentation de la porosité/perméabilité), alors que l'adsorption du gaz entraîne un gonflement de la matrice et une diminution de la porosité/perméabilité.

2.2.4. Lois de comportement hydro-poro-élastique

Ces lois découlent de l'expression de l'énergie libre (*Coussy 1995*). On considère ici un milieu poreux saturé par deux (2) fluides : l'eau et le gaz. Les indices l , vp , et as vont représenter respectivement l'eau (liquide), la vapeur d'eau et l'air sec. Le tenseur des contraintes $\underline{\underline{\sigma}}$ exerçant sur le milieu poreux peut se décomposer en un tenseur de contrainte effective $\underline{\underline{\sigma}}'$ et un tenseur de contrainte de pressions σ_p (Eq. 2-13).

$$\underline{\underline{\sigma}} = \underline{\underline{\sigma}}' - \sigma_p \underline{\underline{1}} \quad (2-16)$$

L'équation de comportement poro-élastique non linéaire isotrope du tenseur des contraintes peut être exprimée de façon incrémentale en fonction des paramètres drainés qui ne dépendent pas du fluide (*Coussy 1995*) :

$$d\underline{\underline{\sigma}} = \lambda_0 Tr(d\underline{\underline{\varepsilon}}) \underline{\underline{1}} + 2G d\underline{\underline{\varepsilon}} - (b_l dP_l + b_{vp} dP_{vp} + b_{as} dP_{as}) \underline{\underline{1}} - 3\alpha_0 K_0 dT \underline{\underline{1}} \quad (2-17)$$

Dans l'équation (2-17) λ_0 et G sont les coefficients de Lamé. K_0 est le module d'incompressibilité drainé donné par :

$$K_0 = \frac{(3\lambda_0 + 2G)}{3} \quad (2-18)$$

K_0 est aussi relié au module de Young drainé E_0 et du coefficient de Poisson ν_0 à travers la théorie de l'élasticité isotrope (*Jaeger and Cook 1979*):

$$K_0 = \frac{E_0}{3(1 - 2\nu_0)} \quad (2-19)$$

Les identités suivantes seront utilisées dans la suite :

$$\left\{ \begin{array}{l} b_{as} = b_{vp} = b_g \\ b_l + b_g = b \\ b_l = bS_l \\ b_{vp} = b_{as} = b_g = b(1 - S_l) \end{array} \right. \quad (2-20)$$

Dans l'équation ci-dessus, l'indice g représente le mélange gazeux (vapeur d'eau/air sec), S_l et b sont respectivement la saturation en liquide du milieu poreux et le coefficient de Biot.

La contrainte moyenne est définie par le tiers de la trace de l'expression (la contrainte totale) donnée par l'équation (2-17). Elle est donc de la forme :

$$d\sigma_m = \frac{1}{3} d\sigma_{11} = K_0 d\varepsilon_v - (b_l dP_l + b_{vp} dP_{vp} + b_{as} dP_{as}) - 3\alpha_0 K_0 dT \quad (2-21)$$

La partition de la contrainte moyenne comme fonction de la porosité Eulérienne ϕ de la roche est donnée par :

$$d\sigma_m = (1-\phi) d\sigma_s - \phi dP_g + \phi S_l dP_c \quad (2-22)$$

Avec $d\sigma_s$ l'incrément de contrainte relative à la matrice solide de la roche donné par :

$$d\sigma_s = K_s d\varepsilon_{v,s} - 3\alpha_0 K_s dT \quad (2-23)$$

P_c est la pression capillaire et $d\varepsilon_{v,s}$ la déformation volumique relative à la matrice solide donnée par :

$$d\varepsilon_{v,s} = d\varepsilon_v - \frac{d\phi}{(1-\phi)} \quad (2-24)$$

K_s est le module d'incompressibilité de la matrice solide (c'est-à-dire squelette solide). Il est calculé à partir de la relation (Coussy 1995) :

$$b = 1 - \frac{K_0}{K_s} \quad (2-25)$$

2.2.5. Evolution de la porosité

Des cinq dernières équations (Eqs. (2-21) - (2-25)), la loi de comportement d'un milieu poreux non saturé sera donnée sous forme incrémentale par (Code_Aster, Document R7.01.11 ; Coussy 1995 ; Giraud 2001) :

$$d\phi = (b - \phi) \left(d\varepsilon_v - 3\alpha_0 dT + \frac{(dP_g - S_l dP_c)}{K_s} \right) \quad (2-26)$$

Cette loi de comportement ne tient pas compte du phénomène de sorption de gaz et sera utilisée dans la suite pour établir une loi de comportement prenant en compte ce phénomène, considéré comme le principal mécanisme de production ou de séquestration de gaz dans le charbon (Wu et al. 2010).

2.2.6. Les apports de masse fluides

Ils sont affectés par les variations de saturation et de compressibilité de masse fluide (effets hydriques) d'une part et d'autre part par des variations de porosité et de déformation de la matrice (effets mécaniques). Ils sont donc donnés par :

$$\begin{aligned}
 m_l &= \rho_l (1 + \varepsilon_v) \phi S_l - m_l^0 \\
 m_{vp} &= \rho_{vp} (1 + \varepsilon_v) \phi (1 - S_l) - m_{vp}^0 \\
 m_{as} &= \rho_{as} (1 + \varepsilon_v) \phi (1 - S_l) - m_{as}^0
 \end{aligned} \tag{2-27}$$

Ce qui donne sous forme incrémentale (*Giraud 2001*) :

$$\begin{aligned}
 dm_l &= \rho_l \phi dS_l + \phi S_l d\rho_l + \rho_l S_l (d\phi + \phi d\varepsilon_v) \\
 dm_{vp} &= -\rho_{vp} \phi dS_l + \phi (1 - S_l) d\rho_{vp} + \rho_{vp} (1 - S_l) (d\phi + \phi d\varepsilon_v) \\
 dm_{as} &= -\rho_{as} \phi dS_l + \phi (1 - S_l) d\rho_{as} + \rho_{as} (1 - S_l) (d\phi + \phi d\varepsilon_v)
 \end{aligned} \tag{2-28}$$

La simplification suivante est faite ci-dessus : $1 + \varepsilon_v \approx 1$.

2.2.7. Loi de comportement des fluides

En supposant que les fluides (liquide, vapeur, air sec) sont compressibles, leurs masses volumiques seront liées à leurs pressions par :

$$\frac{d\rho_l}{\rho_l} = \frac{dP_l}{K_l} - 3\alpha_l dT \tag{2-29}$$

$$\frac{d\rho_{vp}}{\rho_{vp}} = \frac{dP_{vp}}{K_{vp}} - 3\alpha_{vp} dT \tag{2-30}$$

$$\frac{d\rho_{as}}{\rho_{as}} = \frac{dP_{as}}{K_{as}} - 3\alpha_{as} dT \tag{2-31}$$

En supposant la vapeur et l'air sec comme gaz parfaits:

$$\rho_{vp} = \rho_{vp}(P_{vp}, T) = \frac{M_{vp}^{ol} P_{vp}}{RT} \tag{2-32}$$

$$\rho_{as} = \rho_{as}(P_{as}, T) = \frac{M_{as}^{ol} P_{as}}{RT} \tag{2-33}$$

$$\frac{d\rho_{vp}}{\rho_{vp}} = \frac{dP_{vp}}{P_{vp}} - \frac{dT}{T} \tag{2-34}$$

$$\frac{d\rho_{as}}{\rho_{as}} = \frac{dP_{as}}{P_{as}} - \frac{dT}{T} \tag{2-35}$$

Avec K_l le module de compressibilité du liquide et α_l son module de dilatation, M_{vp}^{ol} et M_{as}^{ol} sont respectivement les masses molaires de vapeur et de l'air sec.

En supposant que la compressibilité d'un gaz parfait est égale à sa pression ($K_{vp} = P_{vp}$ et $K_{as} = P_{as}$) on obtient en variations isothermes :

$$\frac{dm_l}{\rho_l} = \phi dS_l + S_l d\phi + \phi S_l \left(\frac{dP_l}{K_l} + d\varepsilon_v \right) \tag{2-36}$$

$$\frac{dm_{vp}}{\rho_{vp}} = -\phi dS_l + (1 - S_l) d\phi + \phi(1 - S_l) \left(\frac{dP_{vp}}{K_{vp}} + d\varepsilon_v \right) \quad (2-37)$$

$$\frac{dm_{as}}{\rho_{as}} = -\phi dS_l + (1 - S_l) d\phi + \phi(1 - S_l) \left(\frac{dP_{as}}{K_{as}} + d\varepsilon_v \right) \quad (2-38)$$

Le terme ϕS_l est la porosité remplie par le liquide et $\phi(1-S_l)$ celle remplie par les gaz.

2.2.8. Transport de fluides au sein d'un milieu poreux

Il existe une multitude de modèles pour décrire les phénomènes de transport de matières dans un milieu poreux. Dans le cadre de ce travail, nous nous intéressons surtout à ceux permettant de décrire les écoulements et diffusions de fluide ainsi que le transport réactif (adsorption, dissolution). Ceux-ci sont généralement décrits par la loi d'écoulement de Darcy (fluides darcéens), la loi de diffusion de Fick et la loi de Henry. L'adsorption de fluides dans un milieu poreux est généralement décrite par les isothermes de sorption dont les différents types sont décrits dans le chapitre 3 de ce manuscrit. Les écoulements ici concerneront un ou deux fluides (l'eau et/ou le CO_2). Les modélisations THM des milieux poreux couvriront donc l'évolution mécanique de ces milieux et les écoulements en leur sein.

Dans ce paragraphe, un rappel sur la loi d'écoulement de Darcy pour les liquides et les gaz ainsi que les lois de diffusion de Fick (qu'utilise le Code_Aster) sont données. La loi de Henry, qui sera utilisée dans la suite pour décrire la dissolution du CO_2 dans l'eau est aussi présentée sous forme de concentration molaire. Le modèle de Mualem Van-Genuchten qui permet la détermination des perméabilités relatives et le calcul de la saturation en fonction de la pression capillaire est aussi présenté.

2.2.8.1. La loi de Darcy

Elle est la relation exprimant la proportionnalité entre le débit spécifique (débit par unité de surface) d'un fluide à travers un milieu poreux et le gradient hydraulique, en écoulement laminaire. On parle d'écoulement darcéen. Les lois de Darcy sont données pour les gaz et pour les liquides par :

- Pour les gaz (mélange gazeux)

$$\frac{M_g}{\rho_g} = \lambda_g^H \left(-\nabla P_g + \rho_g F^m \right) \quad (2-39)$$

- Pour les liquides (mélange liquide)

$$\frac{M_l}{\rho_l} = \lambda_l^H \left(-\nabla P_l + \rho_l F^m \right) \quad (2-40)$$

M_g et M_l sont respectivement les flux hydrauliques de gaz et de liquide, ρ_g et ρ_l respectivement les masses volumiques du mélange gazeux et de liquide, F^m la force massique, P_g et P_l respectivement la pression de gaz et de liquide. Les quantités λ_l^H et λ_g^H représentent respectivement les conductivités hydrauliques pour le liquide et pour le gaz. Elles sont fonction de la perméabilité intrinsèque k_{int} (fonction de la porosité du milieu poreux ϕ), des perméabilités relatives au liquide k^{rel}_l (fonction de la saturation en liquide du milieu poreux S_l) et au gaz k^{rel}_g (fonction de la saturation en liquide du milieu poreux S_l et de la pression du gaz P_g), des viscosités (fonction de la température T du milieu) dynamique de l'eau μ_w et de gaz μ_g , et sont données par les formules :

$$\lambda_l^H = \frac{k_{\text{int}}(\varphi) k_l^{\text{rel}}(S_l)}{\mu_w(T)} \quad (2-41)$$

$$\lambda_g^H = \frac{k_{\text{int}}(\varphi) k_g^{\text{rel}}(S_l, P_g)}{\mu_g(T)} \quad (2-42)$$

2.2.8.2. La loi de Fick

Cette loi concerne le mouvement interne d'un fluide au sein d'un milieu poreux. Elle décrit d'une part la diffusion du mélange gazeux (air sec et vapeur d'eau) et d'autre part celle du mélange liquide (eau et air dissous). Le coefficient de diffusion de Fick D_{vp} décrit la diffusion de la vapeur à travers l'air sec (CO_2 gazeux dans notre cas). Il dépend de la température et de la pression du gaz. La diffusion de Fick dans le mélange gazeux est obtenue grâce à la relation suivante :

$$\begin{cases} \frac{M_{vp}}{\rho_{vp}} - \frac{M_{as}}{\rho_{as}} = -\frac{D_{vp}}{C_{vp}(1-C_{vp})} \nabla \left(\frac{P_{vp}}{P_g} \right) = -F_{vp} \nabla C_{vp} \\ F_{vp} = \frac{D_{vp}}{C_{vp}(1-C_{vp})} \\ C_{vp} = \frac{P_{vp}}{P_g} \end{cases} \quad (2-43)$$

F_{vp} représentera alors le coefficient de diffusion du mélange gazeux, une caractéristique du milieu poreux. Il est fonction de la pression de vapeur, de la pression de gaz, de la saturation et de la température. La diffusion du mélange liquide quand à elle est donnée par la relation :

$$M_{ad} - M_w = -F_{ad} \nabla \rho_{ad} \quad (2-44)$$

M_{ad} et M_w sont respectivement les flux hydrauliques de l'air dissous (CO_2 dissous dans notre cas) et de l'eau liquide, F_{ad} et ρ_{ad} respectivement le coefficient de Fick pour le mélange liquide et la masse volumique de l'air dissous.

2.2.8.3. Solubilité du CO_2 dans l'eau : la loi d'Henry

En présence du CO_2 gazeux dans l'eau H_2O , les échanges ci-dessous ont lieu:



Les notations g et aq se réfèrent respectivement aux phases gaz et dissoutes du CO_2 et H_2CO_3 est l'acide carbonique dissous. A l'équilibre, la concentration du CO_2 dissous $[CO_2(aq)]$, en mol/kg d'eau, sera donnée par la loi de Henry par :

$$[CO_2(aq)] = K_0 P_{CO_2} \quad (2-47)$$

Où K_0 est la solubilité molaire ($\text{mol.L}^{-1}.\text{atm}^{-1}$) et P_{CO_2} la pression partielle du CO_2 (atm). L'acide carbonique se dissocie à son tour dans l'eau pour donner des ions hydrogènes H^+ , bicarbonates et carbonates selon les équations :





Les constantes de dissociation peuvent être quantifiées:

$$K_1 = \frac{[H^+][HCO_3^-]}{[CO_2(aq)]} \text{ et } K_2 = \frac{[H^+][CO_3^{2-}]}{[HCO_3^-]} \quad (2-50)$$

Dans nos modélisations, la dissolution du CO_2 dans l'eau sera discutée. Ce phénomène sera défini et pris en compte à travers la constante de Henry K_H , qui lie la concentration molaire du CO_2 dissous C_{ad} (moles/m³) à la pression P_{as} du CO_2 gaz (*Code_Aster, Document R7.01.11*).

$$C_{ad} = \frac{P_{as}}{K_H} \quad (2-51)$$

La pression du CO_2 dissous P_{ad} est donc reliée à la pression du CO_2 gaz P_{as} par:

$$P_{ad} = \frac{P_{as}}{K_H} RT \quad (2-52)$$

La solubilité du CO_2 dissous comme un gaz dans l'eau dépend donc de la pression et de la température selon la loi de Henry (Eqs. (2-51) et (2-52)). Même si la dissolution du CO_2 est un processus plutôt lent (*Lindeberg and Bergmo 2003*), elle n'est pas à être négligée. Dans ce travail de thèse, nous montrerons les effets de cette dissolution par comparaison au cas sans considération de la dissolution du CO_2 dans l'eau. Le CO_2 est un gaz peu soluble dans l'eau. Mais les effets de sa dissolution ne sont pas à négliger. La dissolution du CO_2 dans l'eau, par exemple augmente la densité de cette dernière. Les effets du CO_2 dissous dans l'huile et dans l'eau sont la principale raison de toute diminution de la pression du réservoir (*Pingping et al. 2010*).

2.2.8.4. La perméabilité intrinsèque

La perméabilité intrinsèque ou spécifique [m²] est une propriété d'un milieu isotrope vis-à-vis d'un quelconque fluide (liquide, gaz), indépendamment des caractéristiques du fluide. La perméabilité intrinsèque est une fonction du taux de saturation du milieu poreux ou du potentiel matriciel. Elle dépend aussi de la structure et de la connectivité des pores. Elle est reliée à la conductivité hydraulique (souvent appelée aussi coefficient de perméabilité, en m/s) par la loi de Darcy donnée par les équations (2-41) et (2-42), ou généralement par :

$$K = \frac{k \rho g}{\mu} \quad (2-53)$$

Où K est la conductivité hydraulique (m/s) dépendant des propriétés intrinsèques du milieu et du fluide, k la perméabilité intrinsèque du milieu poreux (m²), ρ la masse volumique (kg/m³), μ la viscosité dynamique du fluide (kg/m/s), g l'accélération de la pesanteur (m/s²).

La perméabilité est un paramètre clé qui gouverne les mouvements des fluides dans les formations rocheuses. Sa valeur est le plus souvent très faible. Ce qui conduit souvent l'utilisation du Darcy comme unité (1 Darcy vaut 10⁻⁸ cm² soit 10⁻¹² m²).

2.2.8.5. Le modèle de Mualem Van-Genuchten

Dans les lois d'écoulement de Darcy, la connaissance des perméabilités relatives au liquide et au gaz est nécessaire. L'un de multiples modèles permettant cette détermination est celui de Mualem Van-Genuchten. Ce modèle permet non seulement la détermination des perméabilités

relatives au liquide et au gaz, mais aussi la détermination de la saturation du milieu poreux. C'est un couplage entre le modèle de perméabilité relative de Mualem (*Mualem 1976*) et de saturation de Van Genuchten (*Van Genuchten 1980*).

Le modèle de Mualem est un modèle statique de perméabilité, proposé en 1976, permettant la détermination des perméabilités relatives. Il est donné par :

- Pour la perméabilité relative au liquide

$$k_l^{rel}(S_l) = S_{we}^{\eta_m} \left(\frac{\int_0^{S_{we}} \frac{dS}{P_c(S)}}{\int_0^1 \frac{dS}{P_c(S)}} \right)^2 \quad (2-54)$$

- Pour la perméabilité relative au gaz

$$k_g^{rel}(S_l) = (1 - S_{we})^{\eta_m} \left(\frac{\int_0^{S_{we}} \frac{dS}{P_c(S)}}{\int_0^1 \frac{dS}{P_c(S)}} \right)^2 \quad (2-55)$$

Avec $S_{we} = (S_l - S_{wr}) / (1 - S_{wr})$ et S_{wr} les saturations effective et résiduelle en liquide, η_m un coefficient de calage et P_c la pression capillaire.

Van Genuchten a proposé en 1980 un modèle statique permettant le calcul de saturation due aux variations de la pression capillaire. Ce modèle de saturation est donné par :

$$S_{we} = \frac{(S_l - S_{wr})}{(1 - S_{wr})} = \left(1 + \left(\frac{P_c}{P_r} \right)^n \right)^{-m} \quad (2-56)$$

S_{wr} , n ($m = 1 - 1/n$) et P_r étant les paramètres du modèle.

Le modèle de Mualem Van-Genuchten est alors obtenu par injection du modèle de saturation de Van Genuchten dans le modèle de perméabilité de Mualem. Ce qui donne (avec $\eta_m = 1/2$) :

$$\left\{ \begin{array}{l} S_{we} = \frac{S_l - S_{wr}}{1 - S_{wr}} \\ S_{we}(P_c) = \left(\left(\frac{P_c}{P_r} \right)^n + 1 \right)^{-m} \\ k_l^{rel}(S_{we}) = \sqrt{S_{we}} \left(1 - (1 - S_{we}^{1/m})^m \right)^2 \\ k_g^{rel}(S_{we}) = \sqrt{1 - S_{we}} \left(1 - S_{we}^{1/m} \right)^{2m} \\ m = 1 - \frac{1}{n} \end{array} \right. \quad (2-57)$$

Ce modèle, qui traduit une loi saturation/pression capillaire, est très bien connu. Pour décrire le comportement hydraulique dans ce travail, nous faisons appel à ce modèle programmé sous forme analytique dans Code_Aster.

Dans un milieu saturé en liquide ($S_l = 1$), la pression capillaire sera nulle d'une part et d'autre part on aura $k_l^{rel}(S_l = 1) = 1$ et $k_g^{rel}(S_l = 1) = 0$. Le milieu poreux sera donc perméable uniquement au liquide. Dans le cas contraire, c'est-à-dire lorsque le milieu poreux est saturé en gaz ($S_l = 0$), la pression capillaire va tendre vers l'infini ($P_c \rightarrow \infty$) d'une part et on aura aussi d'autre part $k_l^{rel}(S_l = 0) = 0$ et $k_g^{rel}(S_l = 0) = 1$. Le milieu poreux sera donc perméable uniquement au gaz.

2.2.9. Equations d'état du fluide saturant

Dans le mouvement du squelette, le système matériel élémentaire $d\Omega_t$ que l'on suit, est un système ouvert dont la masse fluide qu'il contient varie au cours du temps. Rapportée au volume initial de référence $d\Omega$, cette masse fluide s'écrit sous la forme :

$$\rho^f \phi d\Omega_t = (\rho_0^f \phi_0 + m) d\Omega \quad (2-58)$$

Avec ρ^f la masse volumique du fluide à l'instant t , ρ_0^f la masse volumique du fluide dans la configuration de référence, ϕ la porosité à l'instant t , ϕ_0 la porosité initiale (ou de référence), m l'augmentation de masse fluide par unité de volume initial. Avec J le jacobien des transformations du volume élémentaire initial $d\Omega$ vers le volume à l'instant t donné $d\Omega_t$ ($d\Omega_t = Jd\Omega$), la formule du transport du volume fluide m est donnée par :

$$m = J\rho^f \phi - \rho_0^f \phi_0 \quad (2-59)$$

Selon les résultats classiques de la thermodynamique, les équations d'états du fluide s'écrivent :

$$g_m = g_m(p, T) \quad (2-60)$$

$$\text{Avec } \begin{cases} \frac{\partial g_m}{\partial p} = \frac{1}{\rho^f} \\ \frac{\partial g_m}{\partial T} = -s_m \end{cases} \quad (2-61)$$

Où g_m est l'enthalpie massique du fluide, fonction de la pression P et de la température T , s_m l'entropie massique du fluide. Avec P_0 , T_0 respectivement la pression et la température à l'état de référence, le développement limité au second ordre de l'enthalpie massique du fluide g_m par rapport aux variables P et T est donné par :

$$g_m(P, T) = g_m^0 - (T - T_0)s_m^0 + \frac{P - P_0}{\rho_0^f} - \frac{1}{2}c(T - T_0)^2 + 3\alpha_f(T - T_0)\frac{P - P_0}{\rho_0^f} - \frac{1}{2\rho_0^f K_f}(P - P_0)^2 \quad (2-62)$$

Où g_m^0 est l'enthalpie libre massique du fluide à l'état initial (de référence), s_m^0 l'entropie massique du fluide à l'état de référence, c la chaleur massique du fluide, α_f le coefficient de dilatation cubique du fluide et K_f le module de compressibilité isotherme du fluide. On peut donc déduire les expressions des équations d'état du fluide saturant:

$$\frac{1}{\rho^f} = \frac{1}{\rho_0^f} \left(1 + 3\alpha_f (T - T_0) - \frac{P - P_0}{K_f} \right) \quad (2-63)$$

$$s_m = s_m^0 + c(T - T_0) - 3\alpha_f \frac{P - P_0}{\rho_0^f} \quad (2-64)$$

2.2.10. Equations d'état linéarisées du comportement thermo-poro-élastique linéaire

Les équations d'état suivantes définissent la loi de comportement thermo-poro-élastique :

$$S = -\frac{\partial \psi}{\partial T}, \sigma = \frac{\partial \psi}{\partial \varepsilon}, g_m = \frac{\partial \psi}{\partial m} \quad (2-65)$$

Où S est l'entropie du système fluide-squelette, σ le tenseur des contraintes de Cauchy et ψ l'énergie libre du milieu poreux. En supposant une déformation infinitésimale pour le squelette, des variations de température et des petites variations d'échange de masse fluide, l'énergie libre développée au second ordre par rapport à un état de référence donne (Boutéca et al. 1994 ; Coussy 1991, 1995) :

$$\begin{aligned} \psi(T, \varepsilon, m) = & \sigma^0 : \varepsilon + \left(\psi_m^0 + \frac{P_0}{\rho_0^f} \right) m - S_0 (T - T_0) + \frac{1}{2} \varepsilon : C : \varepsilon - \frac{m}{\rho_0^f} MB : \varepsilon \\ & - (T - T_0) A : \varepsilon - \left(s_m^0 - \frac{3M\alpha_m}{\rho_0^f} \right) (T - T_0) m + \frac{1}{2} M \left(\frac{m}{\rho_0^f} \right)^2 - \frac{1}{2} \frac{C_\varepsilon}{T_0} (T - T_0)^2 \end{aligned} \quad (2-66)$$

- σ^0 tenseur des contraintes totales de Cauchy à l'état de référence
- ψ_m^0 l'énergie libre massique du fluide à l'état de référence
- S_0 l'entropie du système à l'état de référence
- ε tenseur des déformations linéaires
- C tenseur de rigidité des modules d'élasticité isothermes non drainés
- M le module de Biot
- B tenseur de couplage Hydro-Mécanique
- C_ε la chaleur volumique isochore non drainée
- A tenseur de couplage thermo-mécanique

La loi de comportement thermo-poro-élastique pour un milieu poreux non drainé en déformations infinitésimales s'écrit (Boutéca et al. 1994 ; Coussy, 1991, Coussy, 1995) :

$$\sigma = \sigma^0 + C_0 : \varepsilon - MB \frac{m}{\rho_0^f} - A_0 (T - T_0) \quad (2-67)$$

$$P = P_0 + M \left(-B : \varepsilon + \frac{m}{\rho_0^f} + 3\alpha_m (T - T_0) \right) \quad (2-68)$$

$$S = S_0 + s_m^0 m + A_0 : \varepsilon - 3M\alpha_m \frac{m}{\rho_0^f} + \frac{C_\varepsilon^0}{T_0} (T - T_0) \quad (2-69)$$

$C_0, A_0, C_\varepsilon^0$ sont les valeurs drainées respectivement de C, A et C_ε .

Dans le paragraphe ci-dessous, nous donnons quelques rappels des interactions (couplages) Thermo-Hydro-Mécanique et Chimique.

2.3. Les couplages Thermo-Hydro-Mécanique et Chimiques (THMC)

Les différents phénomènes physiques (thermique, hydrique, mécanique et chimique) impliqués dans le stockage de gaz dans une roche ne sont pas sans interactions entre eux. Chacun d'eux a au moins un autre phénomène qui l'influence et parfois vice-versa. Mais parmi tous, le rôle joué par la température est très important puisque ses variations ont des effets sur les trois autres phénomènes (mécanique, hydraulique et chimique). On peut donc au cours du stockage de CO_2 assister à la naissance de différents types de couplages. Les interactions entre ces phénomènes sont représentées sous forme de schéma sur la Figure 6.

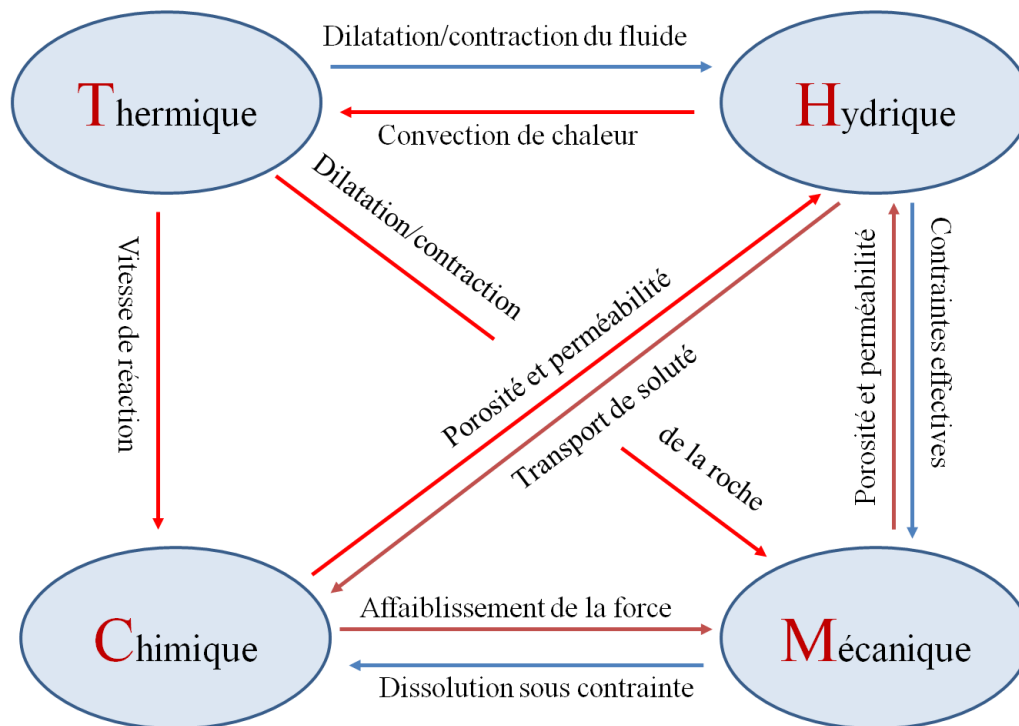


Figure 6. Schéma de couplage Thermo-Hydro-Mécanique et Chimique (THMC)

Comme le montre la Figure 6, d'une part, l'injection d'un fluide (avec une température différente de celle de la roche) au sein d'une roche va entraîner une convection thermique, c'est-à-dire des inhomogénéités de température, créant ainsi un gradient de température. En effet, le fluide se met en mouvement suite à l'injection qui lui imprime des vitesses de déplacement très importantes. Par conséquent l'intensité du transfert thermique sera en liaison directe avec le régime du mouvement du fluide. D'autre part, les variations de la température (augmentation/diminution) au sein d'une roche contenant un fluide vont entraîner des variations volumiques du fluide (dilatation/contraction). On distingue généralement des variations à pression constante et à volume constant, surtout dans le cas des gaz. Ces interactions entre la thermique et l'hydrique constituent le couplage **Thermo-Hydrique (TH)**.

Le couplage **Hydro-Mécanique (HM)** est un couplage très important et très bien connu des scientifiques. Des variations du volume dues à l'effet de la mécanique (exemple des essais de compression), entraîneront des variations de porosité et de perméabilité du milieu rocheux. Par augmentation de la pression interstitielle, l'hydrique influence la mécanique

(modifications des propriétés mécanique du milieu) par le biais des contraintes effectives. Les variations de la pression interstitielle vont en effet affecter particulièrement les contraintes effectives, et ainsi la porosité et la perméabilité de la roche. La base des recherches en hydromécanique repose sur les travaux de Terzaghi (*Terzaghi 1925*) du comportement mécanique d'un milieu poreux. Les travaux de ce dernier, qui concernaient la consolidation unidimensionnelle d'un sol, se sont vus généralisés par Biot (*Biot 1941, 1956*) dans le cadre de l'élasticité linéaire par une analyse tridimensionnelle d'un milieu poreux. D'autres études comme celles de Bishop (*Bishop 1959*) et de Coussy (*Coussy 1995*) ont été faites aussi pour ce type de couplage. De même que le couplage Hydro-Mécanique, le couplage **Chemo-Mécanique (CM)** est double. L'état de contrainte du milieu poreux est par exemple influencé par les réactions chimiques, créant ainsi les 'déformations chimiques' de la roche. Pour l'influence de la mécanique sur la chimie, on peut citer l'exemple de la dissolution sous contrainte (sous contrainte, les roches subissent des pressions considérables pouvant entraîner une dissolution) et la propagation subcritique des fissures.

Pour le stockage géologique à court terme, la migration du CO_2 est principalement bloquée par la roche imperméable présente au-dessus de la formation réservoir. Avec le temps, d'autres mécanismes interviennent, en particulier de nature géochimique, comme la dissolution du CO_2 dans l'eau poreuse, et finalement les réactions chimiques (dissolution et/ou précipitation des minéraux qui forment la roche). Ces réactions, peuvent entraîner des modifications importantes et irréversibles des propriétés hydrodynamiques, ainsi que celles mécaniques du réservoir. La sûreté des sites de stockage à long terme nécessite donc une bonne compréhension des processus physico-chimiques induits par l'injection du CO_2 en milieu géologique et des conséquences qui en résultent, notamment sur la stabilité des réservoirs. La température étant un facteur influençant la vitesse des réactions chimiques, elle modifiera alors les propriétés chimiques du milieu, sauf dans le cas isotherme où la température est considérée comme une constante. Ces interactions ou phénomènes **Thermo-Chimique (TC)**, sont bien décrits dans les documents de Didier (*Didier, 1997*) et de Prigogine et Defay (*Prigogine et Defay, 1950*). Ce couplage (TC) est à sens unique étant donné que la chimie n'a pas d'influence sur les variations de la température. Le couplage **Thermo-Mécanique (TM)** est aussi à sens unique. L'augmentation ou la diminution de la température d'un milieu va entraîner une dilatation ou une contraction de la roche poreuse. Ces variations de la roche vont ainsi modifier les propriétés mécaniques de la roche telles que les contraintes (résultant des déformations de la roche). Le couplage **Chemo-Hydrique (CH)** est double (Figure 6). Les variations de la pression du fluide conduisent des variations de la vitesse de l'écoulement et de diffusion des espèces chimiques contenues dans le milieu rocheux. Les réactions chimiques (dissolution/précipitation) vont forcément modifier les propriétés de transport de fluide dans le milieu. En effet elles augmentent/diminuent le volume poreux et donc agissent sur la perméabilité du milieu. En bref elles auront une influence sur le comportement hydrique du milieu.

Compte tenu des couplages TH, TM et HM, ceux **Thermo-Hydro-Mécanique (THM)** sont complexes. Le développement des couplages THM a commencé à partir des années 70 notamment par celui de Schiffman (*Schiffman 1971*). Après ont suivi les développements de Aboustit et al. (*Aboustit et al. 1982*), de Lewis et al. (*Lewis et al. 1986*), de Hueckel et Peano (*Hueckel et Peano 1987*) et de Hueckel et Borsetto (*Hueckel et Borsetto 1990*). Plusieurs modèles de couplages THM existent pour la description des interactions entre ces différents phénomènes. Mais dans ce travail nous utiliseront celui de Coussy (*Coussy, 2004*) en formulation THM. Les modélisations dans ce travail sont faites dans un code de calcul de structures Thermo-Hydro-Mécanique (THM) entièrement couplé, Code_Aster, code développé par Electricité De France (EDF). Dans ce cadre, on parlera de modules THM, ceux

qui traitent les équations de la mécanique des milieux continus et utilisant la théorie des milieux poreux (*Code_Aster, document R7.01.10*).

La connaissance de certains aspects du couplage **Chemo-Hydro-Mécanique (CHM)** est nécessaire pour l'adaptation du modèle THMC. Dans ce type de couplage, une partie des variations de porosité/perméabilité sera due au phénomène mécanique et une partie due au phénomène chimique (Physico-chimique (Langmuir) dans notre cas). Les variations des propriétés mécaniques seront dues aussi bien à l'hydrique qu'à la chimie. Pour étudier alors les modèles Chemo-Hydro-Mécaniques, on doit alors se baser sur le comportement Hydro-Mécanique (HM). La prise en compte du phénomène chimique (le transport des espèces chimiques) se faisant par ajout des équations de transport. Les variables et les paramètres de transport dans ce cas seront les concentrations des différentes espèces présentes dans le milieu et le coefficient de diffusion de Fick. Dans le couplage **Thermo-Hydro-Chimique (THC)**, la thermique n'est influencée que par le phénomène hydraulique (circulation du fluide). Cependant, la température est un grand facteur influençant aussi bien le phénomène hydrique que chimique. Ce type de couplage est rarement rencontré dans les recherches scientifiques comparé aux HM et THM par exemple. En se référant aux comportements TC, TM et CM et à la Figure 6, la température du milieu ne peut donc pas être influencée dans le cas d'un couplage **Chemo-Thermo-Mécanique (CTM)**. Ce qui n'est pas le cas pour les propriétés mécaniques qui seront affectées aussi bien par les variations de température que des réactions chimiques. Cependant, dans notre étude (élasticité), les propriétés mécaniques restent constantes. En effet, l'influence de la chimie (physico-chimie) et de la thermique (qui est d'ailleurs constante) sur la mécanique se fait via la contrainte effective, et non pas via les propriétés mécaniques qui dépendent de la loi de comportement adoptée.

2.4. Conclusion

Dans ce chapitre, un aperçu général des interactions entre les différents phénomènes physiques (température, hydraulique, mécanique et chimie) mis en jeu lors du stockage géologique du CO_2 est donné. Ce rappel montre que la température joue un rôle primordial dans le stockage étant donné que ses variations influencent les autres phénomènes (mais qui n'est cependant pas le cas si l'injection de CO_2 est isotherme), ce qui n'est pas le cas par exemple pour la mécanique qui n'influence que l'hydrique et la chimie. Parmi ces différentes interactions, celle Hydro-Mécanique (HM) est très importante et est bien connue des scientifiques. Ce couplage est notamment géré par la théorie de contraintes effectives (base des couplages hydromécaniques). Nous avons aussi donné dans ce chapitre, en passant par la définition d'un milieu poreux, les équations de base pour son (milieu poreux) étude dans le cadre d'un couplage Thermo-Hydro-Mécanique (THM). Cela nous a permis d'avoir une idée sur les lois de comportement d'un milieu poreux en particulier les lois de transport (Darcy, Fick et Henry) et de l'élasticité linéaire sur les quelles reposeront nos études. Cependant, le développement de notre modèle reposera sur l'équation (2-26) de la porosité et sur la théorie de l'isotherme d'adsorption de Langmuir présentée dans le chapitre 3 de ce manuscrit. Ce chapitre 3 reviendra notamment sur les travaux concernant le stockage géologique du CO_2 dans le charbon et mettra l'accent sur les modèles de perméabilité-porosité existants.

2.5. Références bibliographiques

Aboustit, B.L., Advani S.H., Lee J. K. and Sandhu, R.S., 1982. "Finite element evaluation of thermoelastic consolidation". Issues on rock mechanics, 23 rd., sym. On rock mechanics (ASME). Etats-unis, pp. 587-595.

- Biot M. A., 1941.** “General theory of three-dimensional consolidation”. J. Appl. Phys., 12, pp. 155-164.
- Biot M. A., 1956.** “Thermo elasticity and irreversible thermodynamics”. J. Appl. Phys., 27, pp. 240-353.
- Bishop A.W., 1959.** “The principle of effective stress”. Teknisk Ukeblad I Samarbeide Med Teknisk, Oslo, Norway, 106(39), 859–863.
- Boutéca, M., Charlez, Ph. A., Coussy, O., Dormieux, L., Dangla, P., Fauchet, B., Giraud, A. et al., 1994.** “Ecole de Mécanique Des Milieux Poreux”. Aussois: Sciences de la terre. Association Scientifique pour la Géologie et ses Applications.
- Code_Aster 2012.** Document R7.01.11 – “Modèle de comportement THHM”. http://www.code-aster.org/V2/doc/v11/fr/man_r/r7/r7.01.11.pdf.
- Code_Aster 2012.** Document R7.01.10 – “Modélisation THHM : généralités et algorithmes”. http://www.code-aster.org/V2/doc/v11/fr/man_r/r7/r7.01.10.pdf.
- Coussy, O., 1991.** “Mécanique des milieux poreux”. Editions TECHNIP, Paris.
- Coussy, O., 1995.** “Mechanics of porous continua”. John Wiley Sons.
- Coussy, O., 2004.** “Poromechanics”. John Wiley & Sons.
- Didier, R., 1997.** *Chimie générale*. Paris : Tec&Doc Lavoisier, 1997. 651 p.
- Giraud A., 2001.** “Modélisation des couplages THM dans les milieux poreux saturés et partiellement saturés”. Mémoire de HDR, Institut National Polytechnique de Lorraine:179p.
- Hueckel T. and Peano, A., 1987.** “Some Geotechnical Aspects of Radioactive Waste Isolation in Continental Clays”. Computers and Geotechnics, an International Journal, 3, 157-182.
- Hueckel T., and Borsetto, M., 1990.** “Thermoplasticity of Saturated Soils and Shales: Constitutive Equations”. Journal of Geotechnical Engineering, ASCE, 116(12) 1765-1777.
- Jaeger, J. C., and N. G. W Cook, 1979.** “Fundamentals of Rock Mechanics”. Third edition, Chapman and Hall. London.
- Lewis, R.W., Majorana, C.E. et Schrefler, B.A., 1986.** “A coupled finite element model for the consolidation of non-isothermal elastoplastic porous media”. Transport in Porous Media, 1, pp. 155-178.
- Lindeberg, E. and P. Bergmo, 2003.** “The Long-Term Fate of CO₂ Injected into an Aquifer”. In Greenhouse Gas Control Technologies - 6th International Conference, edited by J. Gale and Y. Kaya, 489–494. Oxford: Pergamon.
- Mualem Y., 1976.** “A new model for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated porous media”. Water Resources Research 12(3):513-522.
- Pingping, S., C. Xinglong, and Q. Jishun, 2010.** “Pressure Characteristics in CO₂ Flooding Experiments”. Petroleum Exploration and Development 37 (2): 211–215. doi:10.1016/S1876-3804(10)60026-2.
- Prigogine, I. et Defay, R., 1950.** *Thermodynamique chimique*. Liège : Dosoer, 1950. 557 p.
- Schiffman, R.L., 1971.** “A thermoelastic theory of consolidation”. Environmental and Geophysical heat transfer, Heat transfer division (ASME), 1(4), 78-84.

Terzaghi, K., 1923. “*Die Berechnung der durchlässigkeitsziffer des Tones aus dem Verlauf der hydrodynamischen Spannungserscheinungen*“. Sitzungbericht Akademie Wissenschaft Wien, Mathematik Naturwissenschaft 132,105–126.

Terzaghi, K., 1925. *Erdbaumechanik*, Franz Deuticke, Vienna.

Van Genuchten MT, 1980. “*A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils*”. Soil Science Society of America Journal 44(5):892-898.

Wu Y., J. Liu, D. Elsworth, Z. Chen, L. Connell, and Z. Pan, 2010. “*Dual Poroelastic Response of a Coal Seam to CO₂ Injection*”. International Journal of Greenhouse Gas Control 4 (4): 668–678. doi:10.1016/j.ijggc.2010.02.004.

Modélisation du stockage géologique du CO_2 dans le charbon : étude bibliographique

3.1. Introduction

Parmi les nombreuses stratégies proposées pour réduire les gaz à effet de serre, celle de la séquestration géologique semble être la plus prometteuse (dans les aquifères salins profonds, les gisements d'hydrocarbures ou encore dans les veines de charbon inexploitées). Dans le cas du charbon, pour une meilleure séquestration, la connaissance de ses propriétés (structure, porosité, perméabilité, composition etc.) sera nécessaire. C'est dans ce sens que certains ont cherché à estimer le volume poreux de celui-ci par prosimètre à gaz avec comme adsorbant le dioxyde de carbone CO_2 , à 298 K, qui a une meilleure affinité avec le charbon que le méthane CH_4 , de sorte qu'il est un meilleur outil pour déterminer la porosité (Flores 1998 ; Charrière 2009). La perméabilité du charbon, comme pour les autres formations naturellement fracturées, est déterminée par un ensemble de caractéristiques de fractures. Ces caractéristiques incluent la taille, l'espacement, la connectivité, l'ouverture et le degré de remplissage minéral (Laubach et al. 1998). La perméabilité peut aussi avoir une relation avec le type et le rang du charbon liés au développement des fractures au cours du processus de carbonisation. Nous rappelons dans ce chapitre la structure et les propriétés des charbons.

Un avantage supplémentaire est apporté dans le cas des veines de charbon du fait de la récupération possible de combustibles commercialisables tel que le méthane CH_4 . Celui-ci offre à la fois la sûreté du stockage et la possibilité de récupérer le méthane initialement contenu (Fulton 1980 ; Reznik et al. 1984 ; Arri et al. 1992 ; etc.). Les développements récents montrent que la récupération du méthane de gisements houillers peut également être couplée au stockage du dioxyde de carbone CO_2 (comme dit dans le paragraphe 1.1, cette technique dite de 'Enhanced Coalbed Methane (ECBM)' consiste à injecter du CO_2 et récupérer du méthane CH_4 des veines de charbon (Reeves et al. 2003 ; Gunter et al. 2004 ; Reeves et al. 2004 ; Jackson 2006 ; van Bergen et al. 2006 ; Ross et al. 2009)). Toutefois, les interactions entre CO_2 et le charbon étant complexes (Yun and Suuberg 1992 ; Larsen et al. 1997 ; White et al. 2005), une compréhension approfondie de la façon dont le CO_2 modifie les propriétés mécaniques, chimiques et physiques du charbon seront nécessaires pour que la séquestration du CO_2 soit un succès. C'est dans ce contexte que certaines recherches ont pu montrer que l'adsorption/désorption du CO_2 induit le gonflement/retrait du charbon (Yun and Suuberg 1992 ; Larsen et al. 1997 ; White et al. 2005). Richard et al. (Richard et al. 2012) ont aussi tenté d'établir les caractéristiques mécaniques de base des charbons bitumineux Illinois, tout en minimisant les effets de la rupture. Ils ont étudié les propriétés mécaniques de deux charbons bitumineux Illinois pour comprendre comment les constituants chimiques contrôlent ces propriétés. Ils ont ainsi observé des variations importantes de la résistance et du module de flexion à la fois pour des faibles profondeurs (25 à 30m) et pour une profondeur de 305m. Ces variations peuvent soulever des problèmes de stabilité lors de l'injection de gaz pour

séquestration. Toutefois, la teneur en minéraux du charbon ne semble pas influencer sur le comportement mécanique du charbon bitumineux Illinois. D'autres études ont permis de savoir que la perméabilité du charbon est une fonction du temps d'exposition et de la nature du gaz (*Siriwardane et al. 2009*). Elle est cependant influencée à la fois par la présence de l'eau et de la saturation du charbon en eau (*Han et al. 2010*). En se basant donc sur les résultats de terrain et expérimentaux de laboratoire, plusieurs modèles de perméabilité ont été développés pour les veines de charbon (*Seidle and Huitt 1995 ; Palmer and Mansoori 1998 ; Pekot and Reeves 2003 ; Cui and Bustin 2005 ; Shi and Durucan 2005 ; Zhang et al. 2008 ; Wang et al. 2009 ; Liu and Rutqvist 2010 ; Izadi et al. 2011*).

Dans les modélisations du stockage géologique dans les charbons, les recherches se focalisent le plus souvent sur les variations de porosité, de perméabilité, de contraintes (plus souvent contraintes effectives), sur le rôle joué par le gonflement/retrait de la matrice dans ces variations et aussi sur les conditions du réservoir. Le rôle de la géométrie des fractures et la teneur en eau sur l'évolution des caractéristiques mécaniques et du transport a également été traité (*Shugang et al. 2011*). Le gonflement/retrait de la matrice du charbon est dû à un phénomène particulier dans les charbons : le phénomène de sorption (adsorption/désorption), principal mécanisme de production ou de séquestration de gaz dans la matrice du charbon. Les modélisations du stockage de gaz dans les veines de charbons nécessitent alors la prise en compte de ce phénomène. Ce chapitre fait aussi un rappel sur le mouvement (transport) de fluide au sein des charbons, les phénomènes de sorption ainsi que les isothermes permettant leur description (les isothermes de sorption). Ces isothermes sont nombreuses mais dans la plupart des modèles de perméabilité/porosité celle de Langmuir est la plus utilisée. Nous donnons aussi dans ce chapitre une synthèse sur les modèles de perméabilité/porosité, un bilan sur les perméabilités des charbons dans la littérature et les paramètres de l'isotherme de Langmuir.

3.2. Structure et propriétés des charbons

Les charbons sont généralement caractérisés comme des roches réservoir à double porosité. Ils sont généralement composés d'environ 78% de carbone ; 7,8% de matières volatiles ; 6,4% d'oxygène ; 5% d'hydrogène ; 1,4% de dioxyde ; 1,2% d'eau et 0,7% de soufre sous forme minérale (pyrite, sulfates) et organique. Les charbons comportent un réseau de fractures naturelles appelé 'cleat system'. Ils contiennent à la fois les systèmes de macropores et de micropores. Les micropores de la matrice rocheuse (dont les dimensions des pores sont inférieures à 500 Angström) forment une porosité dite 'primaire' et les fractures (dont les dimensions des pores sont supérieures à 500 Angström) forment une porosité dite 'secondaire' (*Kolesar et al. 1990 ; Défossez 2008*). Ce qui leur offre leur nom de roche à double porosité. Le système de macropores correspond aux voies principales de transport de gaz. La microporosité qui se situe à l'intérieur des blocs de la matrice de charbon, entourée et séparée par des fractures (cleats) et composée d'un grand nombre de pores interconnectés, est le lieu de stockage du méthane CH_4 (initialement contenu dans le charbon) sous forme adsorbée. Compte tenu de ce descriptif des charbons, ils sont généralement représentés par une série de blocs parallélépipédiques. Les blocs seront alors appelés matrices et l'espace entre les blocs, des fractures (*Harpalani and Chen 1995*). La Figure 7 montre le schéma d'une vue plane d'un charbon avec ses deux principaux types de fractures (*Harpalani and Chen 1995*) : les fractures transversales (face cleats) et les fractures longitudinales (butt cleats). Comme le montre sur la Figure 7, les "face cleats" sont verticaux et relativement continus le long de la veine et les "butt cleats" sont perpendiculaires aux "face cleats", plus courts que les "face cleats". Les "butt cleats" sont en plus discontinus et ont leur terminaison aux intersections avec les "face cleats". La largeur des "butt cleats" est un peu plus faible que

celles des "face cleats", qui s'échelonne de 0,25 cm à plusieurs centimètres (Défossez, 2008). Cependant, la largeur d'une fracture est liée au rang, à la composition pétrographique, au contenu en matières minérales, à l'épaisseur du lit et à l'histoire tectonique de la veine. D'après Harpalani et Chen (1995), la largeur d'une fracture décroît lorsque le rang augmente et lorsque l'épaisseur de la veine diminue.

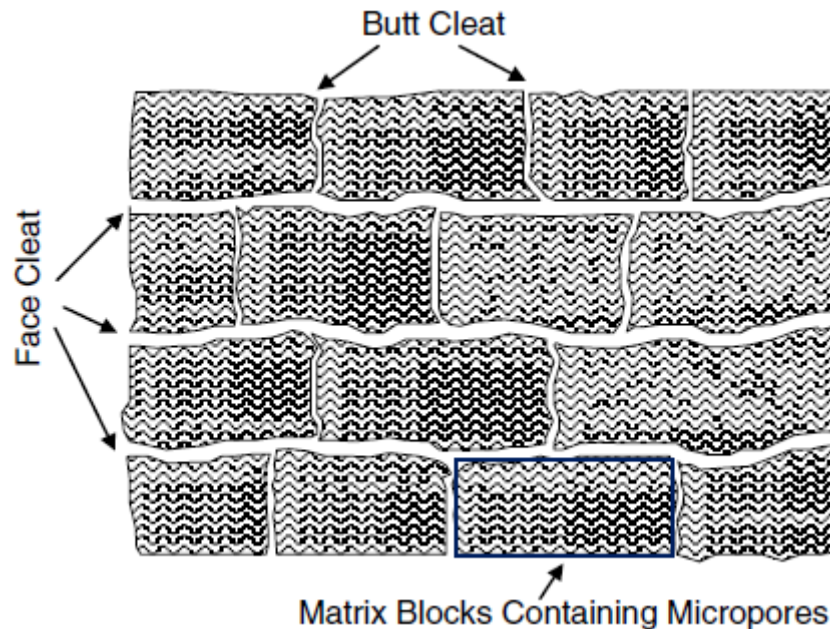


Figure 7. Schéma d'une vue en plan des deux principaux types de fractures existant dans le charbon, les fractures transversales (face cleat) et les fractures longitudinales (butt cleat).
D'après Harpalani and Chen (1995).

Le modèle conceptuel des blocs en allumettes est largement utilisé comme base pour la description des systèmes de fracture du charbon. Cela est dû à la circulation préférentielle de l'eau et des gaz par les "faces cleats" et les "butt cleats" au sein de la veine (Close 1993 ; Harpalani and Chen 1995). La Figure 8 montre deux modèles structuraux de ce type de représentation : un en isotropie et l'autre en anisotropie. Le deuxième est celui utilisé par Reiss (Reiss 1980) avec deux systèmes de fractures et le premier se présente comme une forme généralisée de ce dernier, avec trois systèmes de fractures (Van Golf-Racht, 1982). Chaque allumette représentant ici un block de matrice de charbon et les espaces entre les allumettes, les fractures. Les b_i sont les ouvertures uniformes des fractures et les a_i les espacements uniforme entre deux fractures.

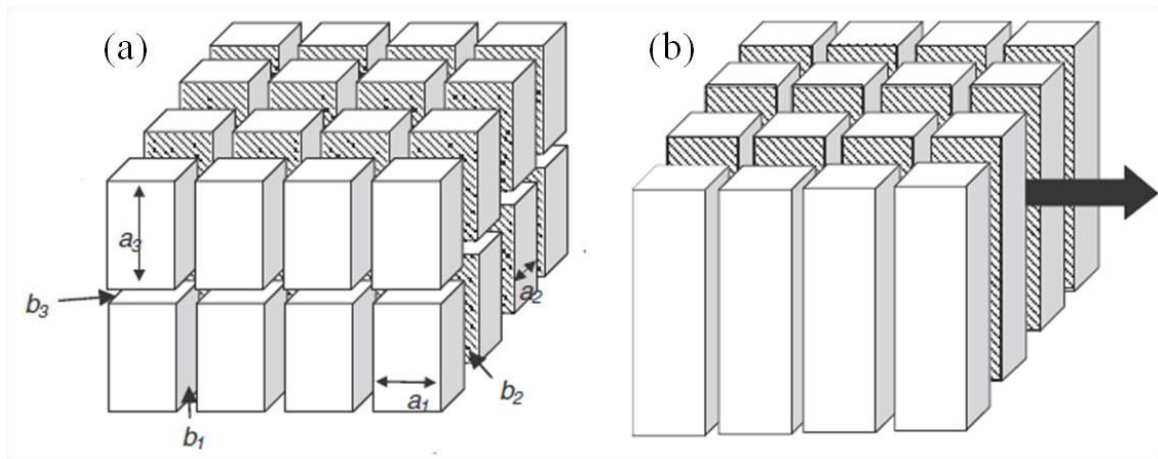


Figure 8. Géométries idéalisées du système des fractures du charbon (Van Golf-Racht 1982): en (a) anisotropie (3 cleat sets) et en (b) isotropie (2 cleat sets).

3.3. Classification des charbons

Les charbons sont souvent classés par leur rang, leur composition macérale et leur matière minérale. En effet, beaucoup de recherches ont montrées que la porosité du charbon dépend de son rang (Gan et al. 1972 ; Hall et al. 2000). La teneur en carbone est fréquemment utilisée comme indice de rang (le rang des charbons augmente avec la teneur en carbone). Les trois principales classifications depuis le rang supérieur jusqu'au rang inférieur sont la lignite (composée de 50 à 60% de carbone), le charbon bitumineux et l'anthracite (composé de 92 à 95% de carbone). Cependant, les charbons de rang supérieur auraient une perméabilité faible par rapport aux charbons de rang inférieur. Le Tableau 1 présente une classification des charbons. C'est une classification arrêtée par le groupe de travail sur le charbon de la Communauté Economique Européenne (CEE) (le groupe ayant pour nom la Communauté Européenne du Charbon et de l'Acier, en abrégé CECA) en regard de la dénomination utilisée par l'Agence Internationale de l'Energie Atomique (AIEA) et par la France. On remarque donc dans le tableau que les charbons de bas rang ont un pouvoir calorifique faible (1000-1500 kcal/kg). Cependant ils ont une humidité élevée (> 50%) et contiennent plus de matières volatiles (> 75%) : l'humidité et la volatilité des charbons décroissent donc du rang inférieur au rang le plus élevé.

Tableau 1. Classification des charbons arrêtée par la Communauté Européenne du Charbon et de l'Acier CECA (http://sfp.in2p3.fr/Debat/debat_energie/websfp/LE%20CHARBON.htm).

CEE	Peat	Lignite	Sub-Bitumineux	Bitumineux Haut volatiles	Bitumineux Bas volatiles	Anthracite
USA		Brown coal	Hard coal			
France	Tourbe	Lignite	Flambant sec	Flambant gras	Gras	Anthracite
Rang	Low	Low	Medium	Medium	High	High
Pouvoir calorifique kcal/kg	1000-1500	3500-4500	4500-6500	6500-7800	6500-7800	7800-8500
Humidité %	>50%	25-50%	14-25%	5-10%	5-10%	1-6%
Matières volatiles %	>75%	50%	25-50%	30-40%	15-25%	<10%
Teneur en cendre	50%	30-50%	20-30%	10-20%	10-20%	0-10%
Réflexion vitrinite (indice)	<0,30	0,30	0,35-0,45	0,5-1,25	1,5-2,0	2,0-5,0

3.4. Transport de fluides dans les charbons et les phénomènes d'adsorption-désorption

3.4.1. Le transport de fluides dans les charbons

Comme mentionné par Défossez dans le rapport de CHARCO (Défossez 2008), le transport de gaz à travers une veine de charbon est caractérisé par un processus en deux étapes. La première étape consiste à la désorption avec la diminution de la pression (ou à l'adsorption avec l'augmentation de la pression) due à une extraction (ou à une injection) de gaz des parois microporeuses. La deuxième étape se passe dans les fractures. Dans le cas d'une extraction, le gaz migre des micropores (dû typiquement à l'extraction de l'eau piégée dans les veines) vers les fractures, dans lesquelles il se déplace vers les puits de production (King *et al.* 1986). Dans le cas d'injection d'un gaz pour une séquestration géologique, celui-ci devra suivre une trajectoire opposée à celle du précédent cas : depuis le puits d'injection, le gaz migre des fractures vers les systèmes microporeux où il sera piégé. Quelles lois faut-il alors utiliser pour décrire le transport de fluides dans les charbons ?

Compte tenu de la structure des charbons (Figures 7 et 8), les gaz dans les micropores se trouvent sous forme adsorbée (due à la taille des micropores). Par contre, dans les fractures (les cleats system), les gaz se trouvent à l'état libre. Les gaz se trouvent alors sous deux

formes différentes dans les charbons. Ils doivent obéir alors à des lois différentes (Kolesar & al. 1990). Certains auteurs (Sawyer et al. 1990 ; Défossez 2008) ont cependant admis que le flux de gaz dans la matrice du charbon (milieu microporeux) obéit à la loi de diffusion de Fick. Dans les systèmes de fractures (cleats system) où le flux de gaz est généralement laminaire, le transport serait gouverné par la loi d'écoulement de Darcy (Gray 1987 ; Défossez 2008). Le flux de gaz dans les charbons résulte alors de la combinaison d'un transport de Darcy et d'un transport de Fick (Bai and Elsworth 2000; Elsworth and Bai 1992). Le transport du CO_2 à travers un charbon dépendra donc de la perméabilité de la veine et aussi de la perméabilité intrinsèque de la matrice du charbon. Il dépendra aussi donc du rang du charbon, du contenu macéral, de l'humidité, de la température et de la pression.

Cependant, la sorption de gaz est connue pour être le principal mécanisme de production ou de séquestration de gaz. Par exemple dans leurs études, Wu et al. (2010) ont montré que le volume de gaz libéré/séquestré au cours du stockage par unité de changement de pression dans le réservoir de gaz, et par unité de volume du réservoir, se compose de cinq éléments : le volume de gaz libéré/séquestré à partir de la phase libre du gaz ; le volume du gaz libéré/séquestré à partir de la phase d'adsorption/désorption du gaz ; le volume de gaz libéré/séquestré dû à la déformation des grains de charbon ; le volume de gaz libéré/séquestré dû au retrait/gonflement des grains du charbon et le volume de gaz libéré/séquestré dû à la déformation du squelette du charbon. Suite à leurs études sur ces différentes contributions, ils ont fait ressortir que le gaz libéré/séquestré de la phase d'adsorption/désorption contribue à lui seul pour environ 90% du total de la teneur du gaz. Ces caractéristiques (adsorption/désorption dans le charbon) font que le transport de gaz dans les veines de charbon est totalement différent des autres types de roches. Ces phénomènes doivent donc être pris en compte dans le cadre d'extraction ou de stockage de gaz dans les veines de charbon.

3.4.2. Les phénomènes d'adsorption-désorption

Les phénomènes d'adsorption-désorption sont des phénomènes qui caractérisent le mécanisme de sorption de gaz ou de fluides en général. L'adsorption correspond à la fixation des molécules de gaz ou de liquide à la surface du solide et la désorption est la transformation inverse de l'adsorption par la quelle les molécules adsorbées se détachent du substrat (notamment sous l'action de l'élévation de la température ou de la baisse de pression). La Figure 9 montre les mécanismes de ces deux phénomènes. Ces mécanismes sont souvent décrits par les isothermes de sorption.

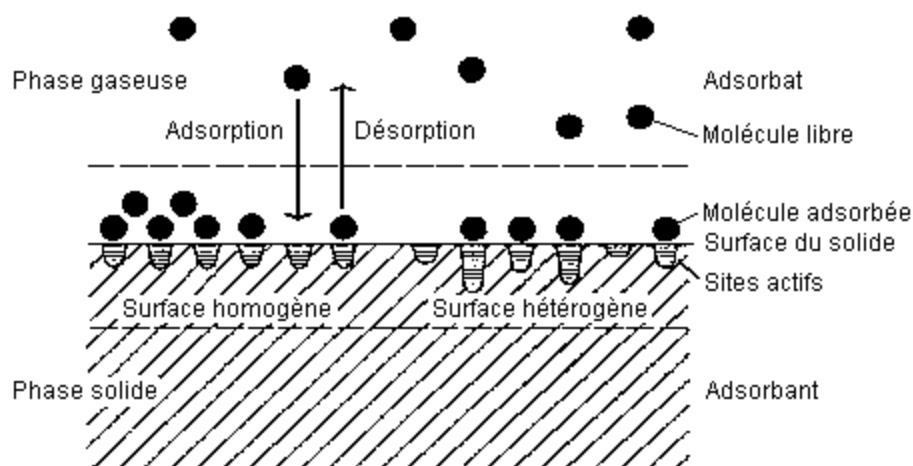


Figure 9. Mécanismes de l'adsorption et de la désorption. D'après <http://www.activatedcarbon.com/images/fig6.gif>.

3.5. Les isothermes de sorption

3.5.1. Définition

L'isotherme de sorption est la représentation de la quantité d'une molécule de gaz ou de liquide fixée/détachée sur/de l'interface de deux surfaces non miscible en fonction de la pression. L'isotherme d'adsorption est donc déterminée en partant d'un produit sec et celle de désorption en partant d'un produit saturé (séchage par exemple).

3.5.2. Formes des isothermes de sorption

On a plusieurs types d'isothermes de sorption. Celles-ci sont classées en 6 catégories (voir Figure 10) par International Union of Pure and Applied Chemistry - L'IUPAC (*Sing et al. 1985 ; Rouquerol et al. 1994*).

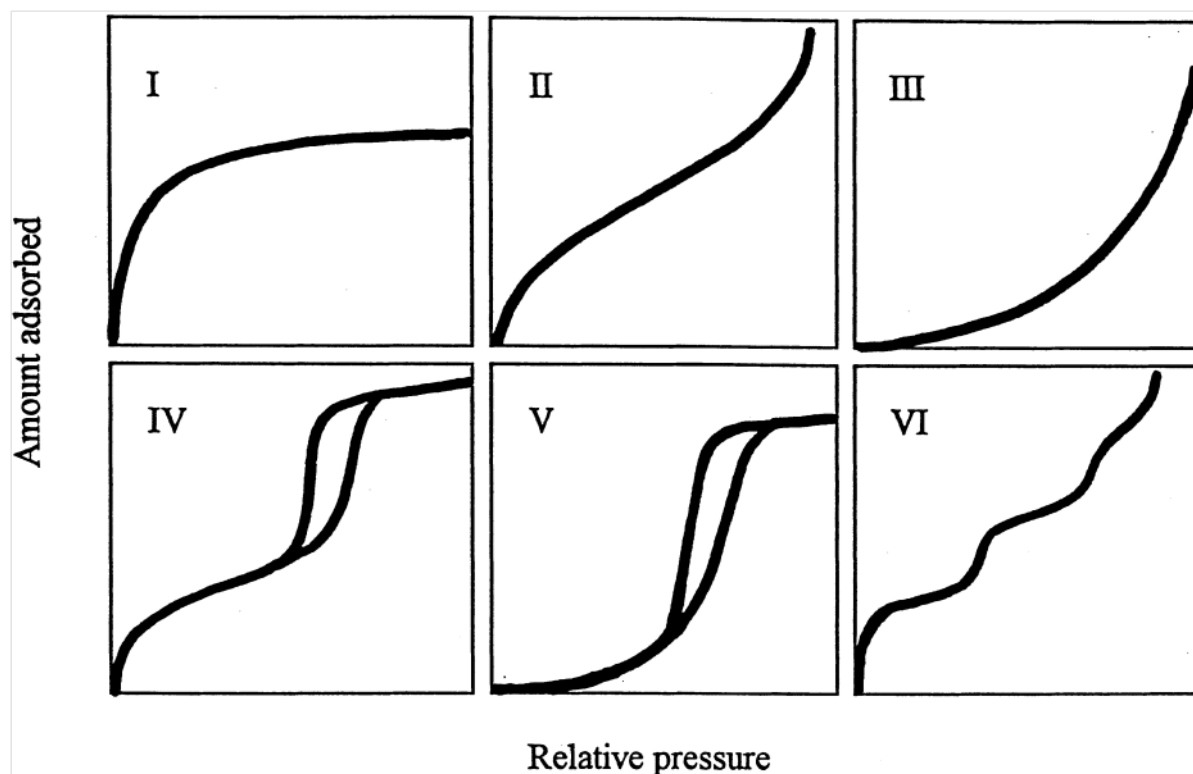


Figure 10. Différents types d'isothermes selon la classification de l'IUPAC.

Type I : Pour les isothermes de type I, le milieu considéré ne contient que des micropores. Elles sont caractérisées par une adsorption en monocouche.

Type II : Le milieu est macroporeux. Ces types d'isothermes sont caractéristiques d'une adsorption multimoléculaire (multicouche).

Type III : Elles ont même type de milieu que les isothermes de type II. Elles ont des interactions adsorbat-adsorbant relativement faibles.

Type IV : Les isothermes de ce type correspondent à un milieu mésoporeux dans lequel se produit la condensation capillaire.

Type V : Le milieu est du même type que les isothermes de type IV, avec des interactions adsorbat-adsorbant faibles. Ce type d'isothermes reflète aussi une forte interaction entre les adsorbats.

Type VI : Ce dernier type d'isothermes correspond à un milieu poreux dans lequel les couches adsorbées se forment les unes après les autres. Elles présentent des marches caractéristiques d'une adsorption multicouche sur une surface non-poreuse très homogène.

Cependant, certains auteurs comme Donohue et Aranovich (*Donohue et Aranovich 1998*) ont noté certaines déficiences pour cette classification. La raison de ces déficiences serait due au fait que la classification est basée sur le concept d'adsorption absolue et non sur le concept d'adsorption de Gibbs.

Pour décrire ces différents types (formes) d'isothermes, certains modèles des isothermes de sorption ont vu le jour.

3.6. Les modèles des isothermes de sorption

Parmi les modèles des isothermes de sorption, toutes classiques, on a les modèles d'adsorption monocouche, localisée et sans interactions latérales ; les modèles d'adsorption

monocouche, localisée et avec interactions latérales, et les modèles d'adsorption multicouche, localisée et sans interactions latérales. Toutes ces isothermes classiques seront par la suite corrigées par Tóth (1962) qui remarqua que plusieurs d'entre elles sont inexacts d'un point de vue thermodynamique.

3.6.1. Adsorption monocouche, localisée et sans interactions latérales

3.6.1.1. Le modèle de Henry

C'est le modèle d'isotherme d'adsorption le plus simple en ce sens que la quantité adsorbée est proportionnelle à la pression du gaz adsorbé P . Il est décrit par la loi de Henry et n'est vrai qu'aux faibles pressions :

$$q = \alpha_H P \quad (3-1)$$

Avec q la quantité adsorbée et α_H une constante dite de Henry.

3.6.1.2. Le modèle de Freundlich

Cette isotherme empirique proposée par Boedecker (*Boedecker 1859*) fut largement utilisée et popularisée par Freundlich (*Freundlich 1926*).

$$q = \alpha_F P^n \quad (3-2)$$

Les paramètres α_F et n dépendent du couple adsorbant-molécule adsorbée à une température donnée.

3.6.1.3. Le modèle de Langmuir

Le modèle d'isotherme de Langmuir (*Langmuir 1918*) est une isotherme d'adsorption particulière. L'isotherme est basée sur un modèle où les surfaces sont considérées comme homogènes. L'adsorption est locale, spécifique et se fait sur un nombre fini de sites sous la forme d'une monocouche. Cette adsorption peut être réversible : c'est-à-dire qu'à l'équilibre on peut donc considérer que les molécules qui s'adsorbent sont en quantité égale à celles qui se désorbent. En notant S le nombre de sites d'adsorption, P la pression de pore, q la quantité de gaz adsorbée et θ le taux de recouvrement, on peut donc écrire (*Garnier, 2009*) :

$$\frac{dq}{dt} = k_{ads} PS(1 - \theta) = k_{des} S\theta \quad (3-3)$$

Avec k_{ads} la constante d'adsorption et k_{des} la constante de désorption. En posant $\alpha_L = k_{ads}/k_{des}$, l'isotherme d'adsorption de Langmuir s'écrit alors :

$$\theta = \frac{\alpha_L P}{1 + \alpha_L P} \quad (3-4)$$

Le coefficient α_L est appelé constante de Langmuir et est dépendant de la température. Ce modèle est beaucoup plus utilisé surtout dans les modélisations phénoménologiques de perméabilité-porosité des charbons. Aux faibles pressions ($\alpha_L P$ sera alors très petit devant 1), on retrouve la formulation identique à celle de la loi de Henry (Eq. (3-1)).

3.6.1.4. Modèle de Tóth

En 1962, Tóth (*Tóth 1962*) a proposé une nouvelle isotherme faisant intervenir un paramètre t représentant l'hétérogénéité du matériau (milieu) :

$$\theta = \frac{\alpha_T P}{\left(1 + (\alpha_T P)^t\right)^{1/t}} \quad (3-5)$$

Le coefficient α_T est la constante d'isotherme de Tóth. Alors que l'utilisation de l'isotherme de Langmuir suppose implicitement une surface homogène, l'isotherme de Tóth suggère une surface hétérogène si $t \neq 1$.

Il existe bien sûr d'autres modèles tels que celui de Langmuir-Freundlich (*Sips 1948 et 1950*), de Freundlich généralisé, de Langmuir généralisé (*Marczewski et Jaroniec 1983 ; Jaroniec et Marczewski 1984*) etc... Mais ceux-ci ne seront pas décrits dans ce manuscrit. Le lecteur intéressé pourra se référer aux références bibliographiques.

3.6.2. Adsorption monocouche, localisée et avec interactions latérales

Ce type de modèle est essentiellement basé sur celui de Fowler-Guggenheim ou Bragg-Williams (*Fowler and Guggenheim 1965 ; Bragg and Williams 1934*). Ce modèle fait intervenir une hypothèse permettant de prendre en compte les interactions latérales. Il suppose donc que l'énergie d'interaction ω est constante pour n'importe quel taux de recouvrement :

$$\theta = \frac{\alpha_{FG} P e^{\omega\theta/kT}}{1 + \alpha_{FG} P e^{\omega\theta/kT}} \quad (3-6)$$

T est la température et k la constante de Boltzmann.

3.6.3. Adsorption multicouche, localisée et sans interactions latérales

Ce type de modèle d'adsorption est basé sur la théorie de Brunauer, Emmett et Teller - B.E.T. (*Brunauer et al. 1938*). Basée sur les mêmes hypothèses que celle de Langmuir, la théorie de B.E.T. s'étant à plusieurs couches, ce qui n'est pas le cas avec celle de Langmuir (limitée à la monocouche). Notant E_1 l'énergie d'adsorption de la première couche et E_l l'énergie de liquéfaction de l'adsorbat (aussi égale à l'énergie d'adsorption de toutes les autres couches), cette théorie est donnée par la relation :

$$\theta = \frac{C_{BET} \frac{P}{P_0}}{\left(1 - \frac{P}{P_0}\right) \left(1 + (C_{BET} - 1) \frac{P}{P_0}\right)} \quad (3-7)$$

La constante de B.E.T., C_{BET} est donnée par $C_{BET} = e^{(E_1 - E_l)/kT}$. Cette méthode est souvent utilisée afin de calculer la surface spécifique de l'adsorbant.

En plus des différents types d'adsorption précédemment cités, on peut ajouter celui d'adsorption multicouche, localisée et avec interactions latérales (basé sur la B.E.T. selon Hill), celui d'adsorption mobile et avec interactions latérales (basé sur les théories de DeDoer-

Hill (*DeDoer 1953 ; Hill 1964*) et de Volmer (*Volmer 1925*)) et aussi la théorie de Dubinin (*Jakubov and Mainwaring 2002*).

3.7. Correction des isothermes classiques par Tóth

En 1997, après avoir remarqué que plusieurs des isothermes classiques sont d'un point de vue thermodynamique inexacts (une affinité qui s'approche de l'infini quand la concentration atteint le zéro n'a aucun sens d'un point de vue thermodynamique), Tóth (*Tóth 1997*) a établi une modification de celles-ci en y réunissant les conditions thermodynamiques. Ces conditions thermodynamiques sont prises en compte par l'introduction d'une constante :

$$\chi_T = \frac{b_T}{P_m^t} + 1 \quad (3-8)$$

Dans cette relation, b_T est une constante de l'isotherme de Tóth et P_m la pression d'équilibre lorsque le taux de recouvrement $\theta_T = 1$, avec :

$$\theta_T = \left(\frac{\chi_T}{b_T + P^t} \right)^{1/t} P \quad (3-9)$$

Dans le même temps, il a proposé une forme corrigée de l'isotherme de Langmuir. Celle-ci est donnée par :

$$\theta_L = \frac{\chi_L P}{b_L + P} \quad (3-10)$$

Dans cette forme corrigée, la constante χ_L est donnée par :

$$\chi_L = \frac{b_T}{P_m} + 1 \quad (3-11)$$

Dans ces deux dernières équations, χ_L et b_L sont les constantes de Langmuir. L'isotherme de Langmuir est équivalente à celle de Tóth pour $t = 1$.

3.8. Les modèles phénoménologiques de perméabilité – porosité existants

Afin de coupler les différents phénomènes impliqués dans l'évolution de la perméabilité au cours de l'injection/récupération de gaz dans le charbon, plusieurs auteurs ont établi des modèles de perméabilité de charbon qui intègrent à la fois le couplage Hydro-Mécanique et les phénomènes de sorption. Ces modèles sont principalement basés sur la théorie de l'élasticité linéaire et utilisent la théorie de Langmuir pour la description du phénomène de sorption. Dans ce paragraphe, nous donnons quelques une des formulations de ces modèles.

Les modélisations théoriques de la perméabilité du charbon sont basées sur les relations porosité-perméabilité, contrainte-perméabilité, les effets du gonflement/retrait de la matrice du charbon (rôle du gonflement dans la relation perméabilité-contrainte, la réponse géomécanique au gonflement/retrait de la matrice dans la modélisation de la perméabilité, la modélisation des déformations de gonflement/retrait de la matrice) et sur les conditions du réservoir.

En se basant par exemple sur le modèle conceptuel du charbon de la Figure 8, la perméabilité est donnée, pour une direction i par :

$$k_i = \frac{b_i^3}{12a_i}, \text{ soit donc } \frac{k_i}{k_{i0}} = \left(\frac{b_i}{b_{i0}} \right)^3 \quad (3-12)$$

L'indice 0 se référant à l'état de référence et en supposant l'ouverture faible comparativement à l'espacement. La porosité ϕ dans ce cas anisotrope peut s'écrire :

$$\phi = \sum_{i=1}^3 \frac{b_i}{a_i} \text{ (Pour la Figure 8a)} \quad (3-13)$$

$$\phi = \sum_{i=1}^2 \frac{b_i}{a_i} \text{ (Pour la Figure 8b)} \quad (3-14)$$

Sous les conditions d'isotropie les porosités précédentes deviennent :

$$\phi = \frac{3b}{a}, \text{ (Ex. Robertson et al. 2006) pour la Figure 8a} \quad (3-15)$$

$$\phi = \frac{2b}{a}, \text{ pour la Figure 8b} \quad (3-16)$$

En substituant ces deux différentes porosités dans l'expression de la perméabilité (Eq. (3-12)) on aura :

$$k = \frac{1}{96} a^2 \phi^3, \text{ pour la Figure 8a} \quad (3-17)$$

$$k = \frac{1}{48} a^2 \phi^3, \text{ pour la Figure 8b.} \quad (3-18)$$

Dans tous les cas on aura :

$$\frac{k}{k_0} = \left(\frac{a}{a_0} \right)^2 \left(\frac{\phi}{\phi_0} \right)^3 \quad (3-19)$$

L'hypothèse faite dans la plupart des modèles est que les variations de la taille de la matrice due au gonflement/retrait et des forces mécaniques sont négligeables comparées à celles de la porosité. Ce qui conduit à dire que $a \approx a_0$. La relation porosité-perméabilité (Eq. (3-19)) sera alors donnée par :

$$\frac{k}{k_0} = \left(\frac{\phi}{\phi_0} \right)^3 \quad (3-20)$$

3.8.1. Quelques équations des modèles de perméabilité des charbons

Le premier modèle de perméabilité du charbon a été proposé par Gray (*Gray 1987*). Ce modèle prend en compte à la fois les effets géomécaniques et le gonflement/retrait de la matrice du charbon lié au phénomène de sorption. Les effets géomécaniques correspondent aux variations des contraintes effectives dues aux variations de la pression interstitielle. Ces

variations (des contraintes effectives) vont entraîner une augmentation/diminution du volume des pores. Les effets du gonflement/retrait de la matrice, liés à l'adsorption/désorption, vont induire une diminution/augmentation de la porosité du charbon. Le modèle de Gray est basé sur la théorie de l'élasticité avec une approche de déformations uniaxiales et de contrainte verticale constante :

$$\sigma_h^e - \sigma_{h0}^e = -\frac{\nu}{1-\nu}(P - P_0) + \frac{E}{(1-\nu)} \frac{\Delta \varepsilon_s}{\Delta P_s} \Delta P_s \quad (3-21)$$

Où σ_h^e , σ_{h0}^e sont respectivement la contrainte effective horizontale et horizontale initiale, ΔP_s la variation de la pression équivalente de sorption, $\Delta \varepsilon_s / \Delta P_s$ la déformation causée par un changement d'une unité de la pression équivalente de sorption. Dans ce modèle, le gonflement/retrait est donc proportionnel à la pression équivalente de sorption. Dans l'équation (3-21), ν est le coefficient de Poisson, P et P_0 respectivement la pression interstitielle et interstitielle initiale, et E le module de Young. L'équation reliant les variations de contraintes effectives à la perméabilité utilisée par Gray est similaire à :

$$k = k_0 \exp\left(-3c_f \left(\sigma_h^e - \sigma_{h0}^e - (P - P_0)\right)\right) \quad (3-22)$$

Dans cette équation, k et k_0 sont respectivement la perméabilité et perméabilité initiale, c_f la compressibilité des fractures.

En 1990, un autre modèle basé sur les variations de la porosité fut proposé par Sawyer et al. (Sawyer et al. 1990). Ce modèle se base sur un système de fractures verticales et utilise la loi de Fick pour décrire la circulation du gaz dans les blocs matriciels, et l'isotherme de sorption de Langmuir pour décrire la sorption de gaz dans la matrice du charbon. Cette isotherme de Langmuir est donnée dans le modèle par la relation :

$$C(P) = \frac{V_L P}{P_L + P} \quad (3-23)$$

Où V_L est le volume limite de Langmuir, P_L la pression limite de Langmuir, P la pression de pores et $C(P)$ la concentration en gaz de la matrice rocheuse. La forme du modèle est donnée par :

$$\phi = \phi_0 \left(1 + c_p (P - P_0)\right) - c_m (1 - \phi_0) \frac{\Delta P_0}{\Delta C_0} (C - C_0) \quad (3-24)$$

Où c_p et c_m sont respectivement la compressibilité du volume de pores et la compressibilité de la matrice, ϕ et ϕ_0 la porosité et porosité initiale, C et C_0 la concentration en gaz et concentration en gaz initiale du réservoir. La relation entre la perméabilité et la porosité utilisée est donnée par l'équation (3-20). Ce modèle de Sawyer et al. (1990) est étendu par Pekot et Reeves (Pekot and Reeves 2003) pour la prise en compte du gonflement différentiel de la roche. Ces derniers (Pekot and Reeves) ont pour cela intégré un coefficient de gonflement différentiel c_k au modèle de Sawyer et al. (1990) et font intervenir la concentration totale en gaz du réservoir C_t :

$$\phi = \phi_0 \left(1 + c_p (P - P_0)\right) - c_m (1 - \phi_0) \frac{\Delta P_0}{\Delta C_0} \left((C - C_0) + c_k (C_t - C)\right) \quad (3-25)$$

La relation entre perméabilité et porosité utilisée par les auteurs est la même que celle utilisée par *Sawyer et al. (1990)* (Eq. (3-20)).

En se basant sur les variations de porosité, *Seidle et Huitt (Seidle and Huitt 1995)* ont proposé un nouveau modèle en ne considérant que les effets de gonflement/retrait du charbon. Les effets des propriétés élastiques sont donc négligeables pour ce modèle devant les déformations causées par les phénomènes de sorption lors des fluctuations de la pression interstitielle. Le modèle utilise aussi l'isotherme de sorption de type Langmuir pour décrire la sorption de gaz dans la matrice du charbon :

$$\varepsilon_s = \frac{\varepsilon_L \beta_L P}{1 + \beta_L P} \quad (3-26)$$

Où ε_s est la déformation de sorption, ε_L la déformation volumique maximale atteinte quand P tend vers $+\infty$ (déformation de Langmuir), $\beta_L = 1/P_L$ avec P_L pression limite de Langmuir, et P la pression de pore. Le modèle formulé est donné par :

$$\frac{\phi}{\phi_0} = 1 + \varepsilon_L \left(1 + \frac{2}{\phi_0} \right) \left(\frac{\beta_L P_0}{1 + \beta_L P_0} - \frac{\beta_L P}{1 + \beta_L P} \right) \quad (3-27)$$

La relation entre la perméabilité et la porosité utilisée par ces auteurs est donnée par l'équation (3-20).

Pour leurs études, *Palmer et Mansoori (Palmer and Mansoori 1998)* ont établi un modèle théorique de perméabilité des charbons prenant en compte à la fois les effets des contraintes effectives et du retrait de la matrice via une seule équation. Ce modèle prédit aussi la compressibilité de volume de pores (PV). Cette compressibilité des pores (PV) est supposée non constante pour ces auteurs contrairement à ce qui est habituellement supposé. Les hypothèses de formulation du modèle sont basées sur un domaine de petites déformations (l'élasticité linéaire), ce qui leur permet d'obtenir la relation entre la variation de la déformation volumique des pores $d\varepsilon_p$, la variation de la déformation volumique de la roche $d\varepsilon_r$, la variation de la déformation volumique des grains $d\varepsilon_g$ et de la porosité ϕ du milieu de la forme suivante :

$$d\varepsilon_r = \phi d\varepsilon_p + (1 - \phi) d\varepsilon_g \quad (3-28)$$

La compressibilité du fluide contenu dans les pores est supposée très élevée. Les variations de la déformation volumique des pores $d\varepsilon_p$ conduisent aux variations de la porosité données par :

$$-d\phi = \left(\frac{1}{M} - (1 - \phi) f \gamma \right) (dS - dP) + \left(\frac{K}{M} - (1 - \phi) \right) \gamma dP - \left(\frac{K}{M} - (1 - \phi) \right) \alpha dT \quad (3-29)$$

Où f est un coefficient compris entre 0 et 1, γ la compressibilité des grains, M le module axial, K le module d'incompressibilité de la roche, P la pression des pores, T la température, α le coefficient de dilatation thermique des grains et dS la variation du poids des terres. Dans la suite de leur formulation, la porosité est supposée très petite devant l'unité ($\phi \ll 1$) et le poids des terres constante ($dS = 0$). Ce qui simplifie l'équation précédente qui devient :

$$-d\phi = -\frac{1}{M} dP + \left(\frac{K}{M} + f - 1 \right) \gamma dP - \left(\frac{K}{M} - 1 \right) \alpha dT \quad (3-30)$$

L'isotherme d'adsorption de Langmuir est utilisée pour la prise en compte de la sorption. Celle-ci est donnée par la déformation volumique avec l'adsorption de gaz:

$$\frac{\Delta V}{V} = \varepsilon_L \frac{\beta_L P}{1 + \beta_L P} \quad (3-31)$$

Cette utilisation est faite suivant une approche analogique à la variation de déformation volumique par variation d'unité de température ou de pression :

$$\alpha dT = \frac{d}{dP} \left(\frac{\varepsilon_L \beta_L P}{1 + \beta_L P} \right) dP \quad (3-32)$$

Dans l'Eq. (3-32), ε_L et β_L sont les paramètres de Langmuir liés dans le modèle (pour les applications numériques) par la relation $\varepsilon_L = 8\beta_L$ (le nombre 8 vient de l'utilisation de l'unité *psi*). Cette relation entre les paramètres de Langmuir est utilisée par ces auteurs pour pouvoir correspondre leur modèle à des données expérimentales. Les variations de porosité deviennent alors :

$$d\phi = \frac{1}{M} dP - \left(\frac{K}{M} + f - 1 \right) \gamma dP + \left(\frac{K}{M} - 1 \right) \frac{d}{dP} \left(\frac{\varepsilon_L \beta_L P}{1 + \beta_L P} \right) dP \quad (3-33)$$

Ce qui revient, par intégration :

$$\phi = \phi_0 \left(1 - c_m (P - P_0) \right) + \varepsilon_L \left(\frac{K}{M} - 1 \right) \left(\frac{\beta_L P}{1 + \beta_L P} - \frac{\beta_L P_0}{1 + \beta_L P_0} \right) \quad (3-34)$$

Avec des définitions suivantes :

$$c_m = \frac{1}{M} - \left(\frac{K}{M} + f - 1 \right) \gamma \quad (3-35)$$

$$M = \frac{E(1-\nu)}{(1+\nu)(1-2\nu)} \quad (3-36)$$

$$K = \frac{E}{3(1-2\nu)} \quad (3-37)$$

E étant le module de Young et ν le coefficient de Poisson. L'équation (3-20) est utilisée pour relier la perméabilité à la porosité. En 2003, Pekot et Reeves (*Pekot and Reeves 2003*) ont reformulé le modèle de Palmer et Mansoori en supposant négligeable la compressibilité des grains γ . La fonction c_m de Palmer et Mansoori (Eq. (3-35)) est alors donnée dans leur modèle (modèle de Pekot et Reeves) par :

$$c_m = \frac{1}{M} \quad (3-38)$$

Le modèle de Palmer et Mansoori (*Palmer and Mansoori 1998*) fut modifié en 2007 par Palmer et al. (*Palmer et al. 2007*) afin de prendre en compte l'évolution exponentielle de la perméabilité. Ceux-ci ont ainsi défini une nouvelle fonction c_m :

$$c_m = \frac{g}{M} - \left(\frac{K}{M} + f - 1 \right) \gamma \quad (3-39)$$

g est un terme géométrique relié à l'orientation du système des fractures naturelles.

En résumé, le modèle de Palmer et Mansoori est un modèle basé sur la théorie de l'élasticité linéaire et n'est valable que dans les conditions de déformation uniaxiale. Cependant, l'hypothèse de négliger la porosité devant l'unité sera une grande erreur pour les charbons de porosité en peu plus élevée (10% par exemple). Par ailleurs, ce modèle a servi de base à d'autres modèles.

En 2000, Gilman et Beckie (*Gilman and Beckie 2000*) proposèrent un modèle mathématique simplifié utilisant l'hypothèse de déformation uniaxiale et la formule de Terzaghi. Les auteurs supposèrent que la veine de charbon est horizontale, que le méthane (se comportant comme un gaz parfait avec une viscosité indépendante de la température) est la seule substance en mouvement dans la veine de charbon (l'eau et les autres gaz sont négligés), que le système est en condition isotherme, et que la fracture (ou la galerie) est verticale et perpendiculaire à la veine de charbon. Les variations de contraintes effectives 1D (suivant l'horizontal) par rapport aux variations de pression de pores et des déformations de gonflement sont obtenues à partir des lois de l'élasticité linéaire et en admettant que les déformations dues à la sorption sont proportionnelles à la quantité de gaz adsorbé :

$$\Delta \sigma_x^e = -\frac{\nu}{1-\nu} \Delta P + \frac{E}{1-\nu} \alpha \Delta S \quad (3-40)$$

E est le module de Young, ν le coefficient de Poisson, ΔS est la variation de la masse adsorbée, α le coefficient volumique de gonflement/retrait de la matrice du charbon. Cette équation est de la même forme que celle de Gray (*Gray 1987*) (Eq. (3-21)). La relation liant la perméabilité aux variations des contraintes utilisée par les auteurs (Gilman et Beckie) est donnée par :

$$k = k_0 \exp \left(-\frac{3\Delta \sigma_x^e}{E_F} \right) \quad (3-41)$$

Où E_F est l'analogie du module de Young pour les fractures. Cette équation est obtenue en définissant la perméabilité par la relation :

$$k = \frac{b^3}{12a} \quad (3-42)$$

En remplaçant donc les variations de la contrainte effective par son expression, on obtient la formulation finale du modèle de Gilman et Beckie :

$$\frac{k}{k_0} = \exp \left(\frac{3\nu}{1-\nu} \frac{\Delta P}{E_F} \right) \exp \left(-\frac{3\alpha E}{1-\nu} \frac{\Delta S}{E_F} \right) \quad (3-43)$$

En 2004, Shi et Durucan (*Shi and Durucan 2004a, 2005*) ont développé un autre modèle de perméabilité à partir des équations constitutives de la poroélasticité linéaire isotrope. La procédure est similaire à celle de Palmer et Mansoori. Ils ont aussi utilisé l'hypothèse des conditions de déformation uniaxiale selon la verticale. Le modèle est présenté comme suit :

$$\sigma_h^e - \sigma_{h0}^e = -\frac{\nu}{1-\nu} (P - P_0) + \frac{E \varepsilon_s}{3(1-\nu)} \quad (3-44)$$

Cette équation a la même forme que celle de Gilman and Beckie (Eq. (3-40)) et de Gray (Eq. (3-21)), avec ε_s la déformation de sorption, décrite par l'isotherme de sorption de Langmuir :

$$\varepsilon_s = \varepsilon_L \left(\frac{\beta_L P}{1 + \beta_L P} - \frac{\beta_L P_0}{1 + \beta_L P_0} \right) \quad (3-45)$$

Pour relier la perméabilité avec les contraintes effectives dans leur modèle, Shi et Durucan ont utilisé la relation donnée par l'équation (3-22) :

$$k = k_0 \exp \left(-3c_f \left(\sigma_h^e - \sigma_{h0}^e - (P - P_0) \right) \right) \quad (3-22)$$

Ce qui donne, en utilisant aussi l'équation (3-44), le modèle établi par ces derniers :

$$k = k_0 \exp \left(-3c_f \left(\frac{\nu}{1-\nu} (P - P_0) + \frac{\varepsilon_L}{3} \frac{E}{1-\nu} \left(\frac{\beta_L P}{1 + \beta_L P} - \frac{\beta_L P_0}{1 + \beta_L P_0} \right) \right) \right) \quad (3-46)$$

En se basant aussi sur la théorie de la poroélasticité linéaire, Cui et Bustin (*Cui and Bustin 2005*) ont développé un modèle qui s'applique dans les mêmes conditions que celui de Palmer et Mansoori (*Palmer and Mansoori 1998*). Les auteurs s'appuient donc sur des déformations uniaxiales et sur l'hypothèse de la contrainte lithostatique constante ($d\sigma_{zz} = 0$). Les variations de contrainte (contrainte normale moyenne) sont alors données par (les auteurs supposent que le module de compressibilité des grains K_S est très supérieur au module d'incompressibilité de la roche K , ce qui revient à dire que le coefficient de Biot b est égal à 1) :

$$\sigma - \sigma_0 = \frac{2(1-2\nu)}{3(1-\nu)} \left((P - P_0) + K(\varepsilon_v - \varepsilon_{v0}) \right) \quad (3-47)$$

La porosité dans le modèle de Cui et Bustin est donnée par :

$$\phi = \phi_0 \exp \left(\left(\frac{1}{K} - \frac{1}{K_p} \right) \left((\sigma - \sigma_0) - (P - P_0) \right) \right) \quad (3-48)$$

En utilisant la relation entre perméabilité et porosité de l'équation (3-20) et en supposant que le module d'incompressibilité de la roche K est très supérieur à K_p ($1/K_p$ est défini comme le module ou la compressibilité du volume de pore par Cui et Bustin), le modèle est donné par :

$$\frac{k}{k_0} = \exp \left(\frac{3}{K_p} \left(\frac{1+\nu}{3(1-\nu)} (P - P_0) - \frac{2E}{9(1-\nu)} (\varepsilon_v - \varepsilon_{v0}) \right) \right) \quad (3-49)$$

Ces auteurs utilisent la théorie de Langmuir pour déterminer le volume de gaz adsorbé.

Le modèle de perméabilité de Robertson et Christiansen (*Robertson and Christiansen 2006*) quant à lui se base sur les conditions de contraintes variables communément utilisé dans l'interprétation des données en laboratoire. Il est établi pour une géométrie cubique du charbon sous les pressions de confinement biaxiale ou hydrostatique, en prenant en compte les effets du gonflement/retrait sur la perméabilité. Ils utilisent la même relation de variations de la perméabilité avec les contraintes que celle de Gilman et Beckie (*Gilman and Beckie 2000*) donnée par l'équation (3-41). Le modèle est alors exprimé par la relation :

$$\frac{k}{k_0} = \exp \left(3c_f (P - P_0) + \frac{9}{\phi_0} \left(\left(\frac{1-2\nu}{E} (P - P_0) - \frac{\varepsilon_L}{1 + \beta_L P_0} \ln \left(\frac{1 + \beta_L P}{1 + \beta_L P_0} \right) \right) \right) \right) \quad (3-50)$$

Avec la compressibilité des fractures c_f définie comme (Mckee et al. 1988) :

$$c_f = \frac{c_0}{\alpha(\sigma - \sigma_0)} (1 - \exp(-\alpha(\sigma - \sigma_0))) \quad (3-51)$$

α est le taux de variation de la compressibilité des fractures, c_0 la compressibilité initiale des fractures. Ce modèle utilise aussi l'isotherme d'adsorption de Langmuir (exprimée en termes de déformation) pour décrire la sorption de gaz (Eq. (3-26)).

En 2010, Connell et al. (Connell et al. 2010b) ont établi de nouveaux modèles de perméabilité pour les conditions de déformation et de contrainte triaxiale. Ces modèles dérivent des lois constitutives de la poroélasticité linéaire et incluent les effets de déformations et de contraintes triaxiales pour un charbon subissant un gonflement induit par l'adsorption. Les auteurs ont dans leur approche fait la distinction entre la déformation de sorption de la matrice du charbon, la déformation volumique des pores (ou fractures) et la déformation de la roche. Deux représentations générales du modèle analytique de la perméabilité sont avant tout établies : une sous forme exponentielle et l'autre sous forme cubique. Ces modèles sont établis de manière consistante avec les modèles de perméabilité de Shi and Durucan (Shi and Durucan 2004a, 2005) et Palmer and Mansoori (Palmer and Mansoori 1998), et tiennent compte de la sensibilité de la perméabilité du charbon aux variations des contraintes effectives et à la déformation volumique. La forme exponentielle de leur modèle est donnée par :

$$k = k_0 \exp \left\{ -3 \left(C_{pc}^M \left(\tilde{P}_c - \tilde{P}_p \right) + \left(\tilde{\varepsilon}_p^S - \tilde{\varepsilon}_b^S \right) \right) \right\} \quad (3-52)$$

Dans cette expression, k et k_0 sont respectivement la perméabilité et perméabilité initiale, P_p est la pression de pore, P_c la pression de confinement, ε_p^S et ε_b^S sont respectivement les déformations de la roche et des pores dues à la sorption du gaz et fonction de la pression des pores P_p , C_{pc}^M la compressibilité des fractures. Le signe ' $\sim$ ' désignant l'incrément de la fonction concernée depuis l'instant initial.

La forme cubique quand à elle est donnée (en utilisant la relation entre la perméabilité et la porosité de l'équation (3-20)) par :

$$k = k_0 \left\{ 1 - \frac{1}{\phi_0} \left(\frac{1}{K} \left(\tilde{P}_c - \tilde{P}_p \right) + \left(\tilde{\varepsilon}_b^S - \tilde{\varepsilon}_m^S \right) \right) \right\}^3 \quad (3-53)$$

Où ϕ_0 est la porosité initiale, K le module d'incompressibilité et ε_m^S la déformation de la matrice due à la sorption.

La formulation sous forme exponentielle (Eq. (3-52)) est utilisée pour l'application aux contraintes et déformations autres qu'hydrostatiques. Elle a été reformulée sous diverses conditions triaxiales telles que la condition de contraintes de confinement non hydrostatiques et la condition de contraintes de confinement rigide. L'isotherme de sorption de type Langmuir est utilisée par ces auteurs pour décrire le gonflement. Elle est donnée par :

$$\tilde{\varepsilon}_b^S = -\varepsilon_L \left(\frac{\beta_L P_p}{1 + \beta_L P_p} - \frac{\beta_L P_p^0}{1 + \beta_L P_p^0} \right) \quad (3-54)$$

Ces modèles sont ensuite utilisés pour décrire les mesures de perméabilité de laboratoire sous les conditions triaxiales.

3.8.2. D'autres modèles

Beaucoup d'autres modèles de perméabilité-porosité existent parmi lesquels on peut citer le modèle de Harpalani and Zhao (*Harpalani and Zhao 1989*), le modèle de Levine (*Levine 1996*), le modèle de Liu and Rutqvist (*Liu and Rutqvist 2010*), le modèle de Liu et al. (*Liu et al. 2010*) et bien d'autres encore. Ceux-ci ont aussi vu le jour pour l'étude des phénomènes impliqués au cours de l'injection de gaz dans le charbon. Un certain nombre de modèles ont été développés pour décrire le comportement de la perméabilité du charbon dans des conditions plus compliquées ou à l'aide de différentes interprétations (*Connell et al. 2010a, 2010b; Gu and Chalaturnyk 2010; Izadi et al. 2011; Liu et al. 2011a, 2011b; Ma et al. 2011; Pan and Connell 2011; Wang et al. 2009; Wu et al. 2010*). La plupart prennent en compte l'anisotropie de la perméabilité, et la plupart de ces modèles sont discutés dans la revue des modèles analytiques de Pan et Connell (*Pan and Connell 2012*).

Dans d'autres travaux, des simulations couplées écoulement-géomécanique ont été appliquées aux "Coalbed Methane" (CBM) et aux "Enhanced Coalbed Methane" (ECBM) pour étudier le rôle des processus géomécaniques sur le comportement de la perméabilité (*Connell 2009; Connell and Detournay 2009; Gu and Chalaturnyk 2006, 2010; Wei and Zhang 2010; Zhao et al. 2004; Zhu et al. 2007*). La performance des forages a été modélisée par Russell et al. (2011) avec utilisation d'une technique de récupération assistée.

De ces différents développements de modèles de perméabilité des charbons, certaines conclusions peuvent être données.

3.8.3. Quelques conclusions sur les modèles analytiques de perméabilité du charbon

De ces nombreux modèles de perméabilité, plusieurs informations peuvent être tirées des études faites par leurs auteurs.

Sous les conditions de contrainte totale constante, la perméabilité des gaz diminue avec l'augmentation de la pression interstitielle en raison du gonflement du charbon (*Mazumder et Wolf 2008; Pan et al. 2010; Robertson et Christiansen 2005; Wang et al. 2010b*) et augmente avec la diminution de la pression des pores due au retrait de la matrice (*Cui and Bustin 2005; Harpalani and Chen 1997; Harpalani and Schraufnagel 1990; Seidle and Huitt 1995*). Gray (*Gray 1987*) a déterminé à partir de son étude que la diminution de la perméabilité avec la contrainte effective est contrecarrée lors de la production primaire par le rétrécissement de la matrice du charbon due à la désorption du gaz. Ce rétrécissement ouvre les pores, augmentant ainsi la porosité du charbon qui sans doute inhibe la diminution de la perméabilité due aux variations des contraintes effectives. En effet, la matrice se comprime (se contracte) par exemple sous l'effet de l'augmentation des contraintes effectives ou de la désorption de gaz (*Palmer and Mansoori 1998*).

Cette variation de la perméabilité est fortement contrôlée par la pression du réservoir, la déformation de sorption associée, et plusieurs autres facteurs (i.e., les propriétés mécaniques, l'orientation des veines ou la structure des fractures ('cleat'), les contraintes *in situ* du domaine, et le pliage du réservoir) (*Cui and Bustin 2005*). Par exemple (concernant les

propriétés mécaniques) pour un charbon avec un module de Young et un coefficient de Poisson élevés, une constante de gaz et de pression de Langmuir élevées, la perméabilité subit moins de réduction au cours des premiers stades et un rebondissement plus fort durant les derniers stades de production (Cui and Bustin 2005). L'augmentation de la teneur en gaz due à l'adsorption du CO_2 au cours d'ECBM conduit à un gonflement du charbon (fermeture des pores et donc diminution de la porosité) et à une diminution de la perméabilité (Van Bergen et al. 2006). Par exemple avec une augmentation de pression de confinement allant de 0,1 à 70 MPa, les perméabilités peuvent diminuer de cinq ordres de grandeur (Somerton et al. 1975 ; Durucan and Edward 1986 ; Huy et al. 2010).

Coté expérimental, des expériences ont montré que lors de l'injection du mélange gazeux CO_2 - CH_4 , le CO_2 est préférentiellement adsorbé par rapport à CH_4 (Clarkson et Bustin 1999 ; Busch et al. 2003 ; Mastalerz et al. 2004 ; Bae et Bhatia 2006 ; Harpalani et al. 2006 ; Ottiger et al. 2008 ; Battistutta et al. 2010 ; Li et al. 2010 ; Shugang et al. 2011). Cependant, quelque soit le gaz, la capacité de sorption est réduite par la présence d'eau dans le milieu poreux (Siemons et Busch 2007 ; Gruszkiewicz et al. 2009 ; Kelemen and Kwiatak 2009 ; Shugang et al. 2011). Cette réduction de capacité de sorption serait due à une concurrence entre les molécules d'eau et la sorption du gaz pour les sites de sorption sur les surfaces du charbon (Busch et al. 2007 ; Van Bergen et al. 2009). Par conséquent, la déformation liée au gonflement des charbons humides sera inférieure à celle des charbons secs (Mazumder and Wolf 2008 ; Van Bergen et al. 2009 ; Kiyama et al. 2011). Ceci illustre donc l'effet de l'eau sur le gonflement. La diminution de la capacité de sorption du charbon peut être aussi causée par application d'une contrainte (Hol et al. 2011 ; Shugang et al. 2011). Cependant, la perméabilité est principalement déterminée par l'ouverture et la géométrie des fractures (cleat) (Zhang et al. 2008 ; Wu et al. 2010a, b ; Shugang et al. 2011) dont le changement est une fonction de la contrainte effective à travers les lois de poroélasticité (Wu et al. 2010a, b ; Izadi et al. 2011). Dans les conditions *in situ*, la géométrie du réseau des fractures et l'état de saturation exercent une influence importante sur l'évolution de la perméabilité (Shugang et al. 2011). Le gonflement du charbon et le retrait sous une pression de confinement peut aussi changer l'ouverture des fractures (Wu et al. 2010a, b ; Izadi et al. 2011). Ainsi, la variation nette de la perméabilité du charbon est une fonction à la fois de la réponse poroélastique et du gonflement/retrait de la matrice du charbon.

Dans nos modélisations, nous nous baserons sur l'approche de Palmer et Mansoori (Palmer and Mansoori 1998), pour la prise en compte du phénomène de sorption pour établir notre modèle de porosité. Ceux-ci ont émis l'idée de la nécessité de cette prise en compte dans les variations de la porosité/perméabilité et de sa dépendance de la pression de pore. Nous utiliserons ensuite un code de calcul de structures, code entièrement couplé Thermo-Hydro-Mécanique (THM) développé par EDF, dans lequel nous ferons nos simulations numériques.

3.9. La perméabilité des charbons dans la littérature

La perméabilité est l'un des paramètres les plus importants pour l'injection de CO_2 dans le charbon, que ce soit pour un stockage simple ou pour améliorer la récupération du méthane des veines de charbon. La caractérisation en laboratoire de la perméabilité du charbon fournit des informations utiles pour le comportement de perméabilité *in situ* des veines de charbon lorsque les gaz tels que le CO_2 sont injectés.

Dans ce paragraphe, nous faisons un point sur l'ordre de grandeur de la perméabilité des charbons dans la littérature. Nous donnons pour cela dans le Tableau 2 (celui de Shugang et al. 2011 modifié) quelques perméabilités. Elles sont accompagnées des gaz correspondants, des contraintes/températures et des déformations de gonflement. Ce tableau illustre ainsi certaines

conclusions du paragraphe 3.8.3 (dépendance de la perméabilité au type de charbon (rang du charbon), au gaz, à la pression du réservoir, adsorption préférentielle du CO_2 ...). Dans ce tableau, Bitu correspond à bituminous, Subbi à sub-bituminous, Anth à anthracite et Semianth correspond à semi-anthracite.

Tableau 2. Perméabilités des charbons dans la littérature

Rank	Gas	Stress or temperature	Gas pressure [MPa]	Permeability [m^2]	Swelling (%)	Authors
Bitu	N_2, CH_4	2-7 MPa		10^{-18} - 10^{-13}	-	<i>Somerton et al. 1975</i>
Bitu	N_2	8 MPa	2.8	10^{-17} - 10^{-13}	-	<i>Durucan and Edwards 1986</i>
Bitu	CH_4	10 MPa	6.9	10^{-18}	0.4	<i>Harpalani and Schraufnagel 1990</i>
Bitu, Subbi	CH_4, CO_2	7 MPa	5.3	10^{-17} - 10^{-13}	2 (CO_2) 0.5 (CH_4)	<i>Robertson and Christiansen 2005</i>
-	CH_4, CO_2	8-26 MPa	4-23	10^{-20} - 10^{-17}	0.15-0.6	<i>Mazumder and Wolf 2008</i>
Bitu	Ar, CO_2	7-20 MPa	4-10	10^{-18} - 10^{-15}	-	<i>Siriwardane et al. 2009</i>
Bitu	N_2, CO_2	6-18 MPa	1-8	10^{-18} - 10^{-17}	-	<i>Wang et al. 2010b</i>
Bitu	CH_4, CO_2	20 MPa	13	10^{-16} - 10^{-15}	2.4 (CO_2) 1.6 (CH_4)	<i>Pan et al. 2010</i>
Anth	CH_4, CO_2	20 MPa	7	10^{-21} - 10^{-20}	-	<i>Han et al., 2010</i>
Bitu	CH_4, CO_2	30°C	5	-	-	<i>Clarkson and Bustin 1999</i>
Bitu	CH_4, CO_2	22-45°C	5-18	-	-	<i>Busch et al. 2003</i>
Bitu	CH_4, CO_2	17°C	2.8	-	-	<i>Mastalerz et al. 2004</i>
Bitu	CH_4, CO_2	24-45°C	7-10	-	-	<i>Harpalani et al. 2006</i>
Bitu	CH_4, CO_2	40-60°C	20	-	-	<i>Bae and Bhatia 2006</i>
Bitu	CH_4, CO_2	45-60°C	19	-	4 (CO_2) 2 (CH_4)	<i>Ottiger et al. 2008</i>
Bitu	CH_4, CO_2	75°C	1.8	-	0.6	<i>Kelemen and Kwiatak 2009</i>
Bi, Semianth	CO_2	45°C	10	-	-	<i>Siemons and Busch 2007</i>
Semianth	CH_4, CO_2	45-65°C	4.1	-	1.2	<i>Battistutta et al. 2010</i>
Bi, Subbi, Anth	CH_4, CO_2	35-55°C	25	-	-	<i>Li et al. 2010</i>
Bitu	CO_2	25-55°C	15	-	1.7-1.9	<i>Day et al. 2008</i>
Bitu	CH_4, CO_2	40°C	8	-	0.94-1.81 (dry) 1.20-1.41 (wet)	<i>van Bergen et al. 2009</i>
Bitu	N_2, CO_2	40°C 12MPa	11	10^{-18} - 10^{-15}	0.25-0.8	<i>Kiyama et al. 2011</i>
Bitu	CH_4, CO_2	25°C 7MPa	2	10^{-15}	0.18-0.36	<i>Wang et al. 2010a</i>
Bitu	CH_4, CO_2	25°C	4	-	1.5-11	<i>Czerw 2011</i>
Bitu	CH_4, CO_2	25°C	4	-	0.5	<i>Majewska et al. 2010</i>

Le - dans le tableau pour dire que la valeur du paramètre correspondant n'a pas été mesurée.

Dans leurs études sur trois échantillons d'anthracite, *Shugang al. (2011)* ont constaté que la perméabilité du charbon contenant de multiples petites fractures intégrées, du charbon contenant une seule fracture longitudinale et du charbon contenant une seule fracture latérale sont respectivement de l'ordre de 10^{-19} m^2 , 10^{-16} m^2 et 10^{-18} m^2 . Ceci montre que la géométrie de la fracture peut changer la grandeur de la perméabilité de plusieurs ordres de grandeur.

D'autres perméabilités sont utilisées dans la littérature sans toutefois donner des précisions sur les caractéristiques du charbon. On a par exemple celle utilisée par *Palmer and Mansoori (1998)* 500 md (md = millidarcy) sensiblement égale à 5.10^{-13} m^2 , celle utilisée par *Wu et al. (2010a)* correspondant à la perméabilité matricielle (10^{-18} m^2), celle utilisée par *Connell et al. (2010b)* 1.5 md sensiblement égale à $1.5 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2$, etc.

Suivant donc le type de charbon et le type de gaz, les perméabilités des charbons varient donc entre 10^{-21} m^2 (voir moins) et 10^{-13} m^2 .

Cependant, lors de l'injection de gaz dans un gisement de charbon, l'augmentation de la pression interstitielle conduira à une diminution des contraintes effectives et à une ouverture des pores (donc augmentation de la porosité/perméabilité), alors que l'adsorption du gaz entraînera un gonflement de la matrice et une diminution de la porosité/perméabilité.

3.10. Point sur les paramètres de Langmuir

Dans ce paragraphe, une idée de l'ordre de grandeur des paramètres de Langmuir est donnée. En se référant aux paragraphes 3.6 (sous paragraphe 3.6.1.3) et 3.8 (sous paragraphe 3.8.1), il existe plusieurs types de paramètres de Langmuir selon le type de formulations. En effet, on a une formulation classique, qui relie le taux de recouvrement à la pression de gaz (Eq. (3-4)), une formulation sous forme de volume adsorbé (Eq. (3-23) par exemple) et une formulation sous forme de déformation volumique de la roche (exemple de l'Eq. (3-26)). Nous nous intéressons à la dernière formulation dans notre modèle, donc aux paramètres ε_L et β_L ($1/P_L$). Ces paramètres dépendent cependant du type de charbon compte tenu des caractéristiques différentes de ceux-ci (voir paragraphes 3.2. et 3.3.). L'exemple des valeurs déterminées par *Harpalani and Mitra (2010)* sur deux charbons différents : un du Bassin Illinois (aux USA) et l'autre de Bassin de San Juan (en Amérique du Nord), ainsi que celles utilisées par *Robertson and Christiansen (2007)*, viennent confirmer ces affirmations. Les valeurs utilisées par Robertson and Christiansen ont été utilisées aussi par *Wang et al. (2009)*. Le Tableau 3 donne quelques valeurs de ces paramètres.

Tableau 3. Paramètres de Langmuir des charbons dans la littérature.

Auteurs	Gaz	Type charbon	ε_L (%)	β_L (MPa ⁻¹)
<i>Connell et al. 2010b</i>	CO_2	-	1,5	0,0862
	CH_4	-	1,0	0,1124
<i>Harpalani and Mitra 2010</i>	CO_2	Basin Illinois	2,838	0,4902
		Basin San Juan	1,650	0,4902
	CH_4	Basin Illinois	1,005	0,2487
		Basin San Juan	1,075	0,2410
<i>Palmer and Mansoori 1998</i>	CO_2	-	1,28	0,2321
<i>Robertson and Christiansen 2007</i>	CO_2	Subbituminous	3,527	0,2612
		High-volatile bituminous	1,559	0,2612
	CH_4	Subbituminous	0,931	0,1637
		High-volatile bituminous	0,765	0,1637
<i>Wu et al. 2010a</i>	CO_2	-	2,3	0,164
<i>Wu et al. 2011</i>	CO_2	-	2,37	0,7246

On remarquera que pour les valeurs utilisées par *Robertson and Christiansen (2007)* la valeur du paramètre β_L est la même pour les deux types de charbons. Deux charbons différents peuvent alors avoir une même pression limite de Langmuir (P_L) mais avec différentes valeurs de déformation volumique ε_L . Les valeurs des paramètres de Langmuir dépendent aussi du gaz. Il est cependant connu que généralement les valeurs de ε_L sont plus grandes (parfois deux fois plus grandes) pour le CO_2 que pour le méthane CH_4 . Cette différence est due à la sorption préférentielle du CO_2 sur le charbon par rapport au CH_4 (*Shugang et al. 2011*). Donc les déformations de sorption seront plus grandes pour le CO_2 que pour le CH_4 . *Harpalani and Mitra (2010)* ont montré à cet effet que le rapport de déformation CO_2/CH_4 se situe entre 2 et 3,5.

Certaines valeurs du Tableau 3 sont utilisées dans la suite de ce manuscrit.

3.11. Conclusion

Dans ce chapitre consacré aux modélisations du stockage géologique du CO_2 dans les charbons, plusieurs informations peuvent être tirées.

Les charbons sont des roches réservoirs composées d'une porosité dite 'primaire' formée par les micropores et d'une porosité dite 'secondaire' formée par les fractures, ce qui leur offre le nom de roches à double porosité. Les charbons sont souvent classés par leur rang dont les trois principales classifications depuis le rang inférieur jusqu'au rang supérieur sont la lignite, le charbon bitumineux et l'anthracite.

Compte tenu de leur structure, le transport de gaz dans les veines de charbons est gouverné par deux mécanismes : la diffusion à travers la matrice du charbon, gouvernée par la loi de Fick, et l'écoulement laminaire à travers le système des fractures, gouverné par la loi de Darcy. Ce transport dépend cependant de la perméabilité de la veine et aussi de la perméabilité intrinsèque de la matrice du charbon. Il dépend aussi donc du rang du charbon, du contenu macéral, de l'humidité, de la température et de la pression.

Un phénomène particulier, propre aux charbons, se produit lors de l'injection/récupération de gaz : le phénomène de sorption connu comme étant le principal mécanisme de production ou de séquestration de gaz dans les charbons. Ce mécanisme est décrit par certains modèles théoriques appelés isothermes de sorption et dont certains sont décrits dans ce chapitre.

En se basant sur les résultats de terrain et expérimentaux de laboratoire, plusieurs modèles de perméabilité ont été développés pour les veines de charbon. Ceux-ci couplent les différents phénomènes impliqués dans l'évolution de la perméabilité au cours de l'injection/récupération de gaz dans les charbons. Ces modèles de perméabilité de charbon intègrent donc à la fois le couplage Hydro-Mécanique et les phénomènes de sorption. Ils sont principalement basés sur la théorie de l'élasticité linéaire et utilisent la théorie de Langmuir pour la prise en compte du phénomène de sorption. Dans la plupart de ces modèles, l'équation (3-20) est utilisée pour décrire la relation entre les variations de la perméabilité et celles de la porosité des charbons. Il ressort de ces modèles que la perméabilité du charbon varie avec les variations de contraintes effectives : elle diminue avec l'augmentation des contraintes effectives (qui compriment la matrice du charbon). Ces variations de la perméabilité sont fortement contrôlées par la pression du réservoir, la déformation de sorption associée : la perméabilité des gaz diminue avec l'augmentation de la pression interstitielle en raison du gonflement (dû à une adsorption de gaz) du charbon, et augmente avec la diminution de la pression des pores due au retrait (dû à une désorption de gaz) de la matrice.

L'injection de gaz dans un gisement de charbon implique donc d'une part une diminution des contraintes effectives (donc augmentation de la porosité/perméabilité) due à l'augmentation de la pression interstitielle, et d'autre part un gonflement de la matrice (donc diminution de la porosité/perméabilité) due à l'adsorption. Les modèles de perméabilité des réservoirs de gaz conventionnels ne prenant pas en compte l'impact du gonflement/retrait de la matrice sur la perméabilité ne sont donc pas applicables aux réservoirs de charbons car cela peut jouer un rôle important dans le comportement de la perméabilité. Ainsi, dans le but de décrire correctement le transport des fluides, les modèles de perméabilité du charbon prennent en compte les effets des contraintes ainsi que le gonflement/retrait du charbon liés au processus de sorption.

Il ressort aussi de cette étude que la perméabilité des charbons est très variable. Elles varient entre 10^{-21} m² et 10^{-13} m². Les valeurs des paramètres de Langmuir dépendent du type de charbon et de gaz (celles du CO₂ sont généralement deux (2) fois plus grandes que celles du méthane CH₄). La capacité de sorption dépend aussi donc du type de charbon et de gaz. Cependant, quelque soit le gaz, la capacité de sorption est réduite par la présence d'eau dans le milieu poreux.

3.12. Références bibliographiques

Arri, L. E., Yee, D., Morgan, W.D. and Jeansonne, M.W., 1992. “*Modelling Coalbed Methane Production with Binary Gas Sorption.*” Casper, WY, SPE Paper No 24363. Proceedings of the Rocky Mountain Regional Meeting of the Society of Petroleum Engineers. PP 459–472.

Bae, J.-S., Bhatia, S.K., 2006. “*High-pressure adsorption of methane and carbon dioxide on coal*”. Energy Fuels 20, 2599–2607.

Bai, M., Elsworth, D., 2000. “*Coupled processes in subsurface deformation*”. ASCE Press, Flow and Transport. 336 pp.

Bastian J. Graupner, Dedong Li, Sebastian Bauer, 2011. “*The coupled simulator ECLIPSE-OpenGeoSys for the simulation of CO₂ storage in saline formations*”. Geohydromodelling group, Institute of geosciences, University of Kiel, Kudewing-Meyn-Straße 10, 24118 Kiel, Germany. Energy Procedia 4, 3794-3800.

Battistutta, E., van Hemert, P., Lutynski, M., Bruining, H., Wolf, K.-H., 2010. “*Swelling and sorption experiments on methane, nitrogen and carbon dioxide on dry Selar Cornish coal*”. Int. J. Coal Geology 84, 39–48.

Blaisonneau A., André L., 2009. “*Influence du comportement mécanique de la roche hôte lors de l'injection de CO₂ supercritique*”. Projet ANR GéoCarbone-Injectivité. Rapport final BRGM, 64 p.

Boedecker C. and Landwirtschaft J., 1859. Volume 7, p. 48.

Bragg, W.L. and Williams, E.G., 1934. “*The effect of thermal agitation on atomic arrangement in alloys*”. Proceeding of the royal Society of London. A. Volume 145. Pages 699-730. DOI: 10.1098/rspa.1934.0132.

Brunauer S., Emmett P.H., Teller E., 1938. “*Adsorption of gases in multimolecular layers*”. Journal of American Chemistry Society, Volume 60, Pages 309-319. DOI: 10.1021/ja01269a023.

- Busch, A., Gensterblum, Y., Krooss, B.M., 2003.** “Methane and CO₂ sorption and desorption measurements on dry Argonne premium coals: pure components and mixtures”. *Int. J. Coal Geology* 55, 205–224.
- Busch, A., Gensterblum, Y., Krooss, B.M., 2007.** “High-pressure sorption of nitrogen, carbon dioxide, and their mixtures on argonne premium coals”. *Energy Fuels* 21, 1640–1645.
- Charrière, D., 2009.** “Caractérisation de l'adsorption du CO₂ sur du charbon — Application à la séquestration géologique de CO₂ en terrains houillers”. Thèse de l'Université de Toulouse.
- Charrière, D., Behra, P., 2010.** “Water sorption on coals”. *Journal of Colloid and Interface Science* 344, 460–467.
- Clarkson, C.R., Bustin, R.M., 1999.** “The effect of pore structure and gas pressure upon the transport properties of coal: a laboratory and modeling study. 1. Isotherms and pore volume distributions”. *Fuel* 78, 1333–1344.
- Close, J.C., 1993.** “Natural fractures in coal. In: Law, B.E., Rice, D.D. (Eds.), *Hydrocarbons From Coal. : AAPG Studies in Geology*”. American Association of Petroleum Geologists, Tulsa, Oklahoma. 38: 119–132.
- Connell, L.D., 2009.** “Coupled flow and geomechanical processes during gas production from coal seams”. *Int. J. Coal Geology* 79 (1–2), 18–28.
- Connell, L.D., Detournay, C., 2009.** “Coupled flow and geomechanical processes during enhanced coal seam methane recovery through CO₂ sequestration”. *Int. J. Coal Geology* 77 (1–2), 222–233.
- Connell, L.D., Pan, Z., Lu, M. and Heryanto, D., 2010a.** “Coal Permeability and Its Behaviour with Gas Desorption, Pressure and Stress”. Presented at SPE Asia Pacific Oil & Gas Conference and Exhibition, Brisbane, Australia. Paper Number SPE-133915.
- Connell, L. D., Meng L., and Z. Pan, 2010b.** “An Analytical Coal Permeability Model for Tri-axial Strain and Stress Conditions”. *Int. J. Coal Geology* 84 (2) (November 1): 103–114. doi:10.1016/j.coal.2010.08.011.
- Cui, X., and R. M. Bustin. 2005.** “Volumetric Strain Associated with Methane Desorption and Its Impact on Coalbed Gas Production from Deep Coal Seams”. *AAPG Bull* 2005; 89:1181-202.
- Czerw, K., 2011.** “Methane and carbon dioxide sorption/desorption on bituminous coal—Experiments on cubicoid sample cut from the primal coal lump”. *Int. J. Coal Geology* 85, 72–77.
- Day, S., Fry, R., Sakurovs, R., 2008.** “Swelling of Australian coals in supercritical CO₂”. *Int. J. Coal Geology* 74, 41–52.
- DeDoer, J.H., 1953.** “The Dynamical Character of Adsorption”. Oxford University Press, Oxford.
- Défossez P.D.C., 2008.** “Caractérisation de charbons en vue de leur utilisation dans le cadre du stockage du CO₂”. Rapport n° 1 du projet CHARCO. Rapport BRGM/RP-56017-FR.
- Donohue M.D., Aranovich G.L., 1998.** “Classification of Gibbs adsorption isotherms”. *Advances in Colloid and Interface Science*, Volumes 76-77, Pages 137-152. DOI: 10.1016/S0001-8686(98)00044-X.

- Durucan, S., Edwards, J.S., 1986.** “*The effects of stress and fracturing on permeability of coal*”. Mining Sci Technol 3, 205–216.
- Elsworth, D., Bai, M., 1992.** “*Flow-deformation response of dual porosity media*”. J. Geotechnical Eng 118, 107–124.
- Flores, R.M., 1998.** “*Coalbed methane: from hazard to resource*”. Int. J. Coal Geology 35, 3–26.
- Fowler R.H., Guggenheim E.A., 1965.** “*Statistical thermodynamics. Theory of the properties do matter in equilibrium*”. Cambridge press, Cambridge. Pages 358-361.
- Freundlich H., 1926.** “*Colloid and Capillary Chemistry*”. Methuen, London.
- Fulton, P. F., Parente, C.A., Rogers, B.A., Shah, N., Reznik, A.A., 1980.** Society of Petroleum Engineers journal: 65.
- Gan, H., Nandi S.P., and Walker P.L. Jr. 1972.** “*Nature of the Porosity in American Coals*”. Fuel 51 (4) (October): 272–277. doi:10.1016/0016-2361(72)90003-8.
- Garnier CH., 2009.** “*Expérimentation et modélisation de l'échange de gaz dans les CHARbons en vue d'un stockage du CO₂*”.
- Gilman, A., and R. Beckie. 2000.** “*Flow of Coalbed Methane to a Gallery*”. In: Transport Porous Media 41: pp. 1–16.
- Gray, I. 1987.** “*Reservoir Engineering in Coal Seams: Part 1 – the Physical Process of Gas Storage and Movement in Coal Seams*”. In: Paper SPE 12514, SPE Reservoir Engineering (February 1987): pp. 28–34.
- Gruszkiewicz, M.S., Naney, M.T., Blencoe, J.G., Cole, D.R., Pashin, J.C., Carroll, R.E., 2009.** “*Adsorption kinetics of CO₂, CH₄, and their equimolar mixture on coal from the Black Warrior Basin, West-Central Alabama*”. Int. J. Coal Geology 77, 23–33.
- Gu, F., Chalaturnyk, R.J., 2005.** “*Analysis of coalbed methane production by reservoir and geomechanical coupling simulation*”. Journal of Canadian Petroleum Technology 44 (10), 33–42.
- Gu, F., Chalaturnyk, R.J., 2006.** “*Numerical simulation of stress and strain due to gas sorption/desorption and their effects on in situ permeability of coalbeds*”. Journal of Petroleum Science and Engineering 45 (10), 52–62.
- Gu, F., Chalaturnyk, R.J., 2010.** “*Permeability and porosity models considering anisotropy and discontinuity of coalbeds and application in coupled simulation*”. Journal of Petroleum Science and Engineering 74 (3–4), 113–131.
- Gunter, W.D., Mavor, M.J., Robinson, J.R., 2004.** “*CO₂ storage and enhanced methane production; field testing at Fenn-Big Valley, Alberta, Canada, with application*”. In: Rubin, E.S., Keith, W.D., Gilboy, C.F. (Eds.), Proceedings of 7th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies, 1. IEA Greenhouse Gas Programme, Cheltenham, UK.
- Hall, P.J., Brown S.D., and Calo J.M., 2000.** “*The Pore Structure of the Argonne Coals as Interpreted from Contrast Matching Small Angle Neutron Scattering*”. Fuel 79 (11) (September): 1327–1332. doi:10.1016/S0016-2361(99)00270-7.
- Han, F., Busch, A., van Wageningen, N., Yang, J., Liu, Z., Krooss, B.M., 2010.** “*Experimental study of gas and water transport processes in the inter-cleat (matrix) system of coal: Anthracite from Qinshui Basin, China*”. Int. J. Coal Geology 81, 128–138.

- Harpalani S. and Mitra A., 2010.** “Impact of CO₂ Injection on Flow Behavior of Coalbed Methane Reservoirs”. *Transp Porous Med* 82, 141-156. DOI 10.1007/s11242-009-9475-1.
- Harpalani, S., Chen, G., 1997.** “Influence of gas production induced volumetric strain on permeability of coal”. *Geotechnical Geological Eng* 15, 303–325.
- Harpalani, S., Prusty, B.K., Dutta, P., 2006.** “Methane/CO₂ sorption modeling for coalbed methane production and CO₂ sequestration”. *Energy Fuels* 20, 1591–1599.
- Harpalani, S., Schraufnagel, R.A., 1990.** “Shrinkage of coal matrix with release of gas and its impact on permeability of coal”. *Fuel* 69, 551–556.
- Harpalani, S., Zhao, X., 1989.** “An investigation of the effect of gas desorption on gas permeability”. *Proceedings of the Coalbed Methane Symposium, University of Alabama, Tuscaloosa, Alabama*, pp. 57–64.
- Harpalani, S., and Chen G., 1995.** “Estimation of Changes in Fracture Porosity of Coal with Gas Emission”. *Fuel* 74 (10): 1491–1498. doi:10.1016/0016-2361(95)00106-F.
- Hill, T.L.** *Journal of Chemical Physics*. Volume 14, 1964. p. 1441.
- Hol, S., Peach, C.J., Spiers, C.J., 2011.** “Applied stress reduces the CO₂ sorption capacity of coal”. *Int J. Coal Geology* 85, 128–142.
- Huy, P.Q., Sasaki, K., Sugai, Y., Ichikawa, S., 2010.** “Carbon dioxide gas permeability of coal core samples and estimation of fracture aperture width”. *Int J. Coal Geology* 83, 1–10.
- Izadi, G., Wang, S., Elsworth, D., Liu, J., Wu, Y., Pone, D., 2011.** “Permeability evolution of fluid-infiltrated coal containing discrete fractures”. *Int. J. Coal Geology* 85, 202–211.
- Jackson, G., 2006.** “CO₂ enhanced methane and reduced water production in high permeability, under-saturated coal seams — a modeling study”. In: Gale, J., Rokke, N., Zweigel, P., Swenson, H. (Eds.), *Proceedings of Eighth International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies*. Elsevier Ltd, Oxford (CD-ROM).
- Jakubov T.S., Mainwaring D.E., 2002.** “Modified Dubinin–Radushkevich/Dubinin–Astakhov Adsorption Equations”. *Journal of Colloid and Interface Science*. Volume 252, Issue 2, Pages 263-268. DOI: 10.1006/jcis.2002.8498.
- Jaroniec M. and Marczewski A.W., 1984.** “Physical adsorption of gases on energetically heterogeneous solids I. Generalized Langmuir equation and its energy distribution”. *Monatshefte für Chemie / Chemical Monthly*. Volume 115, Issues 8-9, Pages 997-1012. DOI: 10.1007/BF00798768.
- Kelemen, S.R., Kwiatek, L.M., 2009.** “Physical properties of selected block Argonne Premium bituminous coal related to CO₂, CH₄, and N₂ adsorption”. *Int J. Coal Geology* 77, 2–9.
- King, G. R., Ertekin, T., Schwerer, F.C., 1986.** “Numerical Simulation of Transient Behavior of Coal - Seam Degasification Wells”. *Society of Petroleum Engineers Formation Evaluation (SPEFE)*: 165-183.
- Kiyama, T., Nishimoto, S., Fujioka, M., Xue, Z., Ishijima, Y., Pan, Z., Connell, L.D., 2011.** “Coal swelling strain and permeability change with injecting liquid/supercritical CO₂ and N₂ at stress-constrained conditions”. *Int. J. Coal Geology* 85, 56–64.
- Kolesar, J.E., Ertekin, T. and Obut, S.T., 1990.** “The Unsteady-State Nature of Sorption and Diffusion phenomena in the Micopore Structure of Coal: Part 1- Theory and Mathematical formulation”. *Society of Petroleum Engineers Formation Evaluation*: 81–88.

- Langmuir I., 1918.** “*The adsorption of gases on plane surfaces of glass, mica and platinum*”. Journal of American Chemistry Society, Volume 40, Pages 1361-1403. DOI: 10.1021/ja02242a004.
- Larsen JW, Flowers RA, Hall PJ, 1997.** “*Structural rearrangement of strained coals*”. Energy Fuels 11, 998–1002.
- Laubach, S.E., Marrett, R.A., Olson, J.E., Scott, A.R., 1998.** “*Characteristics and origins of coal cleat, a review*”. Int. J. Coal Geology 35 (1–4), 175–207.
- Levine, J.R., 1996.** “*Model study of the influence of matrix shrinkage on absolute permeability of coal bed reservoirs*”. Geological Society, London, Special Publications 109 (1), 197–212.
- Li, D., Liu, Q., Weniger, P., Gensterblum, Y., Busch, A., Krooss, B.M., 2010.** “*High-pressure sorption isotherms and sorption kinetics of CH₄ and CO₂ on coals*”. Fuel 89, 569–580.
- Liu, H.-H., Rutqvist, J., 2010.** “*A new coal-permeability model, internal swelling stress and fracture–matrix interaction*”. Transport in Porous Media 82 (1), 157–171.
- Liu, J., Chen, Z., Elsworth, D., Miao, X., Mao, X., 2010.** “*Linking gas-sorption induced changes in coal permeability to directional strains through a modulus reduction ratio*”. Int. J. Coal Geology 83 (1), 21–30.
- Liu, J., Chen, Z., Elsworth, D., Qu, H., Chen, D., 2011a.** “*Interactions of multiple processes during CBM extraction: a critical review*”. Int. J. Coal Geology 87, 175–189.
- Liu, J., Wang, J., Chen, Z., Wang, S., Elsworth, D., Jiang, Y., 2011b.** “*Impact of transition from local swelling to macro swelling on the evolution of coal permeability*”. Int. J. Coal Geology. doi:10.1016/j.coal.2011.07.008.
- Ma, Q., Harpalani, S., Liu, S., 2011.** “*A simplified permeability model for coalbed methane reservoirs based on matchstick strain and constant volume theory*”. Int. J. Coal Geology 85 (1), 43–48.
- Majewska, Z., Majewski, S., Zietek, J., 2010.** “*Swelling of coal induced by cyclic sorption/desorption of gas: Experimental observations indicating changes in coal structure due to sorption of CO₂ and CH₄*”. Int. J. Coal Geology 83, 475–483.
- Marczewski A.W. and Jaroniec M., 1983.** “*A new isotherm equation for single-solute adsorption from dilute solutions on energetically heterogeneous solids*”. Monatshefte für Chemie., Volume 114, Pages 711-715. DOI: 10.1007/BF01134184.
- Mastalerz, M., Gluskoter, H., Rupp, J., 2004.** “*Carbon dioxide and methane sorption in high volatile bituminous coals from Indiana, USA*”. Int. J. Coal Geology 60, 43–55.
- Mazumder, S., Wolf, K.H., 2008.** “*Differential swelling and permeability change of coal in response to CO₂ injection for ECBM*”. Int. J. Coal Geology 74, 123–138.
- McKee, C.R., Bumb, A.C., Koenig, R.A., 1988.** “*Stress-dependent permeability and porosity of coal and other geologic formations*”. SPE Formation Evaluation 3 (1), 81–91.
- Ottiger, S., Pini, R., Storti, G., Mazzotti, M., 2008.** “*Competitive adsorption equilibria of CO₂ and CH₄ on a dry coal*”. Adsorption 14, 539–556.
- Palmer, I., and J. Mansoori. 1996.** “*How Permeability Depends on Stress and Pore Pressure in Coalbeds: a New Model*”. Annual Technical Conference and Exhibition. Denver, Colorado. SPE 36737.

- Palmer, I., Mavor, M., Gunter, B., 2007.** “Permeability changes in coal seams during production and injection”. Paper 0713 presented at the International Coalbed Methane Symposium, Tuscaloosa, Alabama, USA, 5–9 May
- Palmer, I., and J. Mansoori. 1998.** “How Permeability Depends on Stress and Pore Pressure in Coalbeds: A New Model.” In: Paper SPE 52607, SPE Reservoir Evaluation & Engineering (December): 539–544.
- Pan, Z., Connell, L.D., 2011.** “Modelling of anisotropic coal swelling and its impact on permeability behaviour for primary and enhanced coalbed methane recovery”. Int. J. Coal Geology 85, 257–267.
- Pan, Z., Connell, L.D., Camilleri, M., 2010.** “Laboratory characterisation of coal reservoir permeability for primary and enhanced coalbed methane recovery”. Int. J. Coal Geology 82, 252–261.
- Pan, Z., and L. D. Connell. 2012.** “Modelling Permeability for Coal Reservoirs: A Review of Analytical Models and Testing Data.” Int. J. Coal Geology 92 (0) (March 1): 1–44. doi:10.1016/j.coal.2011.12.009.
- Pekot, L.J., and S. R. Reeves. 2003.** “Modeling the Effects of Matrix Shrinkage and Differential Swelling on Coalbeds Methane Recovery and Carbon Sequestration.” In: Paper 0328, International Coalbed Methane Symposium, University of Alabama, Tuscaloosa, Alabama, USA.
- Reeves, S., Tallefert, A., Pekot, L., Clarkson, C., 2003.** “The Allison Unit CO₂ — ECBM pilot: a reservoir MODELING study”. Topical Report, U.S. Department of Energy, DE-FC26-ONT40924.
- Reeves, S.R., Davis, D.A., Oudinot, A.Y., 2004.** “A technical and economic sensitivity study of enhanced coalbed methane recovery and carbon sequestration in coal”. Topical Report, U.S. Department of Energy, DE-FC26-ONT40924.
- Reiss, L.H., 1980.** “The Reservoir Engineering Aspects of Fractured Formations”. Gulf Publishing Co., Houston.
- Reznik, A.A., Singh, P.K. and Foley, W.L., 1984.** “An analysis of the effect of CO₂ injection on the recovery of in-situ methane from bituminous coal: an experimental simulation”. Society of Petroleum Engineers Journal: 521–528.
- Richard D. W., M. Gediminas, M. M. Vivak, and H. Stephen, 2012.** “Variations in the Mechanical Behavior of Illinois Bituminous Coals”. Fuel 98: 213–217.
- Robertson, E. P., Christiansen, R. L., 2006.** “A permeability model for coal and other fractured sorptive-elastic media”. Paper SPE 104380. In: Proceedings of the 2006 SPE Eastern Regional Meeting, Ohio, 11–13 October.
- Robertson, E.P., Christiansen, R.L., 2005.** “Measurement of sorption induced strain”. Paper 0532, Proceedings of the 2005 International Coalbed Methane Symposium. Tuscaloosa, AL.
- Robertson, E.P., Christiansen, R.L., 2007.** “Modeling laboratory permeability in coal using sorption-induced-strain data”. SPE Reservoir Evaluation & Engineering 10, 260–269.
- Ross H. E., P. Hagin, and M. D. Zoback, 2009.** “CO₂ Storage and Enhanced Coalbed Methane Recovery: Reservoir Characterization and Fluid Flow Simulations of the Big George Coal, Powder River Basin, Wyoming, USA”. International Journal of Greenhouse Gas Control 3 (6): 773–786. doi:10.1016/j.ijggc.2009.06.002.

- Rouquerol J., Avnir D., Fairbridge C.W., Everett D.H., Haynes J.M., Pernicone N., Ramsay J.D.F., Sing K.S.W., Unger K.K., 1994.** “*Recommendations for the characterization of porous solids*”. IUPAC Technical Report. Pure Applied Chemistry. Volume 66, Issue 8, p. 1739-1758. DOI: 10.1351/pac199466081739
- Russell P. , Y. Cinar , R. Moreby, 2011.** “*Simulation of an enhanced gas recovery field trial for coal mine gas management*”. Int. J. Coal Geology 85, 247–256.
- Sawyer, W.K., G.W. Paul, and R. A. Schraufnagel, 1990.** “*Development and Application of a 3D Coalbed Simulator*”. In: Paper CIM/SPE 90-119, Presented at the 1990 International Technical Meeting Hosted Jointly by the Petroleum Society of CIM and the Society of Petroleum Engineers, Calgary, Alberta, Canada.
- Seidle, J.P., and L. G. Huitt, 1995.** “*Experimental Measurements of Coal Matrix Shrinkage Due to Gas Desorption and Implications for Cleat Permeability Increases*”. In: Paper SPE 30010, Proceedings of the 1995 International Meeting on Petroleum Engineering, Beijing, China.
- Shi, J.Q., and Durucan, S., 2004a.** “*Drawdown induced changes in permeability of coalbeds: a new interpretation of the reservoir response to primary recovery*”. Transport in Porous Media 56 (1), 1–16.
- Shi, J.Q., and Durucan, S., 2004b.** “*A numerical simulation study of the Allison Unit CO₂-ECBM pilot: the effect of matrix shrinkage and swelling on ECBM production and CO₂ injectivity*”. Proceedings of the 7th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies (GHGT 7), September 5–9, Vancouver, Canada, V.1, pp. 431–442.
- Shi, J.Q., and Durucan, S., 2005.** “*A model for changes in coalbed permeability during primary and enhanced methane recovery*”. SPE Reservoir Evaluation and Engineering 8 (4), 291–299.
- Shugang W., D. Elsworth, J. Liu, 2011.** “*Permeability evolution in fractured coal: The roles of fracture geometry and water-content*”. Int. J. Coal Geology 85, 13 – 25.
- Siemons, N., Busch, A., 2007.** “*Measurement and interpretation of supercritical CO₂ sorption on various coals*”. Int. J. Coal Geology 69, 229–242.
- Sing K.S.W., Everett D.H., Haul R.A.W., Moscou L., Pierotti R.A., Rouquerol J., Siemieniewska T., 1985.** “*Reporting physisorption data for gas/solid systems with special reference to the determination of surface area and porosity*”. IUPAC recommendations. Pure Applied Chemistry. Volume 57, Issue 4, p. 603-619. DOI: 10.1351/pac198557040603
- Sips R., 1948.** “*On the Structure of a Catalyst Surface*”. J. Chem. Phys. Volume 16, Issue 5, Pages 490-495. DOI: 10.1063/1.1746922.
- Sips R., 1950.** “*On the Structure of a Catalyst Surface II*”. J. Chem. Phys. Volume 18, Issue 8, 1024-1026. DOI: 10.1063/1.1747848.
- Siriwardane, H., Haljasmaa, I., McLendon, R., Irdi, G., Soong, Y., Bromhal, G., 2009.** “*Influence of carbon dioxide on coal permeability determined by pressure transient methods*”. Int. J. Coal Geology 77, 109–118.
- Somerton, W.H., Soylemezoglu, I.M., Dudley, R.C., 1975.** “*Effect of stress on permeability of coal*”. Int J. Rock Mechanics Mining Sci Geomechanics Abstracts 12, 129–145.
- Tóth J., 1962.** Acta Chimica (Academiae Scientiarum) Hungaricae. Volume 32, p.31.

- Tóth J., 1997.** “Some Consequences of the Application of Incorrect Gas/ Solide Adsorption Isotherm Equations”. Journal of Colloid and Interface Science, Volume 185, Issue 1, Pages 228-235. DOI: [10.1006/jcis.1996.4562](https://doi.org/10.1006/jcis.1996.4562).
- Van Bergen, F., Pagnier, H. and Krzystolik, P., 2006.** “Field experiment of enhanced coalbed methane- CO_2 in the upper Silesian basin of Poland”. Environmental Geosciences 13 (3), 201–224.
- van Bergen, F., Pagnier, H., Krzystolik, P., 2006.** “Field experiment of CO_2 ECBM in the Upper Silesian Basin of Poland”. Proceedings of the 8th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies. IEA Greenhouse Gas Programme, Cheltenham, UK.
- van Bergen, F., Spiers, C., Floor, G., Bots, P., 2009.** “Strain development in unconfined coals exposed to CO_2 , CH_4 and Ar: Effect of moisture”. Int. J. Coal Geology 77, 43–53.
- Van Golf-Racht, T.D., 1982.** “Fundamentals of fractured reservoir engineering”. Developments in Petroleum Science, no. 12. Elsevier Scientific Publishing Company, Netherlands.
- Volmer M., 1925.** “Zeitschrift für Physikalische Chemie”. Volume 115, p. 253.
- Wang, G.X., Massarotto, P., Rudolph, V., 2009.** “An improved permeability model of coal for coalbed methane recovery and CO_2 geosequestration”. Int. J. Coal Geology 77 (1–2), 127–136.
- Wang, G.X., Wei, X.R., Wang, K., Massarotto, P., Rudolph, V., 2010a.** “Sorption-induced swelling/shrinkage and permeability of coal under stressed adsorption/desorption conditions”. Int. J. Coal Geology 83, 46–54.
- Wang, S., Elsworth, D., Liu, J., 2010b.** “Evolution of permeability in coal to sorbing gases. A Preliminary Study”. 44th U.S. Rock Mechanics Symposium. July 2010, Salt Lake City, Utah, 209.
- Wei, Z., Zhang, D., 2010.** “Coupled fluid-flow and geomechanics for triple-porosity/dual permeability modeling of coalbed methane recovery”. International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences 47 (8), 1242–1253.
- White CM, Smith DH, Jones KL, Goodman AL, Jikich SA, LaCount RB, et al., 2005.** “Sequestration of carbon dioxide in coal with enhanced coalbed methane recovery – a review”. Energy Fuels 19, 659–724.
- Wu, Y., Liu, J., Elsworth, D., Chen, Z., Connell, L., Pan, Z., 2010a.** “Dual poroelastic response of a coal seam to CO_2 injection”. Int. J. Greenhouse Gas Control 4, 668–678.
- Wu, Y., Liu, J., Elsworth, D., Miao, X., Mao, X., 2010b.** “Development of anisotropic permeability during coalbed methane production”. Journal of Natural Gas Science and Engineering 2 (4), 197–210.
- Wu, Y., Liu, J., Elsworth, D., Siriwardane, H., and Miao, X., 2011.** “Evolution of Coal Permeability: Contribution of Heterogeneous Swelling Processes”. Int. J. Coal Geology 88 (2–3) (November 1): 152–162. doi:10.1016/j.coal.2011.09.002
- Yun Y, Suuberg EM, 1992.** “Physical transition in pittsburgh no. 8 coal as observed by differential scanning calorimetry and solvent swelling”. Energy Fuels 6, 328–30.
- Zhang, H.B., Liu, J., Elsworth, D., 2008.** “How sorption-induced matrix deformation affects gas flow in coal seams: a new FE model”. International J. Rock Mechanics Mining Sci 45 (8), 1226–1236.

Zhao, Y., Hu, Y., Zhao, B., Yang, D., 2004. “*Nonlinear coupled mathematical model for solid deformation and gas seepage in fractured media*”. *Transport in Porous Media* 55 (2), 119–136.

Zhu, W.C., Liu, J., Sheng, J.C., Elsworth, D., 2007. “*Analysis of coupled gas flow and deformation process with desorption and Klinkenberg effects in coal seams*”. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences* 44 (7), 971–980.

Calculs THMC de l'injection de CO_2 dans le charbon avec l'isotherme de Langmuir

4.1. Introduction

L'injection du CO_2 dans les roches réservoirs comme mentionné dans l'introduction générale (chapitre 1), peut perturber les propriétés pétro-physiques (porosité et perméabilité) et mécaniques (déformabilité) de la roche. Dans le cas du charbon (on le rappelle encore ici), les modifications des propriétés pétro-physiques sont dues à deux mécanismes principaux qui agissent de façon opposée :

- Le gonflement de la matrice rocheuse dû au processus d'adsorption réduit de façon substantielle la porosité et la perméabilité du charbon. Il est connu sous le nom de mécanisme physico-chimique de gonflement matriciel et de réduction de porosité associé.
- Le retrait de la matrice dû aux variations des contraintes effectives augmente les espacements entre les blocs matriciels et donc augmente la porosité/perméabilité du charbon. Il est connu sous le nom de mécanisme de couplage Hydro-Mécanique d'augmentation de la porosité.

Ce chapitre est consacré au développement du modèle de porosité avec la prise en compte du phénomène d'adsorption, principal mécanisme de production ou de séquestration de gaz dans les charbons (ex. *Wu et al. 2010a*). Ce modèle de porosité nous permettra donc de décrire le comportement du charbon suite à une injection de gaz, dans notre cas le CO_2 . Cependant, avec le Code_Aster, il ne nous est pas possible de modéliser l'adsorption/désorption physique de CO_2 , mais uniquement l'effet de la variation de la pression de gaz sur le comportement du charbon. Le chapitre est subdivisé en trois parties. La première est consacrée aux résultats théoriques et numériques 1D sous Code_Aster du modèle. La deuxième partie est consacrée aux résultats des calculs numériques 2D qui ont constitué un article accepté pour publication dans la revue *International Journal for numerical and Analytical Methods in Geomechanics*. La troisième partie quand à elle, donne d'autres calculs numériques 2D avec le Code_Aster, calculs complémentaires à ceux de la deuxième partie.

Pour des raisons de simplicité dans notre modèle, nous avons considéré que les fractures de charbon ont une distribution homogène sans précision de taille et que le charbon est un milieu isotrope et homogénéisé du point de vue mécanique et hydraulique. Ce qui nous permet d'utiliser la perméabilité intrinsèque du milieu.

Les résultats que nous donnons concernent particulièrement les effets des paramètres hydromécaniques de la roche (coefficient de Biot, module de Young), des paramètres de

Langmuir, de la perméabilité intrinsèque et l'influence de la pression initiale de l'eau interstitielle sur la réponse du charbon suite à l'injection de CO_2 . Le cas d'un charbon sec (pression initiale de l'eau interstitielle nulle) est aussi présenté (voir paragraphe 4.3). Deux cas seront considérés dans le cas d'un charbon saturé en eau : un prenant en compte la dissolution du CO_2 dans l'eau interstitielle et l'autre ne prenant pas en compte cette dissolution (paragraphe 4.3 & 4.4). Cela nous permettra de montrer l'importance de la dissolution du CO_2 dans l'eau interstitielle au cours de son injection dans le charbon. La plupart des calculs seront faits en conditions de contraintes isotropes et pour un seul puits d'injection. Cependant, le paragraphe 4.4 de ce chapitre donnera un cas de calcul en contraintes déviatoriques avec un seul puits d'injection et un cas de calcul (en contraintes isotropes) avec deux puits d'injection.

4.2. Première partie : les calculs théoriques et numériques 1D sous Code_Aster

Dans cette partie, nous donnons en bref la loi de comportement de porosité prenant en compte le phénomène de sorption, décrit par l'isotherme de Langmuir (cette loi est bien décrite dans le paragraphe 4.3). Nous faisons ensuite deux types de calculs : un théorique et l'autre numérique 1D sous Code_Aster. Pour chaque type de calcul, nous utiliserons deux modèles de porosité : un sans la prise en compte de l'isotherme de sorption et l'autre avec la prise en compte de l'isotherme de sorption. Cela nous permettra de voir l'importance du phénomène de sorption dans les charbons. Pour les deux types de calcul, nous donnerons des résultats montrant l'influence des paramètres Hydro-Mécaniques de la roche (coefficient de Biot b , module de Young drainé E_0). Dans le cas avec l'isotherme de sorption, nous ajouterons une étude de sensibilité sur les paramètres de l'isotherme d'adsorption de Langmuir.

4.2.1. Modèle de porosité eulérienne

Nous établissons notre modèle de porosité à partir de l'équation (2-25) du paragraphe 2.2.5, rappelée ci-dessous (Eq. (4-1)). Elle donne la loi de comportement d'un milieu poreux non saturé sous forme incrémentale : (*Code_Aster Document R7.01.11 ; Coussy 1995 ; Giraud 2001*) :

$$d\varphi = (b - \varphi) \left(d\varepsilon_v - 3\alpha_0 dT + \frac{(dP_g - S_l dP_c)}{K_s} \right) \quad (4-1)$$

Nous rappelons que dans l'équation (4-1), φ est la porosité eulérienne, b le coefficient de Biot, ε_v la déformation mécanique due aux variations des contraintes, α_0 le coefficient de dilatation thermique drainé, λ_0 et G sont les coefficients de Lamé, K_s le module d'incompressibilité des grains solide qui est lié au module d'incompressibilité drainé de la roche et au coefficient de Biot ($b = 1 - K_0/K_s$). P_g est la pression de gaz, S_l la saturation en liquide (dans notre cas l'eau), P_c la pression capillaire et T la température du milieu.

Cette loi de comportement comme mentionné dans le paragraphe 2.2.5, ne tient pas compte du phénomène de sorption de gaz. En se basant sur elle, nous établissons une autre loi prenant en compte le phénomène de sorption, par le biais de l'isotherme d'adsorption de Langmuir.

Il existe trois types de formulation pour l'isotherme d'adsorption de Langmuir : une formulation classique, qui relie le taux de recouvrement θ à la pression de gaz P_g faisant intervenir le paramètre de Langmuir α_L ($\theta = \alpha_L P_g / (1 + \alpha_L P_g)$), une formulation sous forme de volume adsorbé V_{ads} faisant intervenir le volume limite de Langmuir V_L et la pression

limite de Langmuir $P_L \left(V_{ads} = V_L P_g / (P_L + P_g) \right)$, et une formulation sous forme de déformation volumique de la roche ε_V faisant intervenir la déformation limite de Langmuir ε_L et aussi la pression limite de Langmuir $P_L \left(\varepsilon_V = \varepsilon_L P_g / (P_L + P_g) \right)$. Dans notre cas, étant donné que nous travaillerons en déformation, nous utilisons la dernière formulation. En notant β_L l'inverse de la pression limite de Langmuir P_L , cette dernière formulation devient :

$$\varepsilon_V = \frac{\varepsilon_L \beta_L P}{1 + \beta_L P} \quad (4-2)$$

P_L étant en MPa, β_L sera donc en MPa^{-1} . En se basant sur l'approche de *Palmer and Mansoori* (1998), afin de prendre en compte le phénomène d'adsorption dans la loi de comportement (Eq. (4-1)), nous introduisons dans celle-ci, par une approche analogique à la variation de déformation volumique par variation d'unité de température ou de pression, le terme suivant :

$$d\varepsilon_V = - \frac{d}{dP_g} \left(\frac{\varepsilon_L \beta_L P}{1 + \beta_L P} \right) dP_g \quad (4-3)$$

La loi de comportement devient alors :

$$d\varphi = (b - \varphi) \left(d\varepsilon_V - 3\alpha_0 dT + \left(\frac{1}{K_s} - \frac{\varepsilon_L \beta_L}{(1 + \beta_L P_g)^2} \right) dP_g - \frac{S_l}{K_s} dP_c \right) \quad (4-4)$$

L'équation (4-4) est donc celle de la loi de comportement d'un milieu poreux non saturé prenant en compte le phénomène de sorption.

Dans la suite, on parlera du cas sans l'isotherme d'adsorption de Langmuir pour faire allusion à l'équation (4-1) et le cas avec l'isotherme d'adsorption de Langmuir pour faire allusion à l'équation (4-4).

4.2.2. Calculs théoriques

Dans cette partie qui ne concerne que les calculs théoriques (variations théoriques de la porosité/perméabilité à l'équilibre), nous nous plaçons dans le cas d'une injection instantanée isotherme. Ceci suppose qu'il n'y a pas de diffusion, donc pas d'échange de masse fluide (la variation de la pression interstitielle ne s'accompagne d'aucun échange de masse fluide avec l'élément voisin). Nous sommes donc en présence d'un problème non drainé. La variation de la porosité se réduit alors à :

$$d\varphi = (b - \varphi) \left(\frac{1}{K_s} - \frac{\varepsilon_L \beta_L}{(1 + \beta_L P_g)^2} \right) dP_g \quad (4-5)$$

Soit donc :

$$\varphi^+ = b - (b - \varphi^-) \exp \left(- \frac{P_g^+ - P_g^-}{K_s} - \varepsilon_L \left(\frac{1}{1 + \beta_L P_g^+} - \frac{1}{1 + \beta_L P_g^-} \right) \right) \quad (4-6)$$

Cette dernière équation donne donc l'évolution de la porosité en fonction de la pression d'injection. Une porosité initiale de 10% est utilisée pour notre charbon avec une pression de

gaz initiale de 1 bar (= 0.1 MPa). Le module d'incompressibilité drainé K_0 est de 500 MPa. Différents types de calculs sont faits pour étudier l'influence des propriétés hydromécaniques de la roche (coefficient de Biot b , module de Young drainé E_0) et les paramètres de l'isotherme d'adsorption de Langmuir dans le cas de la prise en compte du phénomène de sorption. Les variations de la perméabilité seront obtenues à partir de la relation cubique entre la porosité et la perméabilité (Cui and Bustin 2005 ; Liu et al. 1999 ; McKee et al. 1987) :

$$\frac{k}{k_0} = \left(\frac{\phi}{\phi_0} \right)^3 \quad (4-7)$$

Pour étudier l'influence du coefficient de Biot, nous utiliserons 3 valeurs de celui-ci : $b = 0,5$; $b = 0,67$ et $b = 1$. Ces valeurs signifient que les rapports de module d'incompressibilité drainé K_0 et le module d'incompressibilité de la matrice solide K_S (K_0/K_S) sont respectivement (Coussy 1995) $1/2$; $1/3$ et 0 (c'est-à-dire $K_S \rightarrow \infty$). L'influence du module de Young drainé est étudié en utilisant aussi 3 valeurs : $E_0 = 750$ MPa ; $E_0 = 1500$ MPa et $E_0 = 9750$ MPa. Ceci correspond ($K_0 = E_0/3(1-2\nu_0)$) au module d'incompressibilité drainé K_0 de 500 MPa ; 1000 MPa et de 6500 MPa respectivement, avec un coefficient de Poisson ν_0 de 0,25 (Jaeger and Cook 1979).

4.2.2.1. Cas sans Langmuir

Dans le cas sans Langmuir (c'est-à-dire pas de prise en compte du phénomène de sorption), l'équation de variation de la porosité (4-6) devient :

$$\phi^+ = b - (b - \phi^-) \exp \left(- \frac{P_g^+ - P_g^-}{K_S} \right) \quad (4-8)$$

L'équation (4-8) est une fonction linéaire de la pression de gaz par développement limité d'ordre un de la fonction exponentielle.

➤ Influence du coefficient de Biot b

Comme énoncé précédemment, nous utilisons 3 valeurs du coefficient de Biot (0,5 ; 0,67 et 1) afin de voir son influence sur l'évolution de la porosité et de la perméabilité en fonction de la pression de gaz dans ce cas théorique. La Figure 11 donne les variations de la porosité ϕ (a) et celle du rapport de perméabilité (k/k_0) (b). Les variations du rapport de perméabilité sont obtenues en utilisant l'équation (4-7). Cette figure nous montre une augmentation de porosité et de perméabilité pour les coefficients de Biot de valeur 0,5 et 0,67. Cependant l'influence du coefficient de Biot de valeur 0,5 est légèrement plus grande que celle engendré par le coefficient de Biot de valeur 0,67. Cela s'explique par le fait que l'augmentation de la valeur du module d'incompressibilité des grains solide augmente la valeur du coefficient de Biot, ce qui augmente la valeur de l'expression sous exponentielle, rendant ainsi cette dernière plus petite. Donc pour un coefficient de Biot de valeur 1, on aura K_S qui tendra vers l'infini et l'exponentielle tendra alors vers 1. La porosité (et donc le rapport de perméabilité) restera alors dans ce cas constante. C'est ce qui nous montre la Figure 11 pour la valeur de $b = 1$. Du point de vu physique, l'expression sous la fonction exponentielle (4-8) représente la déformation mécanique due à la variation de la pression de gaz. Pour une valeur de coefficient de Biot égal à 1, la matrice du charbon est aussi considérée sur le plan physique comme incompressible (indéformable), d'où une déformation nulle, et donc pas de variations de la porosité/perméabilité.

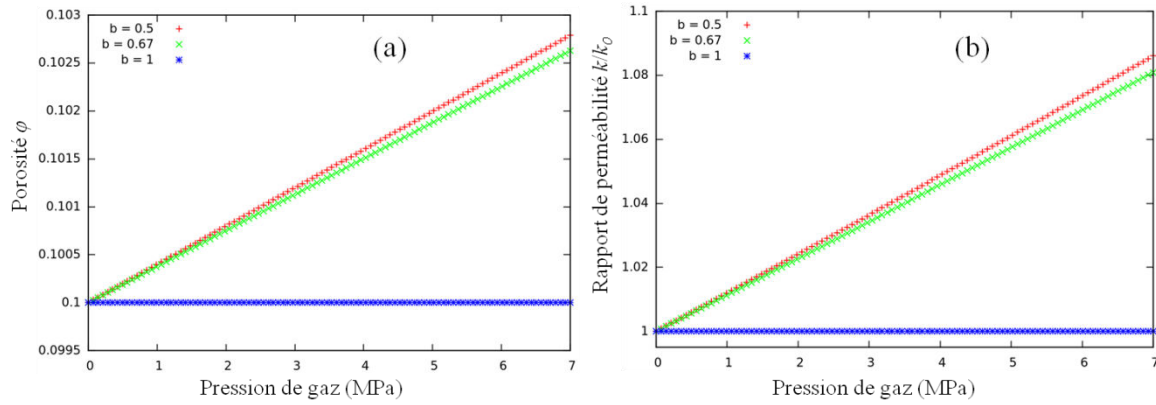


Figure 11. Influence du coefficient de Biot b : cas théorique sans Langmuir. En a) la porosité ϕ et en b) le rapport de perméabilité k/k_0 .

➤ Influence du module de Young drainé E_0

Dans ce cas théorique, pour l'étude de l'influence du module de Young drainé et donc du module de compressibilité drainé, nous fixons la valeur du coefficient de Biot égale à 0,67. Dans cette étude théorique, prendre $b = 1$ n'a aucun intérêt ; la porosité reste constante et donc ne nous permet pas de voir les effets de E_0 ou K_0 sur elle. La Figure 12 montre l'influence du module de Young sur la porosité ϕ (a) et sur le rapport de perméabilité k/k_0 (b). L'augmentation de la porosité et du rapport de perméabilité est d'autant plus grande que le module de Young diminue. L'augmentation du module de Young drainé E_0 implique une augmentation du module de compressibilité drainé K_0 . La valeur du coefficient de Biot b étant fixée, cela implique une augmentation du module de compressibilité des grains solides K_S et donc des déformations mécaniques dues à l'injection de gaz de plus en plus petites. Sur le plan physique, le module de Young étant défini comme la rigidité du matériau (de la roche), plus elle est grande, plus le matériau est rigide et donc moins déformable, ce qui explique les différentes variations observées.

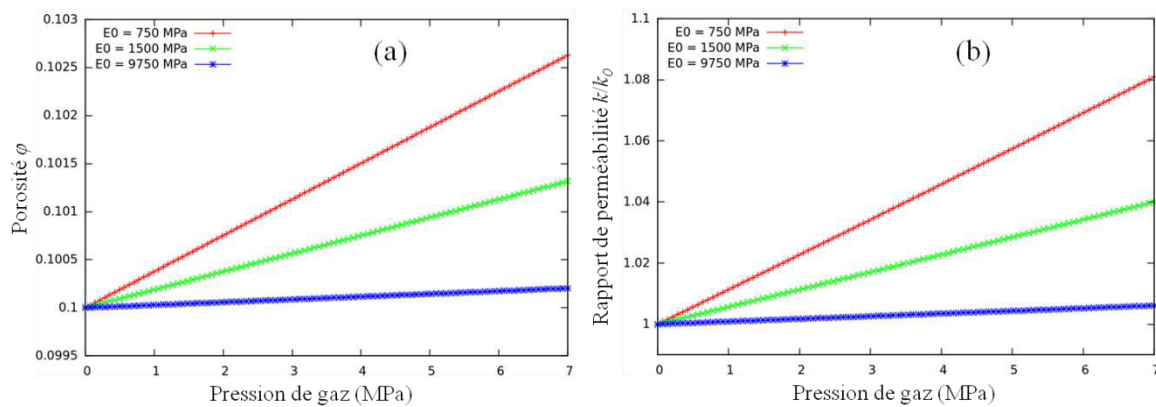


Figure 12. Influence du module de Young drainé E_0 : cas théorique sans Langmuir. En a) la porosité ϕ et en b) le rapport de perméabilité k/k_0 .

4.2.2.2. Cas avec Langmuir

Dans le cas avec Langmuir, l'évolution de la porosité est donnée par l'équation (4-6). Dans nos calculs, nous utiliserons les trois groupes de paramètres de Langmuir mentionnés dans le Tableau 3 (chapitre 3) pour le CO_2 . Ces paramètres sont listés dans le Tableau 4.

Tableau 4. Les trois différents groupes de paramètres de Langmuir utilisés dans nos calculs.

<i>Palmer and Mansoori 1998</i>	<i>Wu et al. 2010a</i>	<i>Connell et al. 2010b</i>
$\beta_L = 0,232 \text{ MPa}^{-1}$	$\beta_L = 0,164 \text{ MPa}^{-1}$	$\beta_L = 0,0862 \text{ MPa}^{-1}$
$\varepsilon_L = 0,0128$	$\varepsilon_L = 0,023$	$\varepsilon_L = 0,015$

La Figure 13 représente les variations de la déformation volumique de sorption ε_v (Eq. 4-2) en fonction de la pression de gaz et des trois groupes de paramètres de Langmuir. On voit une variation plus importante pour les paramètres de *Wu et al. (2010a)* suivi de ceux de *Palmer and Mansoori (1998)* noté P&M sur la figure. Les paramètres de *Connell et al. (2010b)* engendrent moins de variations par rapport aux autres. On peut donc dire que les valeurs élevées des paramètres de Langmuir engendrent plus le gonflement matriciel que ses valeurs faibles. Ce qui modifiera fortement la déformation totale due à la pression de gaz, et donc aura un grand impact sur le couplage Hydro-Mécanique.

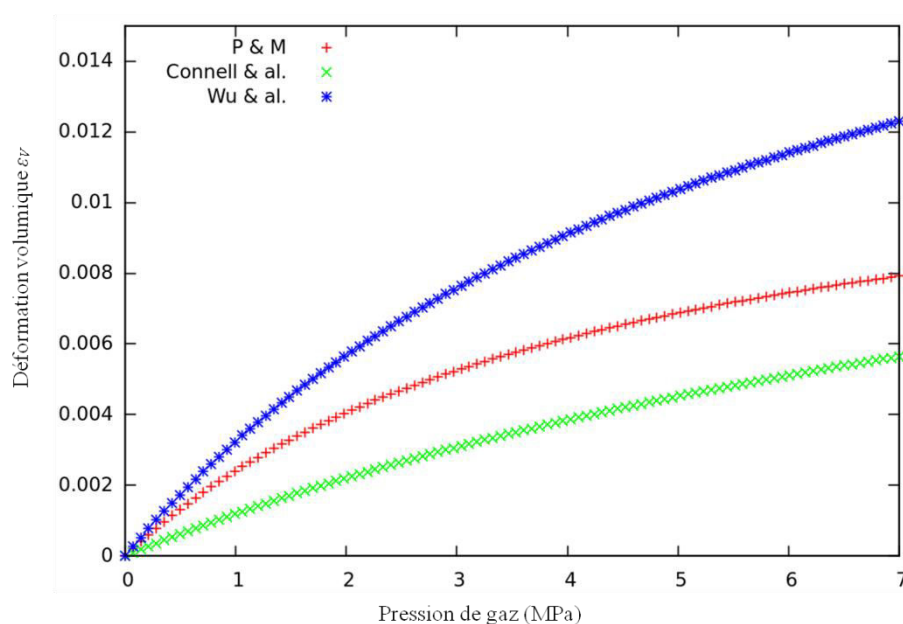


Figure 13. Déformation volumique de sorption pour les trois groupes de paramètres de Langmuir.

➤ Influence du coefficient de Biot b

Nous utilisons tout d'abord les trois groupes de paramètres donnés dans le Tableau 4 avec les trois différentes valeurs du coefficient de Biot utilisées dans le cas sans Langmuir (0,5 ; 0,67 et 1). Les Figures 14 et 15 donnent les effets du coefficient de Biot b respectivement pour la porosité ϕ et le rapport de perméabilité k/k_0 (en fonction de la pression de gaz) pour les trois groupes de paramètres : les Figure 14a et 15a pour les paramètres de *Palmer and Mansoori (1998)*, les Figures 14b 15b pour les paramètres de *Connell et al. (2010b)* et les Figures 14c et 15c pour les paramètres de *Wu et al. (2010a)*. Les Figures 14d et 15d donnent une petite comparaison entre les trois groupes de paramètres avec un coefficient de Biot égal à 1.

Ces variations nous montrent une diminution de la porosité/perméabilité avec une augmentation de la pression de gaz quelle que soit la valeur de b et du groupe de paramètres de Langmuir utilisé. De plus, cette diminution est beaucoup plus grande pour des valeurs élevées du coefficient de Biot b quel que soit le groupe de paramètres de Langmuir choisi. L'augmentation du coefficient de Biot favorise donc la diminution de la porosité/perméabilité avec l'adsorption du gaz (Figs. 14a, 15a, 14b, 15b, 14c et 15c). Ce qui n'était pas le cas pour le cas sans Langmuir. Ceci serait donc dû aux déformations engendrées par l'isotherme de Langmuir (sans Langmuir nous aurons des déformations totales négatives, mais avec Langmuir celles-ci seront positives). La comparaison (Figs. 14d et 15d) nous montre une diminution importante de la porosité/perméabilité (avec l'augmentation de la pression de gaz) pour les valeurs des paramètres de Wu *et al.* (2010a) par rapport à celles de Palmer and Mansoori (1998) et de Connell *et al.* (2010b).

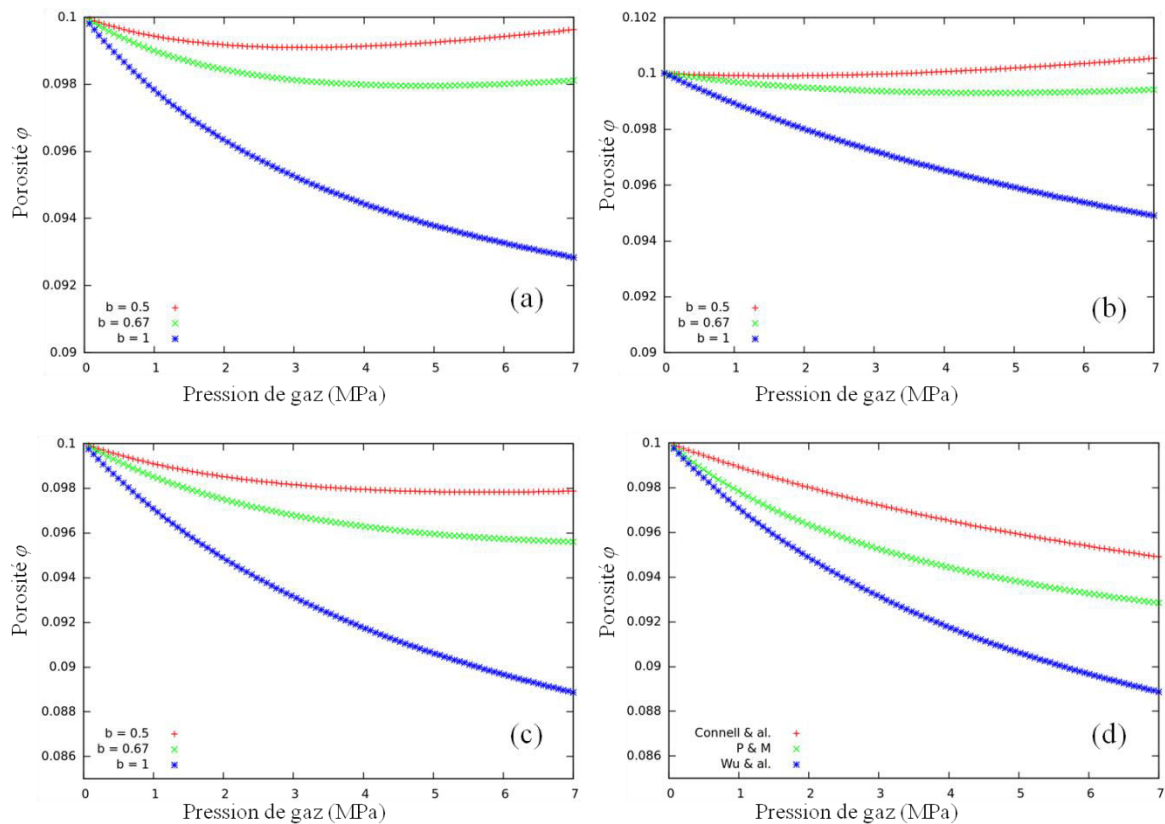


Figure 14. Influence du coefficient de Biot b sur la porosité ϕ pour les trois groupes de paramètres: en a) les paramètres de Palmer and Mansoori, en b) les paramètres de Connell et al., en c) les paramètres de Wu et al., et en d) une comparaison pour $b = 1$.

Nous faisons appel dans la suite de nos calculs à une nouvelle valeur du paramètre β_L de Langmuir ($4,4 \text{ MPa}^{-1}$) déterminée au Laboratoire de Chimie et de Méthodologies pour l'Environnement (LCME), situé à Metz. Il faut remarquer que c'est la plus grande des valeurs de β_L pour cette étude paramétrique. Pour cette valeur de β_L , la valeur de ε_L n'est pas connue. Avec cette valeur de β_L ($4,4 \text{ MPa}^{-1}$) et la valeur de ε_L de Wu et al. (0,023), la plus grande aussi dans cette étude, la Figure 16 montre l'influence du coefficient de Biot sur la porosité ϕ (a) et le rapport de perméabilité k/k_0 (b). Comparé aux Figures 14 et 15, on observe une diminution beaucoup plus importante dans la porosité/perméabilité sur la Figure 16. Pour les effets du paramètre de Langmuir ε_L , nous fixerons dans la suite $\beta_L = 4,4 \text{ MPa}^{-1}$, et pour ceux de β_L nous fixerons aussi $\varepsilon_L = 0,023$.

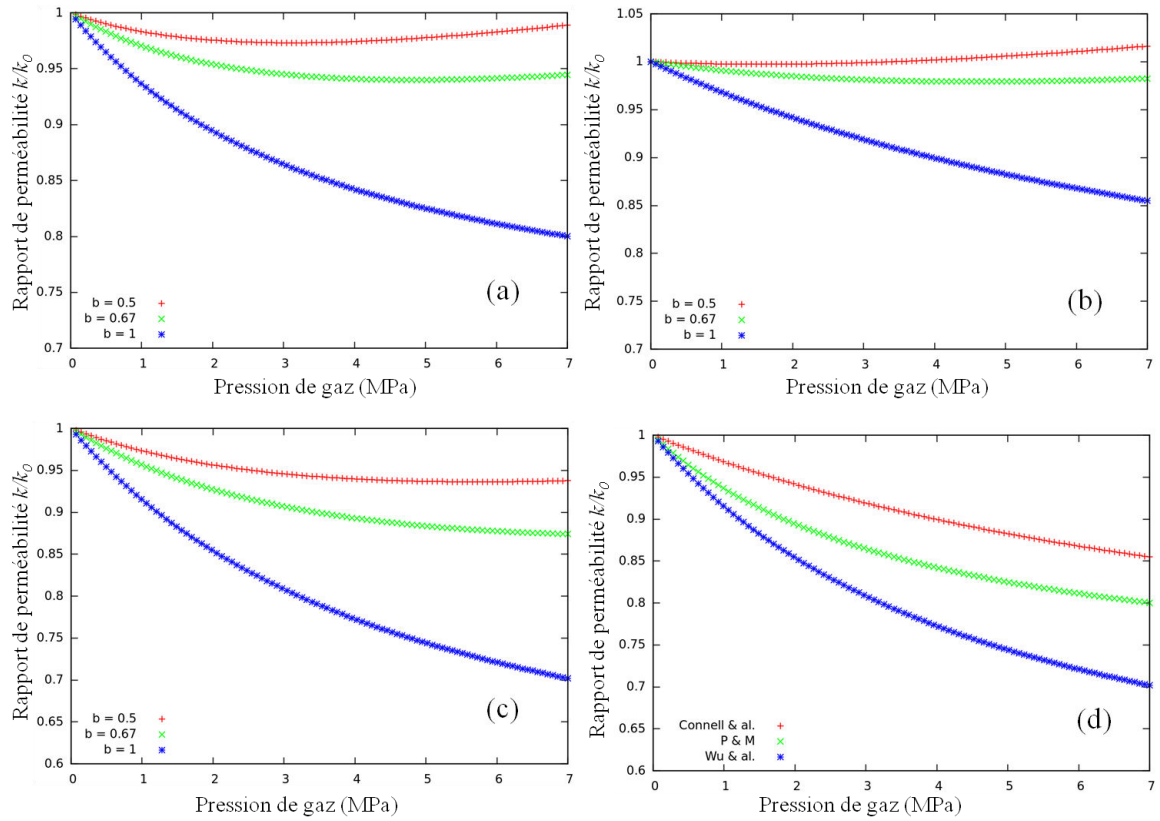


Figure 15. Influence du coefficient de Biot b sur le rapport de perméabilité k/k_0 pour les trois groupes de paramètres: en a) les paramètres de Palmer and Mansoori, en b) les paramètres de Connell et al., en c) les paramètres de Wu et al., et en d) une comparaison pour $b = 1$.

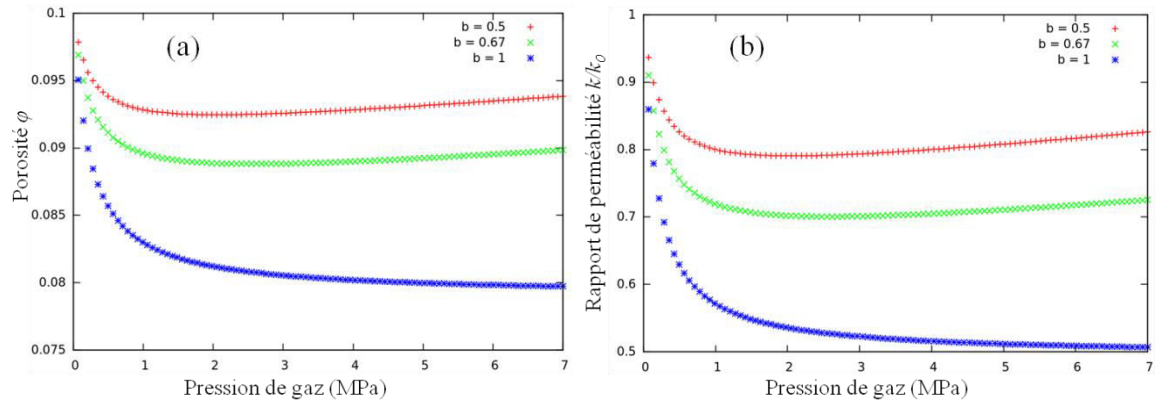


Figure 16. Influence du coefficient de Biot b : en a) sur la porosité ϕ et en b) sur le rapport de perméabilité k/k_0 , avec $\varepsilon_L = 0,023$ et $\beta_L = 4,4 \text{ MPa}^{-1}$.

➤ Influence des paramètres de Langmuir

Dans l'étude de l'influence du coefficient de Biot, nous avons utilisé trois groupes de paramètres de Langmuir. Dans ce paragraphe, nous voulons examiner l'effet exact de ces paramètres (un par un) sur les variations de la porosité/perméabilité du charbon au cours de l'injection du gaz. Nous fixons donc l'un des paramètres pour l'étude de l'autre. Deux types de calculs sont cependant effectués : un pour étudier l'influence de ε_L et l'autre pour étudier l'influence de β_L . Pour les deux types de calculs, la valeur du coefficient de Biot est prise égale à 1, ce qui permet de désactiver le couplage H-M (i.e., matrice incompressible) et donc

de n'étudier que le gonflement matriciel. Le Tableau 5 résume les valeurs des paramètres pour l'étude de l'influence de ε_L et le Tableau 6 celles pour l'étude de l'influence de β_L .

Tableau 5. Paramètres utilisés pour l'étude de l'influence du paramètre de Langmuir ε_L .

Influence de ε_L $\beta_L = 4,4 \text{ MPa}^{-1}$ (LCME) et $b = 1$	$\varepsilon_L = 0,0128$ (Palmer and Mansoori 1998)
	$\varepsilon_L = 0,023$ (Wu et al. 2010a)
	$\varepsilon_L = 0,015$ (Connell et al. 2010b)

La Figure 17 montre l'effet du paramètre ε_L sur la déformation volumique de sorption (Eq. 4-2). Plus cette valeur est grande, plus on assiste à une grande augmentation de déformations avec la pression de gaz. Sur la Figure 18 sont représentées les variations de la porosité φ (Fig. 18a) et de rapport de perméabilité k/k_0 (Fig. 18b) en fonction de la pression de gaz. On voit une diminution de la porosité de plus en plus importante avec l'augmentation de ε_L . Cette diminution de porosité/perméabilité est due à l'augmentation de la déformation de sorption.

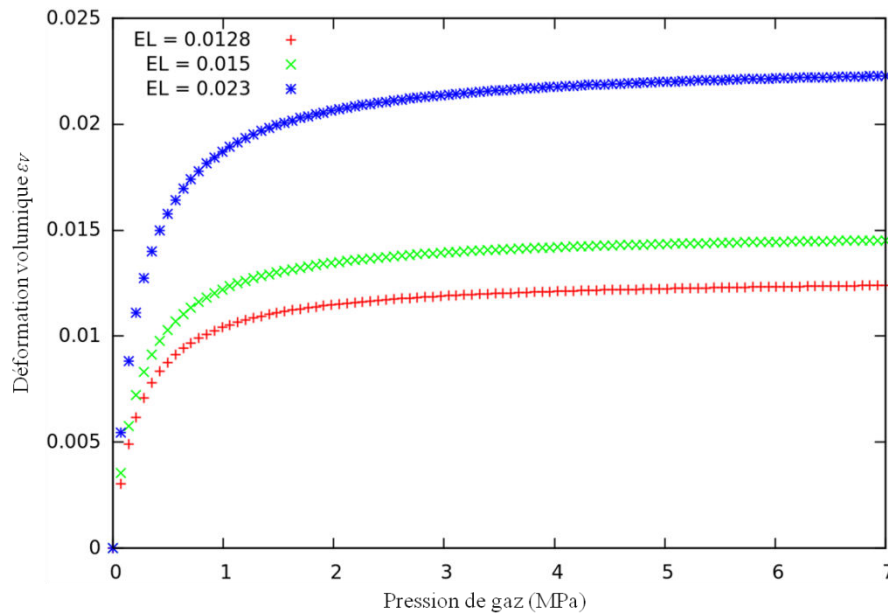


Figure 17. Influence du paramètre de Langmuir ε_L sur la déformation de gonflement.

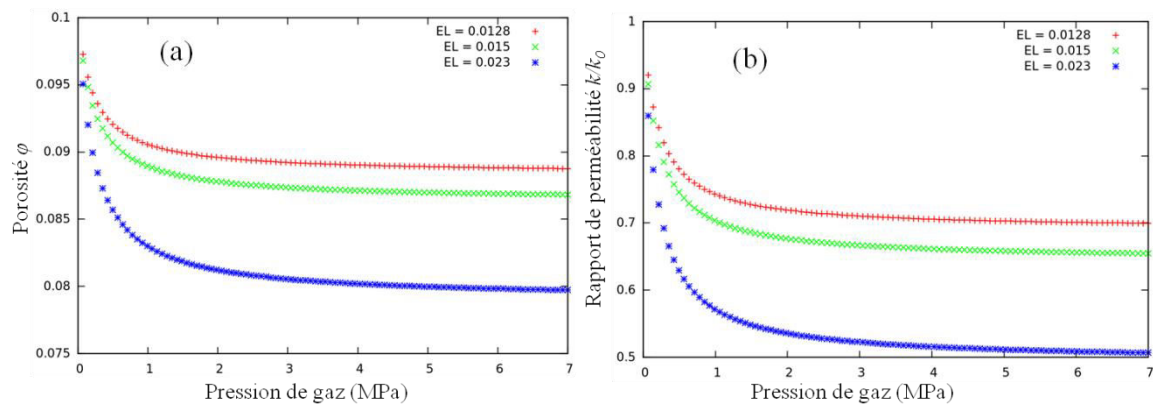


Figure 18. Influence du paramètre de Langmuir ε_L : en a) sur la porosité ϕ et en b) sur le rapport de perméabilité k/k_0 .

Tableau 6. Paramètres utilisés pour l'étude de l'influence du paramètre de Langmuir β_L .

Influence de β_L $\varepsilon_L = 0,023$ (Wu et al. 2010) et $b = 1$	$\beta_L = 0,0862 \text{ MPa}^{-1}$ (Connell et al. 2010b)
	$\beta_L = 0,164 \text{ MPa}^{-1}$ (Wu et al. 2010a)
	$\beta_L = 0,232 \text{ MPa}^{-1}$ (Palmer and Mansoori 1998)
	$\beta_L = 4,4 \text{ MPa}^{-1}$ (LCME)

La Figure 19 montre l'influence du paramètre de Langmuir β_L sur les variations de la déformation de sorption. Comme pour ε_L , plus la valeur de β_L est grande, plus elle induit une grande déformation. De même, son influence sur les variations de porosité/perméabilité est identique à celle de ε_L (Fig. 20) : la porosité/perméabilité diminue avec l'augmentation de β_L . Cela est dû à son influence sur la déformation de gonflement matriciel.

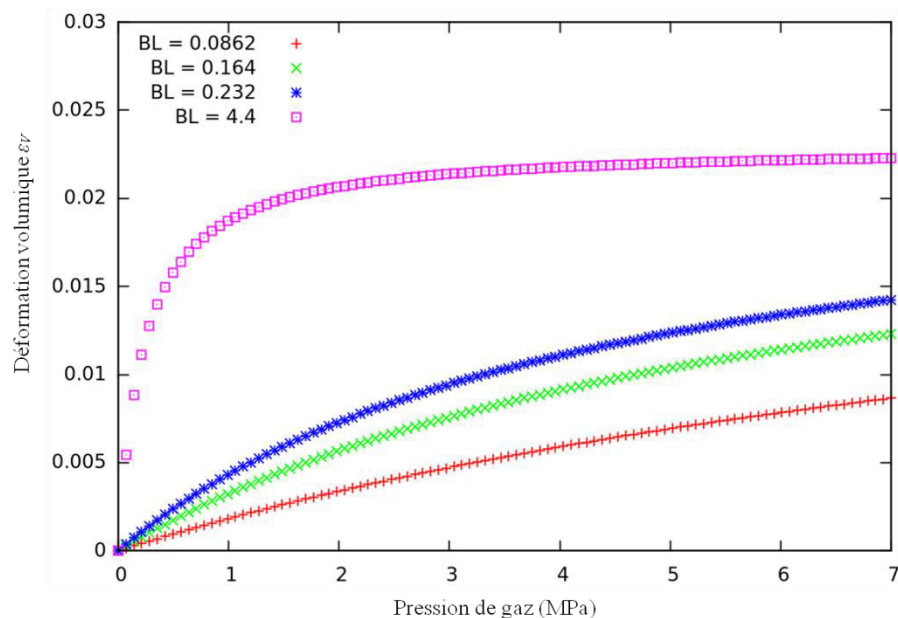


Figure 19. Effets du paramètre de Langmuir β_L sur la déformation de gonflement.

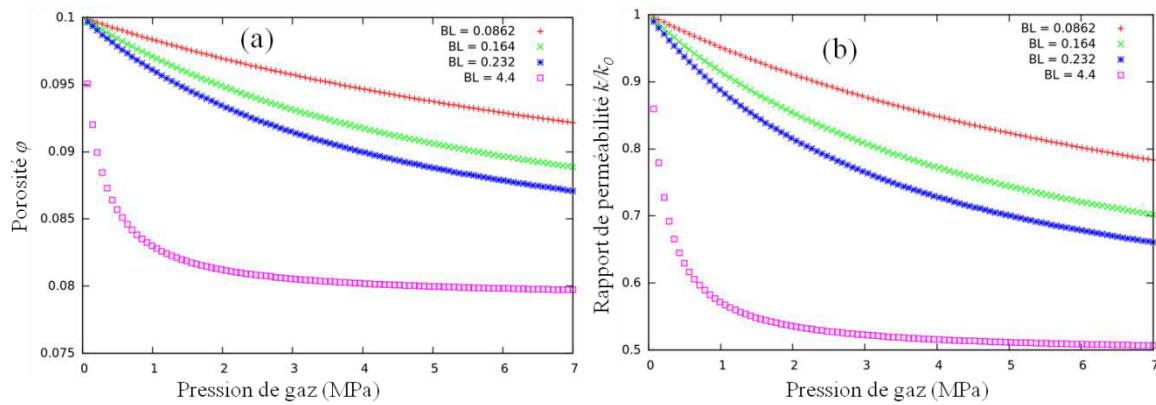


Figure 20. Influence de β_L : en a) sur la porosité ϕ et en b) sur le rapport de perméabilité k/k_0 .

Vu les variations de porosité/perméabilité des Figures 18 et 20, on peut donc conclure que l'augmentation des valeurs des paramètres de Langmuir induit une diminution de la porosité/perméabilité avec la pression de gaz.

➤ Effets du module de Young drainé

Comme dans le cas sans Langmuir, pour l'étude de l'influence du module de Young drainé E_0 (ou le module d'incompressibilité drainé K_0) nous fixons la valeur du coefficient de Biot b égale à 0,67. Le Tableau 7 résume les paramètres utilisés pour cette étude.

Tableau 7. Paramètres utilisés pour l'étude de l'influence du module de Young E_0 : cas avec Langmuir.

Paramètres de Langmuir		Coefficient de Biot	Valeurs du module de Young
ε_L	β_L	b	E_0
0,023	4,4 MPa ⁻¹	0,67	$E_0 = 750$ MPa
			$E_0 = 1500$ MPa
			$E_0 = 9750$ MPa

La Figure 21 donne les variations de la porosité ϕ (a) et du rapport de perméabilité k/k_0 (b) en fonction de la pression de gaz et des différentes valeurs du module de Young E_0 . On remarque qu'aux faibles pressions de gaz (entre 0 et 1 MPa) aucune différence n'est observée pour les 3 différentes valeurs. Mais au-delà de 1 MPa, on observe une différence nette entre celles-ci. Plus la valeur du module de Young est grande, plus on assiste à une diminution importante de la porosité/perméabilité.

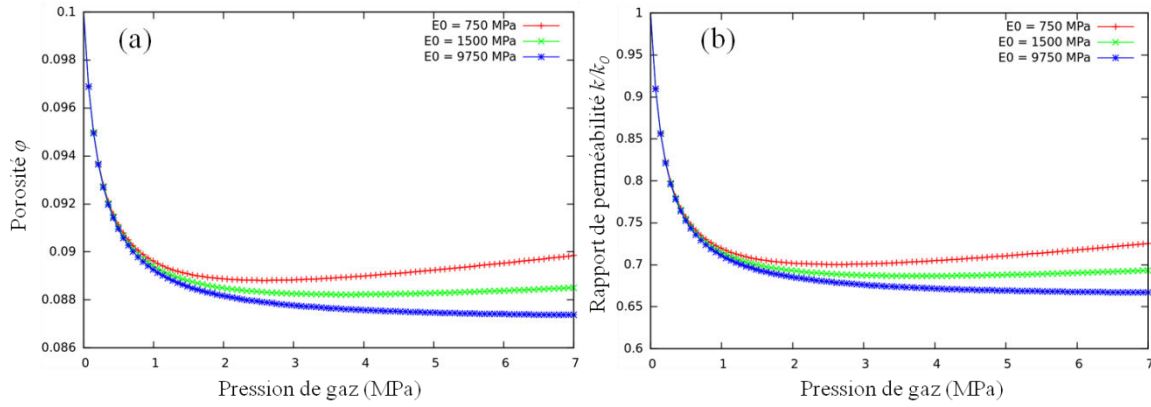


Figure 21. Influence du module de Young drainé E_0 : en a) sur la porosité ϕ et en b) sur le rapport de perméabilité k/k_0 .

En revenant à l'équation de porosité (4-6), l'expression sous la fonction exponentielle (et donnée par l'équation (4-9) ci-dessous) représente la déformation totale due à la pression de gaz (le premier terme étant la déformation mécanique et le second celle de sorption).

$$-\frac{P_g^+ - P_g^-}{K_s} - \varepsilon_L \left(\frac{1}{1 + \beta_L P_g^+} - \frac{1}{1 + \beta_L P_g^-} \right) \quad (4-9)$$

Comme on a vu dans le cas sans Langmuir, le premier terme est lié au couplage Hydro-Mécanique et dont l'augmentation de la pression augmente la porosité. Dans le cas avec Langmuir, on a un second terme de déformation dû à la sorption physico-chimique du gaz et dont l'augmentation de la pression de gaz diminue la porosité. Dans le cas avec Langmuir, on peut donc assister soit à une augmentation de la porosité/perméabilité, soit à une diminution de la porosité/perméabilité suite à une augmentation de la pression de gaz. Dans le premier cas on dira que l'Hydro-Mécanique prend le pas sur la sorption physico-chimique et dans le second cas, que la sorption prend le pas sur l'Hydro-Mécanique. Même si parmi les paramètres de Langmuir utilisés ici on observe seulement une diminution de porosité/perméabilité, il existe cependant d'autres valeurs de ces paramètres avec lesquels une augmentation pourra être observée.

En comparant les deux cas de calculs (sans Langmuir et avec Langmuir), les résultats théoriques obtenus ici montrent l'importance du phénomène de sorption. Sa prise en compte permettra donc de mieux contrôler les variations des propriétés pétro-physiques de la roche.

Les effets du module de Young dans le cas avec Langmuir sont dus en partie aux effets qu'il a dans le cas sans Langmuir. En se référant à ses effets sur la porosité/perméabilité dans le cas sans Langmuir (Fig. 12), le module de Young (avec ses petites valeurs) inhibe les effets du gonflement dans le cas avec Langmuir (augmentation des effets du couplage Hydro-Mécanique).

Dans le paragraphe qui suit, nous implémentons le modèle établi dans Code_Aster pour faire des simulations numériques 1D.

4.2.3. Calculs numériques 1D sous Code_Aster

Dans notre étude bibliographique sur la modélisation du stockage géologique de CO_2 dans le charbon (chapitre 3), nous avons eu à présenter plusieurs modèles de porosité/perméabilité

des charbons. Si de ces différents modèles et modélisations les conclusions se ressemblent selon les objectifs des modèles, les logiciels utilisés ne sont pas cependant bien décrits dans la littérature. Néanmoins, dans le cadre des activités du BRGM/RP, *Blaisonneau et André (2009)*, pour leurs études concernant l'influence du comportement mécanique de la roche hôte (réservoir carbonaté) lors de l'injection de CO_2 supercritique ont utilisé le code couplé TOUGH2/FLAC3D pour les modélisations numériques (FLAC3D (Itasca) permettant la modélisation des problèmes mécaniques et TOUGH2 V2 (LBNL), permettant la modélisation du transport multiphasique de masse et de chaleur à travers les structures géologiques poreuses et/ou fissurées). C'est le cas aussi par exemple de *Graupner et al. (2011)* qui ont proposé un simulateur couplé ECLIPSE-OpenGeoSys pour la simulation du stockage du CO_2 dans les formations salines. Dans nos études, nous utilisons le Code_Aster, un code d'éléments finis, d'analyse de calcul de structures entièrement couplé Thermo-Hydro-Mécanique (THM), développé par Electricité De France (EDF), logiciel libre et gratuit (freeware). Ce code par contre ne nous permet pas de modéliser l'adsorption/désorption physique de CO_2 dans le charbon. Donc les effets de sorption sont pris en compte uniquement par l'isotherme de Langmuir.

Dans cette partie, il s'agit de modéliser et simuler l'injection de CO_2 dans un charbon initialement saturé en eau dans une situation « quasi » 1D sous Code_Aster. Cela nous permettra de tester l'implantation du modèle dans le code de calcul numérique (Code_Aster). Nous avons donc implémenté dans le Code_Aster, sous forme de schéma d'éléments finis classique, la loi de comportement donnée par l'équation (4-4). Une petite description de l'implémentation est donnée au paragraphe 3.2 de notre article donné dans la deuxième partie de ce chapitre (description du modèle 2D). Toutes les modélisations dans ce travail sont réalisées en déformations planes.

4.2.3.1. Description du modèle 1D

Nous considérons un domaine (massif de charbon) de dimensions 200 m sur 0,5 m comme indiqué sur la Figure 22. Son maillage comporte 500 éléments quadratiques à 8 nœuds, soit un total de 2503 nœuds. Le calcul mécanique se fait par interpolation quadratique tandis que celui hydraulique se fait par interpolation linéaire.

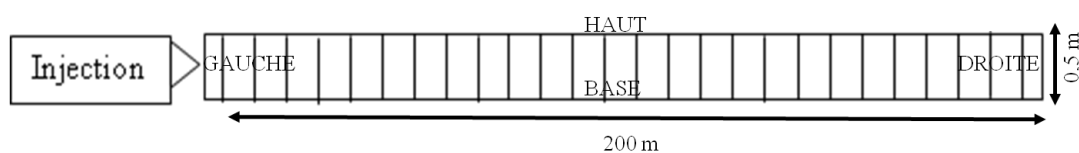


Figure 22. Maillage du modèle 1D.

➤ Conditions initiales et limites

Le milieu poreux est considéré comme étant saturé en eau avec une pression de l'eau interstitielle égale à 0,1 MPa. La pression initiale du CO_2 est considérée comme nulle avec un état de contrainte initial (isotrope) de -20 MPa. Un flux nul est considéré sur les frontières HAUT et BASE pour éviter tout écoulement de fluides. Sur la frontière HAUT, l'on maintien aussi constante les pressions (gaz et capillaire). Ce qui va permettre d'avoir la variation des pressions uniquement sur la frontière BASE (donc d'avoir un modèle 1D). Trois phases de calculs sont considérées (à l'instar des calculs 2D) : (1) imposition (durée : une seconde) de l'état initial avant creusement de la galerie au cours de laquelle les déplacements nuls sont

imposés sur tous les côtés (la limite ne peut donc pas bouger) et les pressions (pression de gaz et pression capillaire) maintenues constantes à leurs valeurs initiales, sauf sur la BASE où elles sont libres. (2) Creusement (durée : 1 jour) de la galerie au cours duquel on laisse libres les déplacements sur la GAUCHE (où s'effectue le creusement). Ces déplacements sont par contre imposés (nuls) sur les autres côtés. Les pressions sont aussi laissées libres du côté GAUCHE et sur la BASE. A la fin de celui-ci, la pression du gaz du côté GAUCHE est considérée comme égale à la pression atmosphérique. (3) Injection : on applique au 2^{ème} jour une pression de CO_2 égale à 7 MPa sur le côté GAUCHE, laissant libre la base et bloquant les pressions sur les autres côtés. Les déplacements restent bloqués sur les 3 autres côtés. La durée totale des simulations est de 100 ans (1 mois = 30 jours).

➤ Paramètres du modèle et différents calculs

Les différents paramètres du modèle sont résumés dans le Tableau 8. K_l représente le module de compressibilité du liquide (dans notre cas l'eau). Le modèle de Mualem-Van-Genuchten est utilisé pour décrire les variations de la saturation en eau, fonction de la pression capillaire, et permet de calculer au même moment les perméabilités relatives au gaz et au liquide. Pour les paramètres de Langmuir, nous utilisons les mêmes valeurs que celles des calculs théoriques (voir Tableau 4) en faisant toujours appel à la valeur du paramètre β_L (4,4 MPa⁻¹) déterminée au Laboratoire de Chimie et de Méthodologies pour l'Environnement (LCME), situé à Metz.

Tableau 8. Les différents paramètres du modèle 1D.

Eau liquide	Masse volumique ($kg.m^{-3}$)	1000
	$1/K_l$ (Pa^{-1})	5.10^{-10}
	Viscosité ($kg.m^{-1}.s^{-1}$)	10^{-3}
Gaz	Masse molaire ($kg.mol^{-1}$)	0,044
	Viscosité ($kg.m^{-1}.s^{-1}$)	$1,372.10^{-5}$
Gaz dissous	Coefficient de Henry ($Pa.mol^{-1}.m^{-3}$)	3162
Paramètres homogénéisés	Perméabilité intrinsèque k (m^2)	10^{-16}
	Porosité	0,1
	Module de Young drainé E_0 (GPa)	0,75
	Coefficient du Poisson ν_0	0,25
Paramètres de Van-Genuchten	N	1,49
	Pr (MPa)	15
	S_r	0
	S_{max}	0,999
Etat initial	Pression d'eau (Pa)	10^5
	Pression de gaz (Pa)	0

Pour ces différents paramètres, nous faisons deux types de calculs, un sans la prise en compte de l'isotherme de sorption et l'autre avec la prise en compte de l'isotherme de sorption, afin de vérifier aussi dans ce cas numérique l'importance du phénomène de sorption dans les charbons. Nous reprenons aussi les mêmes calculs que ceux du cas théorique pour l'étude de l'influence des paramètres Hydro-Mécaniques de la roche (coefficient de Biot b , module de Young drainé E_0) et ceux de l'isotherme d'adsorption de Langmuir.

4.2.3.2. Résultats des calculs 1D sous Code_Aster

➤ Résultats généraux

Dans cette partie, avec les différentes valeurs des paramètres du Tableau 8 (perméabilité intrinsèque de 10^{-16} m^2 , module de Young drainé E_0 de 750 MPa, coefficient de Poisson drainé ν_0 de 0,25, porosité initiale ϕ_0 de 0,1...), nous avons fixé le coefficient de Biot b égal à 0,67. Dans le cas avec Langmuir, les paramètres ε_L et β_L sont pris respectivement égal à 0,023 et $4,4 \text{ MPa}^{-1}$.

Nous présentons sur la Figure 23 (Fig. 23a sans l'isotherme d'adsorption de Langmuir et Fig. 23b avec l'isotherme d'adsorption de Langmuir) la progression de la pression de CO_2 depuis le puits d'injection (côté gauche) vers l'intérieur du massif pour les instants de simulation d'un (1) mois, d'un (1) an, de cinq (5) ans, de dix (10) ans et de cent (100) ans. On remarque la diffusion progressive de la pression de gaz à l'intérieur du domaine au cours du temps, que se soit dans le cas sans l'isotherme de Langmuir ou avec l'isotherme de Langmuir. Mais au cours du temps, la progression du gaz dans le cas sans Langmuir (SLGM) prend le pas sur le cas avec Langmuir (LGM). La Figure 24 donne une comparaison entre ces deux cas de calculs pour les durées de 10 et 100 ans. Cette prise de pas de la pression est due au phénomène de gonflement dans le cas avec Langmuir qui conduit à une fermeture des pores matriciels.

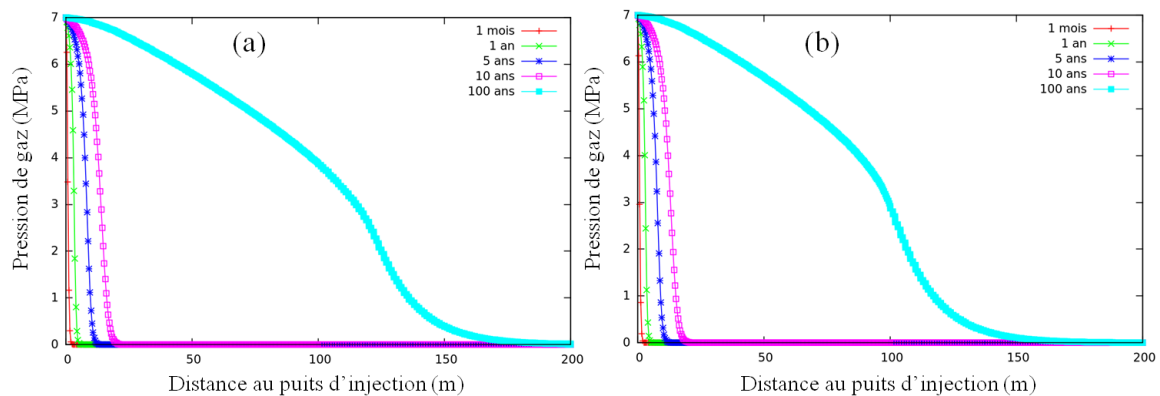


Figure 23. Propagation de la pression de CO_2 dans la roche: (a) sans l'isotherme de Langmuir, (b) avec l'isotherme de Langmuir.

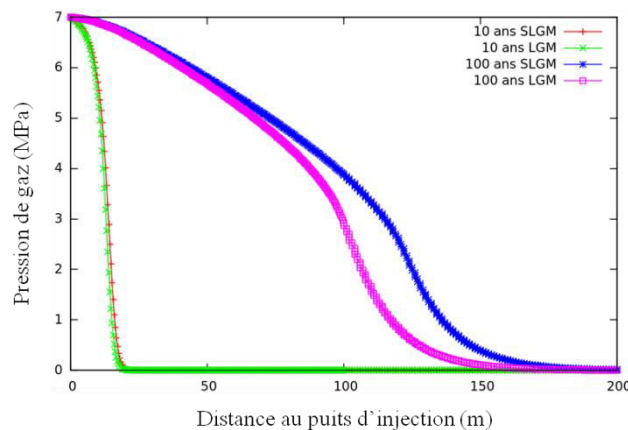


Figure 24. Comparaison de la progression de gaz entre le cas sans Langmuir (SLGM) et le cas avec Langmuir (LGM) pour les durées de simulation de 10 et 100 ans.

Les profils des variations de la porosité et celles du rapport de perméabilité sont présentés sur la Figure 25 (Figs. 25a, 25b sans l'isotherme d'adsorption de Langmuir et les Figs. 25c, 25d avec l'isotherme d'adsorption de Langmuir) pour les mêmes temps de simulation que celui de la pression de gaz. Comme pour le cas théorique, on observe une augmentation de la porosité/perméabilité dans le cas sans Langmuir (Figs. 25a, 25b) et une diminution (et augmentation pour des faibles pressions de gaz) de la porosité/perméabilité dans le cas avec Langmuir (Figs. 25c, 25d) quelle que soit la durée de simulation. On constate aussi que dans le cas sans l'isotherme d'adsorption de Langmuir, les profils de porosité/perméabilité se stabilisent (n'augmentent plus) à partir de 5 ans de simulation. Le profil pour un temps de simulation de 100 ans a même un retard sur les profils de 5 et 10 ans qui sont confondus.

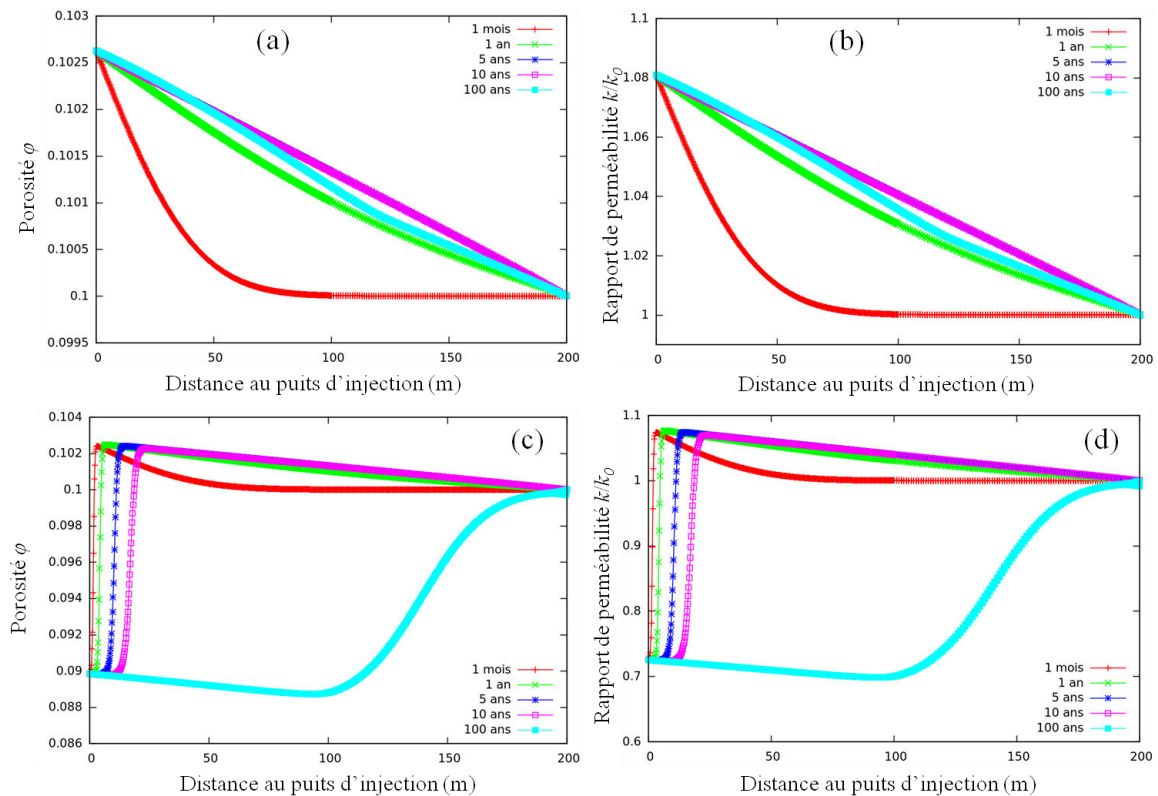


Figure 25. Variations de la porosité ϕ (a, c) et du rapport de perméabilité k/k_0 (b, d) dans la roche: (a, b) sans l'isotherme de Langmuir, (c, d) avec l'isotherme de Langmuir.

➤ Effets du coefficient de Biot b

Pour l'étude de l'influence du coefficient de Biot b , les trois valeurs 0,5, 0,67 et 1 sont utilisées pour les deux cas (sans Langmuir et avec Langmuir). Dans le cas avec Langmuir, les paramètres ε_L et β_L sont pris respectivement égal à 0,023 et 4,4 MPa⁻¹.

La Figure 26 (Figs. 26a, 26b sans Langmuir et Figs. 26c, 26d avec Langmuir) donne le profil de la pression de gaz pour les instants de simulation de 10 et 100 ans, pour les trois différentes valeurs du coefficient de Biot. Dans le cas sans Langmuir, au bout de 10 ans de simulation, les profils pour $b = 0,5$ et $b = 0,67$ sont confondus, mais ont une légère avance sur le profil de pression correspondant à $b = 1$ (Fig. 26a). Au bout de 100 ans, on remarque que les trois profils de pressions sont tous confondus (Fig. 26b). Ce qui n'est pas le cas avec l'isotherme de Langmuir : les profils de pression correspondants aux petites valeurs de b ont une légère

avance sur ceux correspondants aux grandes valeurs de b quelle que soit la durée de simulation (Figs. 26c et 26d). Cette différence serait due à l'influence qu'a le coefficient de Biot sur les variations de la porosité/perméabilité.

Sur les Figures 27 et 28 sont présentées les variations de la porosité (Figs. 27a, 27b, 28a et 28b) et du rapport de perméabilité (Figs. 27c, 27d, 28c et 28d) pour les instants de simulation de 10 et 100 ans, pour les trois différentes valeurs de b . Les mêmes observations que dans le cas théorique (voir les sous-paragraphe 4.2.21 et 4.2.2.2) sont faites : dans le cas sans Langmuir les petites valeurs de b favorisent un peu mieux l'augmentation de la porosité/perméabilité (porosité et perméabilité constantes pour $b = 1$) et dans le cas avec Langmuir les grandes valeurs de b favorisent beaucoup plus la diminution de la porosité/perméabilité. L'augmentation de la porosité/perméabilité dans le cas sans Langmuir est due au couplage hydromécanique, et les effets du coefficient de Biot b sont dus à la relation entre ce coefficient et les variations des contraintes (Eq. 2-17) et aux variations de la porosité (Eq. 2-26). La diminution de la porosité/perméabilité pour le cas avec Langmuir est due au gonflement matriciel du charbon. L'influence du coefficient de Biot dans ce dernier cas provient des équations (4-3), (4-4) et (4-9). En effet, en se référant à l'équation (4-9) de la déformation totale due à la pression de gaz et à l'équation (2-25) de la relation entre le coefficient de Biot b et le module d'incompressibilité des grains solides K_s , la déformation totale augmente avec le coefficient de Biot. Les effets du coefficient de Biot sur la propagation de la pression de gaz dans le charbon peuvent être expliqués par ses effets sur le porosité/perméabilité.

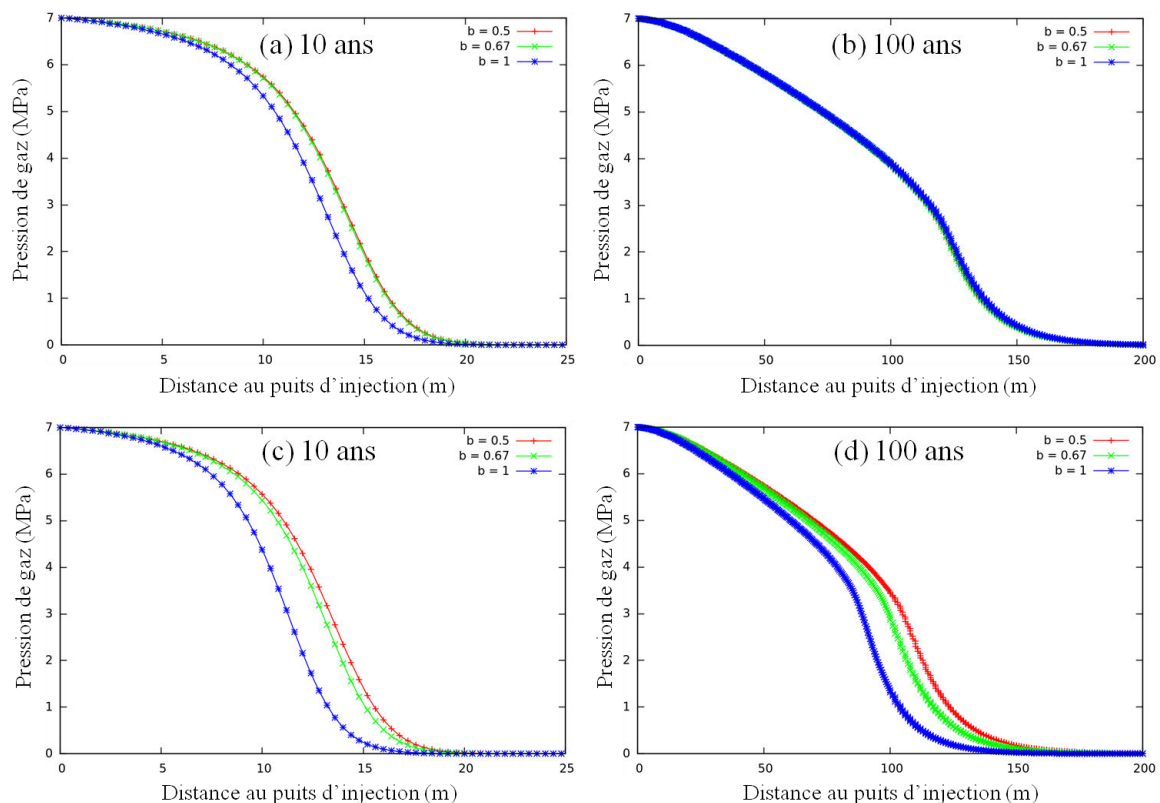


Figure 26. Effets du coefficient de Biot b sur la propagation de la pression de CO_2 : (a, b) sans l'isotherme de Langmuir, (c, d) avec l'isotherme de Langmuir.

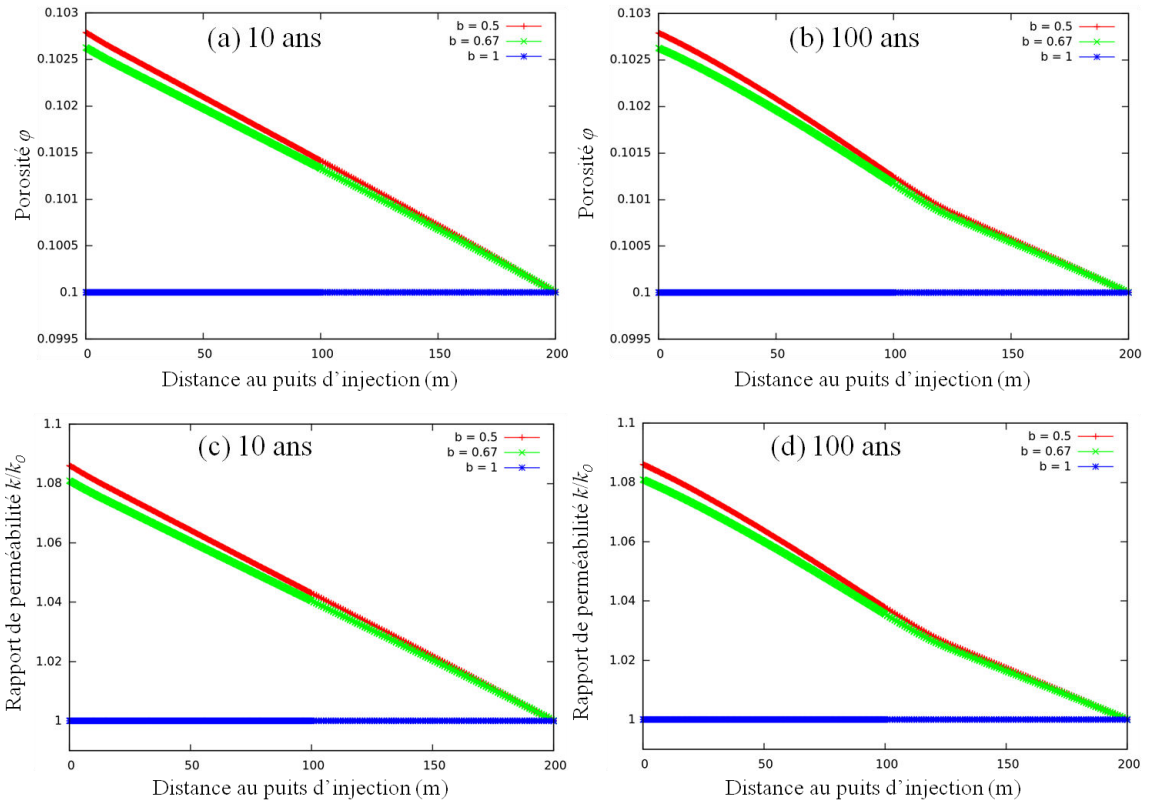


Figure 27. Effets du coefficient de Biot b sur les variations de la porosité (a, b) et sur le rapport de perméabilité k/k_0 (c, d) sans l'isotherme de Langmuir.

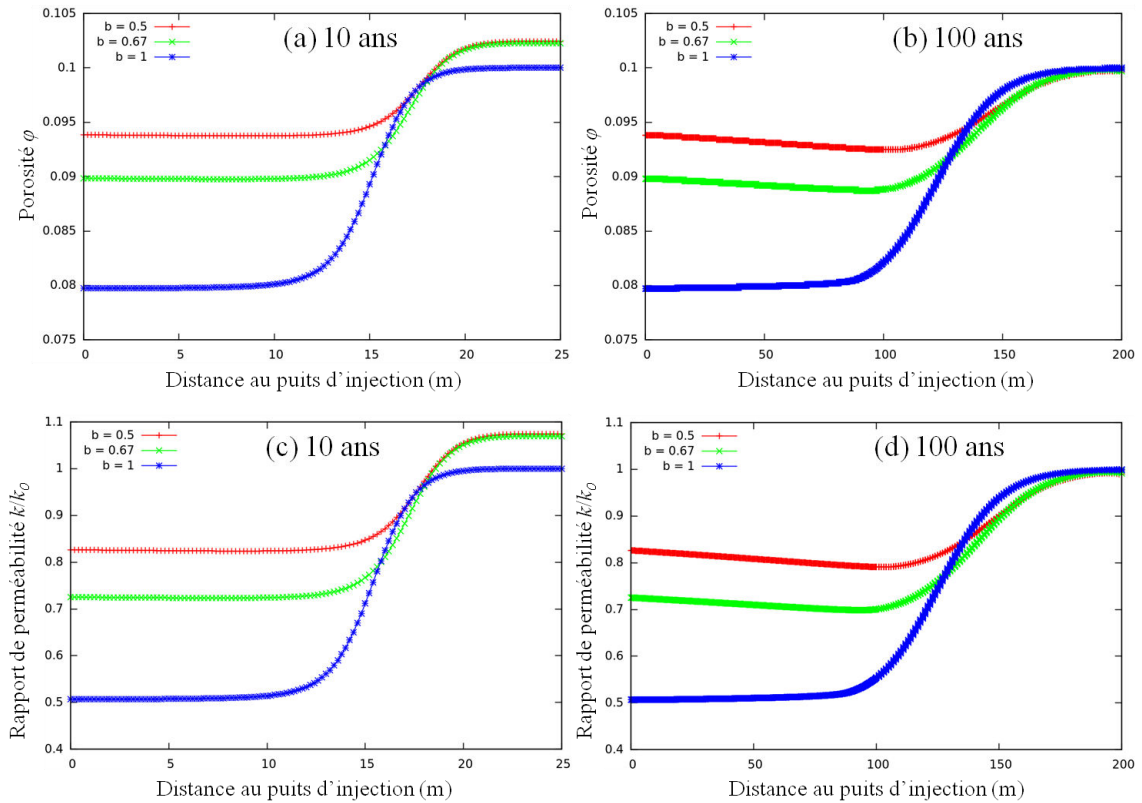


Figure 28. Effets du coefficient de Biot b sur les variations de la porosité (a, b) et sur le rapport de perméabilité k/k_0 (c, d) avec l'isotherme de Langmuir.

➤ Effets des paramètres de Langmuir

Pour étudier l'influence du paramètre de Langmuir ε_L , nous utilisons toujours les mêmes paramètres que dans le cas théorique (voir Tableau 5) : le coefficient de Biot est fixé à 1 et la valeur du paramètre β_L à $4,4 \text{ MPa}^{-1}$.

Les Figures 29 et 30 montrent respectivement l'influence de ε_L sur la propagation de la pression de gaz et sur les variations de porosité/perméabilité, pour des instants de simulation de 10 et 100 ans. Les profils de la pression de gaz correspondants aux plus grandes valeurs de ε_L ont un léger retard sur ceux correspondants aux petites valeurs de ε_L quelle que soit l'instant de simulation (Figs. 29a, 29b). On observe tout comme dans le cas théorique, une grande diminution de la porosité pour les grandes valeurs de ε_L par rapport à ses petites valeurs, quelle que soit la durée de simulation (Figs. 30a, 30b). Mêmes observations sur le rapport de perméabilité (Figs. 30c, 30d). Ces observations peuvent être expliquées par les effets du paramètre ε_L sur l'évolution de la déformation de sorption (Fig. 17).

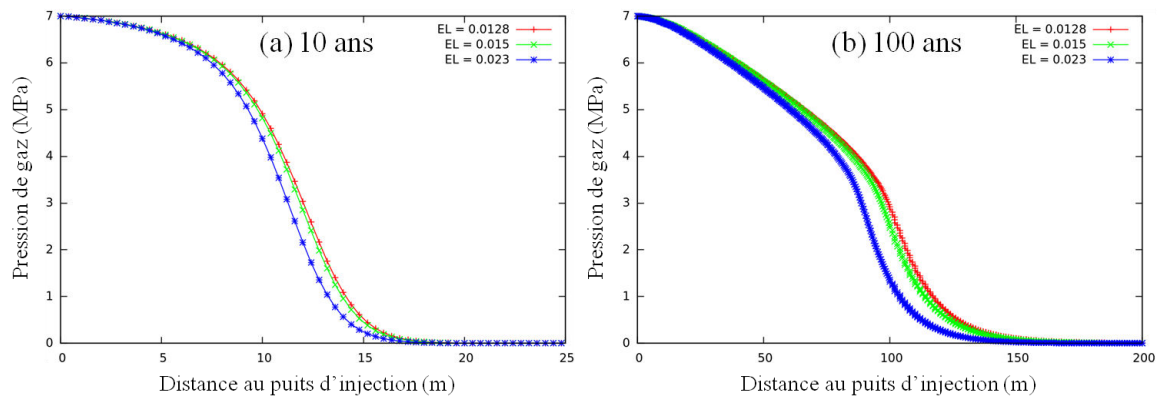


Figure 29. Effets du paramètre de Langmuir ε_L sur la propagation de la pression de CO_2 dans la roche.

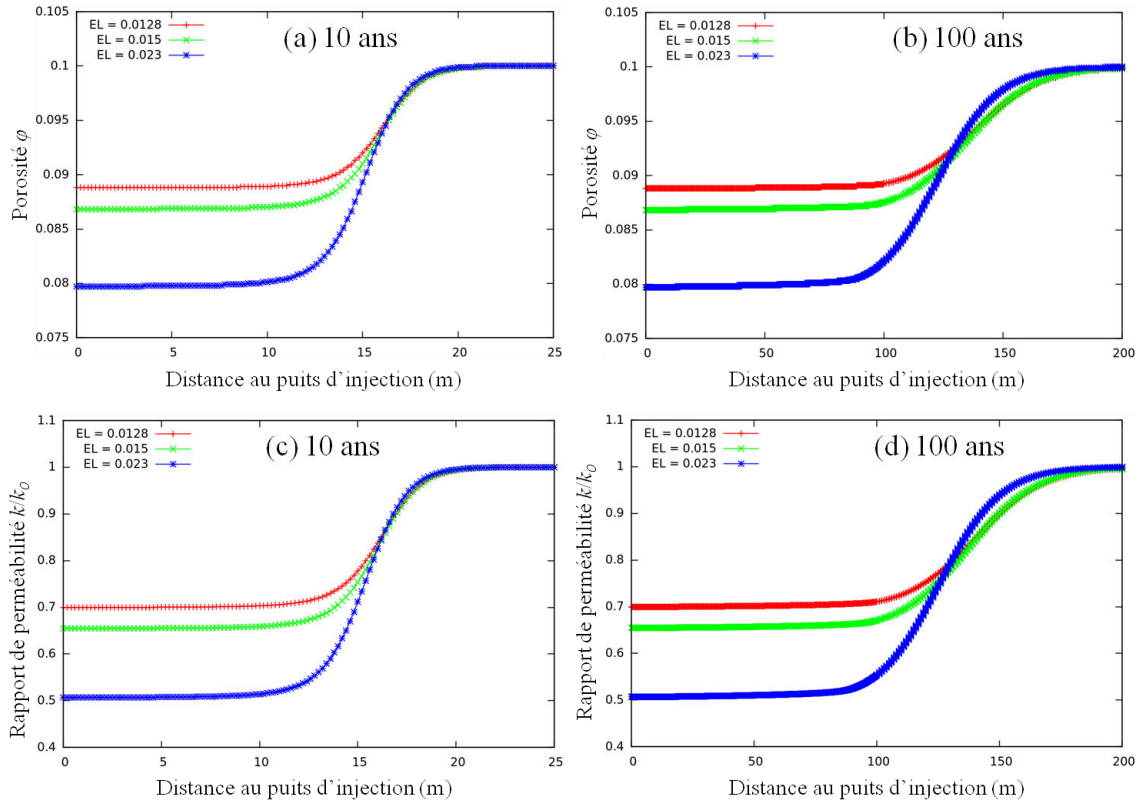


Figure 30. Effets du paramètre de Langmuir ε_L sur les variations de la porosité (a, b) et sur le rapport de perméabilité k/k_0 (c, d).

Dans ces calculs 1D numériques, les mêmes valeurs que dans le cas théorique sont aussi utilisées pour étudier l'influence du paramètre de Langmuir β_L sur la réponse du charbon suite à une injection de CO_2 : le coefficient de Biot est fixé à 1 et la valeur du paramètre ε_L est fixée à 0,023 (voir Tableau 6).

Les Figures 31 et 32 montrent respectivement l'influence de β_L sur la propagation de la pression de gaz et sur les variations de porosité/perméabilité, pour des durées de simulation de 10 et 100 ans. Comme pour le paramètre ε_L , les profils de la pression de gaz correspondants aux plus grandes valeurs de β_L aussi ont un léger retard sur ceux correspondants aux petites valeurs de β_L quelle que soit l'instant de simulation (Figs. 31a, 31b). Les mêmes observations que pour ε_L sont faites en ce qui concerne l'influence du paramètre β_L sur la porosité/perméabilité: une grande diminution de la porosité pour les grandes valeurs de β_L , quelle que soit la durée de simulation (Figs. 32a, 32b) et une grande diminution du rapport de perméabilité pour les mêmes valeurs de β_L (Figs. 32c, 32d). Ces observations est une conséquence de l'influence du paramètre β_L sur l'évolution de la déformation de sorption (Fig. 19).

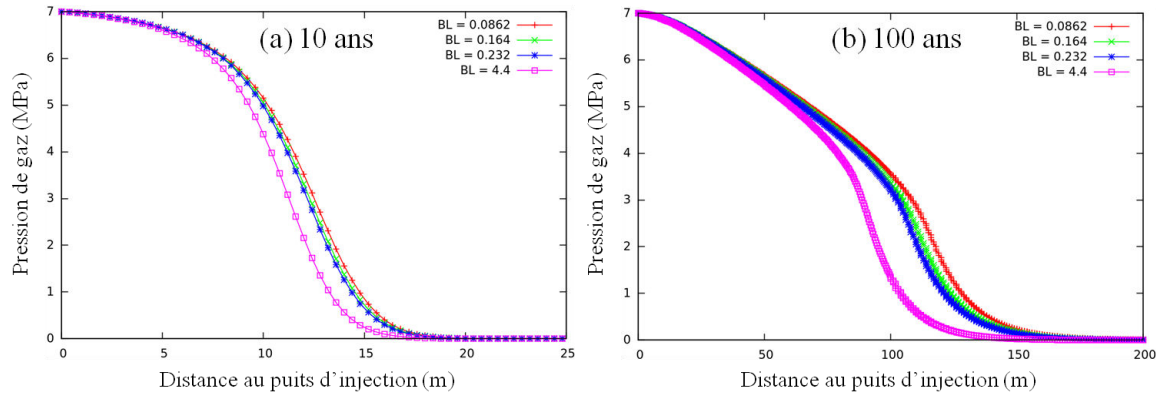


Figure 31. Effets du paramètre de Langmuir β_L sur la propagation de la pression de CO_2 dans la roche.

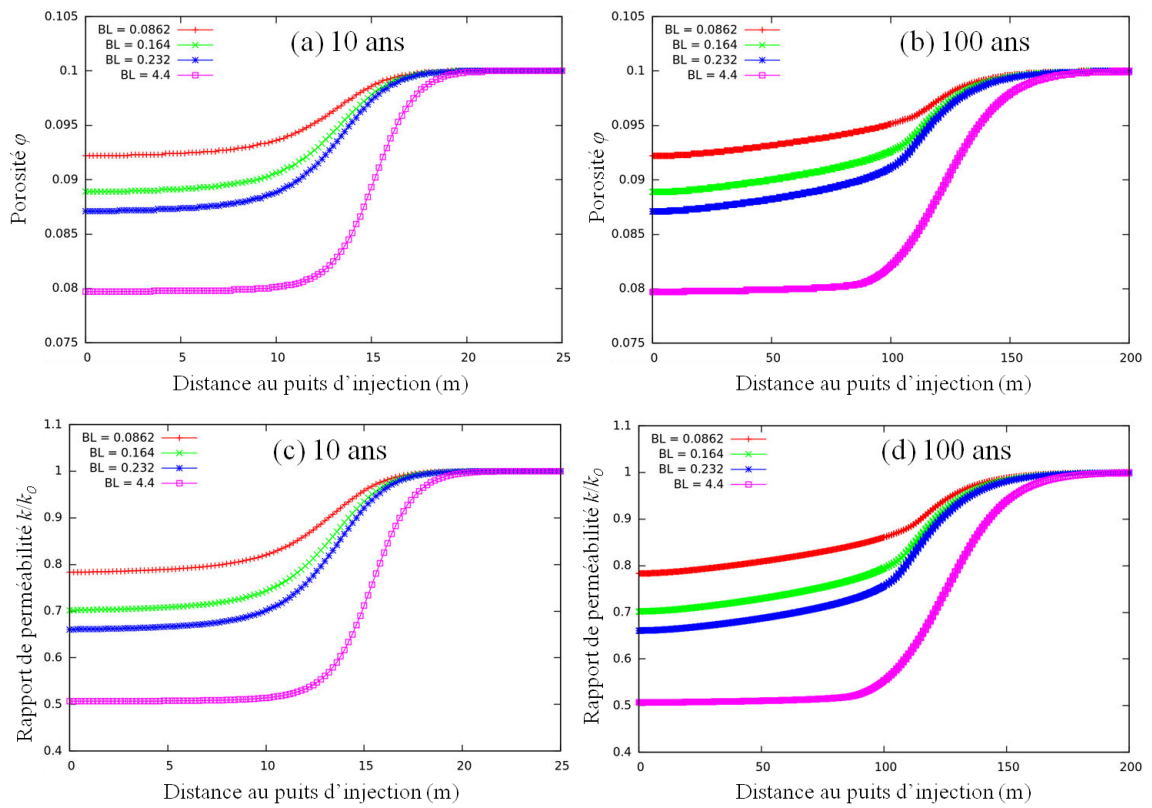


Figure 32. Effets du paramètre de Langmuir β_L sur les variations de la porosité (a, b) et sur le rapport de perméabilité k/k_0 (c, d).

➤ Effets du module de Young drainé E_0

Les valeurs des paramètres données par le Tableau 7 sont utilisées pour étudier l'influence du module de Young drainé E_0 sur la réponse du charbon à l'injection du CO_2 : trois valeurs pour E_0 (750, 1500 et 9750 MPa) avec le coefficient de Biot fixé à 0,67 ; dans le cas avec prise en compte de l'isotherme d'adsorption de Langmuir, les paramètres ε_L et β_L sont pris respectivement égaux à 0,023 et 4,4 MPa^{-1} .

La Figure 33 donne l'influence du module de Young drainé E_0 sur la propagation de la pression de CO_2 dans le domaine pour le cas sans l'isotherme d'adsorption de Langmuir

(Figs. 33a, 33b) et pour le cas avec l'isotherme d'adsorption de Langmuir (Figs. 33c, 33d). On constate un retard des profils de pression correspondants aux grandes valeurs du module de Young drainé E_0 sur ceux correspondants aux petites valeurs, pour une durée de simulation de 10 ans (Figs. 33a, 33c). Au bout de 100 ans, on constate que tous les profils sont confondus (Fig. 33b, sans l'isotherme de Langmuir) ou quasiment confondus (Fig. 33d, avec l'isotherme de Langmuir).

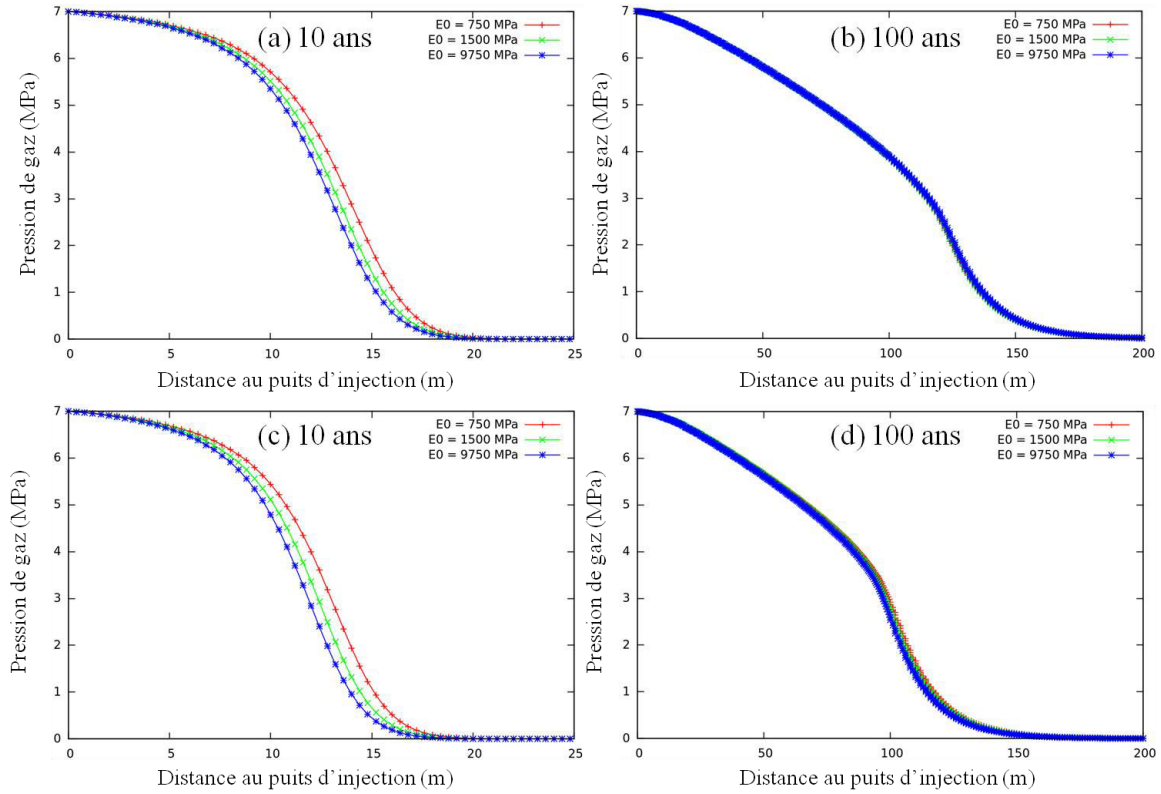


Figure 33. Effets du module de Young drainé E_0 sur la propagation de la pression de CO_2 dans la roche: (a, b) sans l'isotherme de Langmuir, (c, d) avec l'isotherme de Langmuir.

Sur les Figures 34 et 35 sont présentées les variations de la porosité (Figs. 34a, 34b, 35a, 35b) et du rapport de perméabilité (Figs. 34c, 34d, 35c, 35d), respectivement pour le cas sans l'isotherme d'adsorption de Langmuir et avec l'isotherme d'adsorption de Langmuir. Ces figures montrent que le module de Young a une influence non négligeable sur les résultats. En outre, d'après les équations (4-6) et (4-7), l'effet positif du couplage hydromécanique sur l'injectivité (i.e., augmentation de la porosité/perméabilité) est plus important avec des valeurs faibles du module de Young lorsque l'isotherme de Langmuir n'est pas prise en compte (Fig. 34). Dans le cas avec l'isotherme de Langmuir, l'effet positif élevé du couplage hydromécanique (pour les faibles valeurs de E_0) réduit la diminution de la porosité/perméabilité due au processus d'adsorption. Les faibles valeurs du module de Young augmentent ainsi l'effet positif du couplage hydromécanique, inhibant ainsi l'effet négatif (i.e., diminution de la porosité/perméabilité) de l'isotherme d'adsorption de Langmuir.

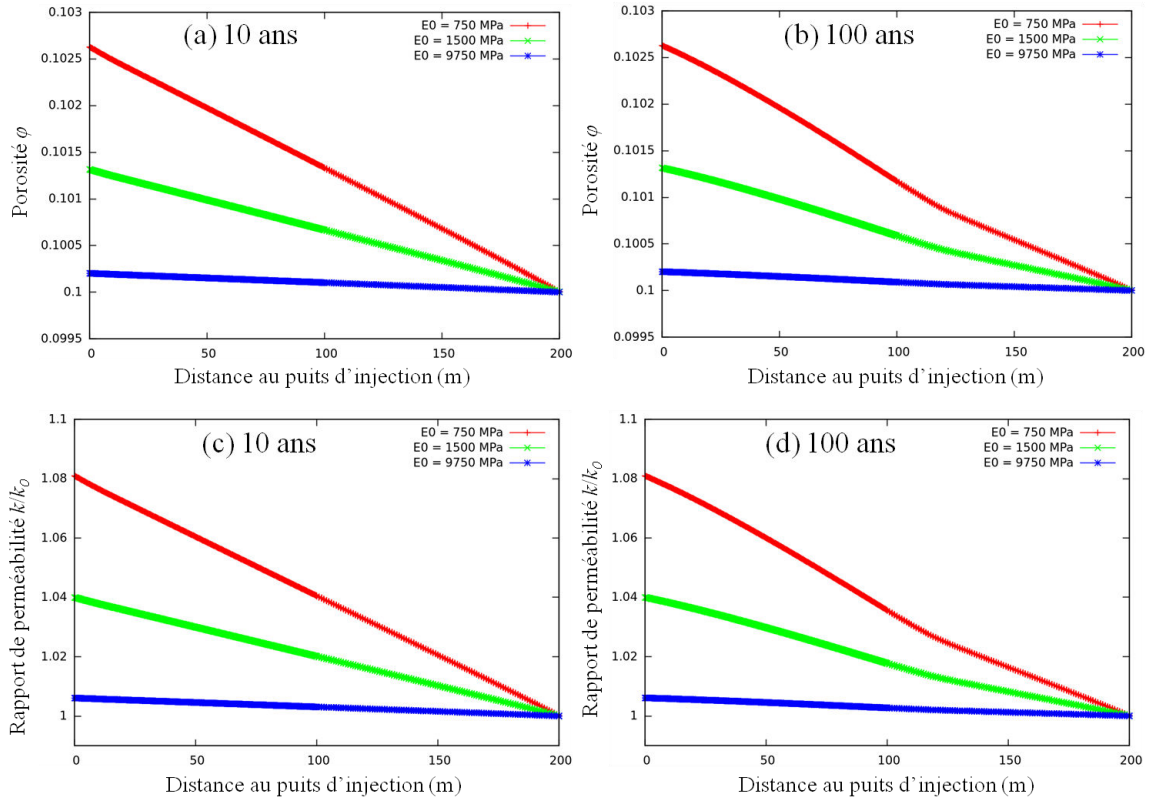


Figure 34. Effets du module de Young drainé E_0 sur les variations de la porosité ϕ (a, b) et sur le rapport de perméabilité k/k_0 (c, d) sans l'isotherme de Langmuir.

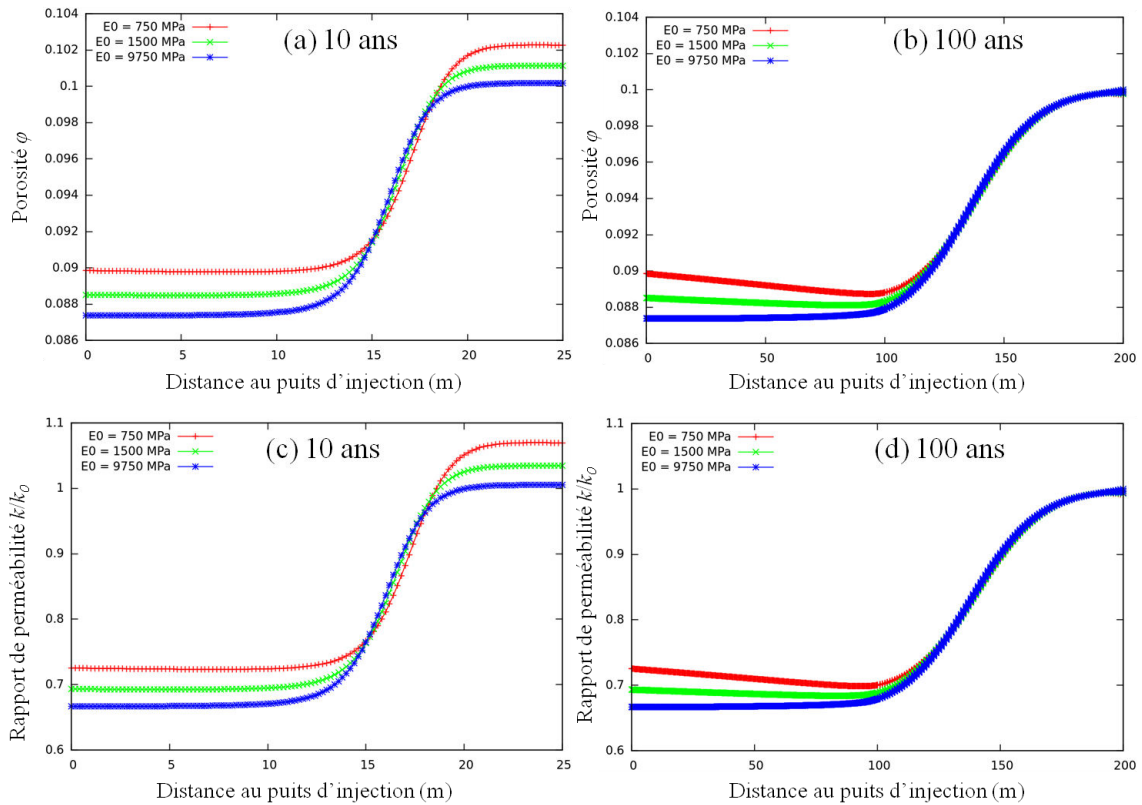


Figure 35. Effets du module de Young drainé E_0 sur les variations de la porosité ϕ (a, b) et sur le rapport de perméabilité k/k_0 (c, d) avec l'isotherme de Langmuir.

4.2.3.3. Discussions sur les résultats de calculs 1D sous Code_Aster

Tous les résultats obtenus au cours des calculs numériques 1D sous Code_Aster ont les mêmes variations que ceux obtenus dans le cas théorique suivant la valeur de la pression de gaz. Cependant, les résultats théoriques à l'équilibre sont obtenus en fonction de la seule variable de pression de gaz alors que dans le cas numérique les résultats sont obtenus avec comme variables la pression de gaz, le temps et la distance au puits d'injection. Ce qui ne nous a pas permis de faire une comparaison de ces résultats (théoriques et numériques) sur une même graphique. Néanmoins, les variations de la porosité/perméabilité dans les deux cas de calculs sont fonction de la pression de gaz injectée. Les commentaires et discussions dans ce cas numérique devront être les mêmes que dans le cas théorique. Nous ajoutons cependant quelques commentaires concernant la propagation de la pression de gaz et de quelques autres résultats.

Lorsque l'on prend en compte le mécanisme de sorption, géré dans notre cas par l'isotherme d'adsorption de Langmuir, la diminution de la porosité (Fig. 25c) observée est due à l'augmentation de la pression de gaz (Figs. 23b) qui fait gonfler la matrice rocheuse, comme expliqué dans le cas théorique. En effet, la diminution de la porosité n'est observée qu'aux endroits du milieu où la pression du gaz a atteint dans sa propagation. Ailleurs (où la pression est quasi nulle), soit la porosité est quasi constante, soit on observe une légère augmentation qui serait due au couplage Hydro-Mécanique, tout comme dans le cas sans la prise en compte de la sorption où l'on n'observe qu'une augmentation de la porosité avec la pression de gaz. L'avance de la propagation de la pression de gaz du cas sans Langmuir sur celle du cas avec Langmuir (Fig. 24) est due à la baisse de la porosité/perméabilité dans le cas avec Langmuir qui ralentit la progression de la pression de gaz dans ce dernier cas.

D'après la Figure 26 (Figs. 26a et 26b), le coefficient de Biot n'aurait quasiment plus d'influence sur la progression de la pression de gaz dans le domaine poreux dans le cas sans Langmuir pour une durée de 100 ans. Par contre, il a toujours de l'influence sur la propagation de la pression de gaz dans le cas avec Langmuir, du moins jusqu'à 100 ans (Figs. 26c et 26d). Cela s'explique par le fait que le phénomène du mécanisme physico-chimique du gonflement de la matrice est beaucoup plus grand que celui du couplage Hydro-Mécanique (on assiste à une grande diminution dans le cas avec Langmuir et à une faible augmentation dans le cas sans Langmuir). Cette influence du coefficient de Biot sur la propagation de la pression de gaz dans le cas avec Langmuir serait due à son influence sur la porosité/perméabilité : l'augmentation du coefficient de Biot favorise la diminution de la porosité, donc de la perméabilité, ce qui retarde la progression de la pression de gaz.

Pour les effets des paramètres de Langmuir, nous constatons que plus leur valeur est grande plus la diminution de la porosité/perméabilité est importante, ce qui affecte donc la propagation de gaz dans la roche. Ceci s'explique par le fait que l'augmentation des valeurs de ces paramètres fait croître la déformation volumique de sorption, donc le gonflement matriciel. L'influence du module de Young sur la propagation de la pression de gaz dans le cas avec Langmuir (Figs. 33c, 33d) se traduit comme suit : plus le module de Young est grand, plus il induit la diminution de la porosité/perméabilité, ce qui ralentira la propagation de la pression de gaz.

4.2.4. Conclusion sur les calculs 1D

Dans cette première partie du chapitre consacrée aux calculs théoriques et numériques (sous Code_Aster) 1D, on a pu remarquer que dans le cas sans la prise en compte de l'isotherme de Langmuir (c'est-à-dire sans l'effet de sorption), l'augmentation de la pression de gaz

augmente la porosité/perméabilité du charbon. Cela traduit le second mécanisme mentionné dans l'introduction, c'est-à-dire le mécanisme Hydro-Mécanique d'augmentation de la porosité. Ce mécanisme consiste en une ouverture des pores (augmentation des espacements entre les blocs matriciels), augmentant ainsi la perméabilité. Cette augmentation de porosité/perméabilité devient de plus en plus importante lorsque le module de Young et le coefficient de Biot diminuent (deviennent faible). Cette augmentation de la porosité/perméabilité augmentera donc l'injectivité à l'échelle du réservoir.

En prenant en compte l'isotherme de Langmuir, l'augmentation de la pression de gaz induit au contraire une diminution de la porosité et de la perméabilité du charbon. Ceci traduit le premier mécanisme mentionné dans l'introduction, c'est-à-dire le mécanisme physico-chimique de gonflement matriciel et de réduction de porosité associé. Il consiste en un gonflement de la matrice du charbon suite à une adsorption de gaz. Ceci diminue les espacements entre les blocs matriciels (fermeture des pores) et donc diminue la perméabilité. Cette diminution devient de plus en plus importante aussi bien avec les valeurs élevées des paramètres de Langmuir qu'avec celles du coefficient de Biot. Cette diminution de la porosité/perméabilité limitera donc l'injectivité à l'échelle du réservoir.

Les résultats théoriques et numériques 1D obtenus ici montrent l'importance du phénomène de sorption au cours d'une injection de CO_2 dans le charbon. Sa prise en compte permettra donc de mieux contrôler les variations des propriétés pétro-physiques de la roche.

En augmentant les effets du couplage Hydro-Mécanique lorsque sa valeur est faible, le module de Young E_0 inhibe ainsi les effets du gonflement lorsque le phénomène de sorption est pris en compte.

Les résultats des calculs numériques 1D sous Code_Aster sont donc très prometteurs concernant notre modèle numérique vis-à-vis des calculs et observations dans le cas théorique. Dans la partie suivante, nous continuons nos calculs sous Code_Aster avec le modèle 2D.

4.3. Deuxième partie : les calculs numériques 2D avec Code_Aster

Les résultats que nous présentons dans cette deuxième partie du chapitre sont ceux relatifs aux calculs numériques 2D. Les calculs sont basés sur un massif de dimensions 1000 m sur 1000 m. Une partie des résultats des calculs 2D pour un massif de dimensions 200 m sur 200 m et ceux des calculs théoriques ont fait objet de deux communications orales, lors des JEMP (Journées d'Etudes sur les Milieux Poreux) de novembre 2012 à Marseille et lors du "Fifth Biot Conference on Poromechanics" de juillet 2013 à Vienne, Autriche (Saliya et al. 2013).

Dans cette partie nous reprenons les études faites en 1D sous forme de modèle 2D sous Code_Aster en déformations planes. Nous étudions donc les effets des paramètres hydromécaniques (coefficient de Biot et module de Young) et des paramètres de l'isotherme d'adsorption de Langmuir sur la réponse du charbon à l'injection du CO_2 . Les effets de la pression initiale de l'eau interstitielle et ceux de la perméabilité intrinsèque du charbon sont aussi étudiés dans cette partie, pour un charbon saturé en eau et un charbon sec. Une autre étude est faite afin de voir l'influence de la dissolution du CO_2 dans l'eau interstitielle.

Les résultats que nous présentons ici sont ceux qui ont constitué à la rédaction de notre article accepté pour publication dans la revue *International Journal for Numerical and Analytical Methods in Geomechanics* pour publication. Cet article est donc présenté en intégralité ci-dessous.

Thermo-Hydro-Mechanical modeling with Langmuir's adsorption isotherm of the CO₂ injection in coal

Kanssounne SALIYA, Dragan GRGIC, Richard GIOT and Albert GIRAUD

University of Lorraine/CNRS/CREGU, Georessources Laboratory,
Rue du Doyen Marcel Roubault, BP 40
54501 Vandœuvre-lès-Nancy, France
Tel: +(33) 3 83 59 63 01 Fax: +(33) 3 83 59 63 00

Corresponding E-mail:

Kanssounne.saliya@univ-lorraine.fr

Abstract

In this paper, we used a theoretical model for the variation of Eulerian porosity which takes into account the adsorption process known to be main mechanism of production or sequestration of gas in many reservoir of coal. This process is classically modeled using Langmuir's isotherm. After implementation in Code_Aster, a fully coupled Thermo-Hydro-Mechanical analysis code for structures calculations, we used numerical simulations to investigate the influence of coal's hydro-mechanical properties (Biot's coefficient, bulk modulus), Langmuir's adsorption parameters and the initial liquid pressure in rock mass during CO₂ injection in coal. These simulations showed that the increase in the values of Langmuir's parameters and Biot's coefficient promotes a reduction in porosity due to the adsorption process when the gas pressure increases. Low values of bulk modulus increase the positive effect (i.e. increase) of hydro-mechanical coupling on the porosity evolution. The presence of high initial liquid pressure in the rock mass prevents the progression of injected gas pressure when CO₂ dissolution in water is taken into account.

Keywords: Langmuir's isotherm, Hydro-mechanical properties, CO₂ injection, Coal, Numerical modeling, Porosity.

1. Introduction

CO₂ storage in deep geological formations (aquifer rocks such as limestone or sandstone, unexploited coal seams) is known to be a way of reducing emissions of greenhouse gases. In the case of coal, the geological sequestration appears to be promising for CO₂ at large scale. Its advantage is that coal offers both safety of storage and the possibility of extracting methane initially contained therein [1-2]. The best known technique is "the Enhanced Coalbed Methane (ECBM)" which involves in injecting CO₂ and recovering methane CH₄ of coal seams [3-8]. However, because it is a dual porosity rock, the interactions between coal and CO₂ are complex [9-11]. A thorough study of the changes to the petro-physical (porosity, permeability) and mechanical (deformation, failure strength) properties of coal is therefore necessary to estimate the reservoir and cap rock properties of coal. For example, the mechanical behavior of coal has a large impact on the stability of the reservoir. One study on the mechanical properties of two (2) Illinois bituminous coals showed significant variations in

flexural strength and flexural modulus which could therefore raise stability problems during gas injection [12].

The permeability of coal plays a major role in the injectivity process and is indeed the key parameter governing the movement of fluids in rock formations. It is related to coal properties, maceral composition and opening of fractures (cleat) whose change is a function of effective stress [13-14]. Under a confining pressure, swelling or shrinkage of the coal matrix occurs and can also change the opening of fracture (cleat) [13-14] and thus permeability. Swelling/shrinkage is due to the sorption mechanism [9-11], i.e. the main mechanism of production or sequestration of gas in coal matrix [10, 13]. Permeability is therefore a function of the porosity and swelling/shrinkage of coal.

In order to couple the different phenomena involved in the evolution of permeability during injection of CO₂, several authors have established permeability models for coal which integrate both hydro-mechanical coupling and sorption mechanism. These models are mainly based on the theory of linear elasticity and the use of Langmuir isotherm [15-24]. Palmer [25] compared analytic permeability-change models and examined (critically) attempts to match field data. These analytic models are the ARI model [20], the Palmer and Mansoori model [19, 26], the Shi and Durucan model [27-29] and the Cui and Bustin model [15, 30]. Pan and Connell [31] presented a review and discussed analytical models for coal permeability and testing data. Gu and Chalaturnyk [32], in their geomechanical coupled simulation drew the conclusion that “the influence of geomechanical processes is an important issue for CBM recovery and ignoring geomechanical processes may lead to errors in the evaluation of coalbed methane production”.

For the purpose of our study, we will establish a model for Eulerian porosity using Langmuir's isotherm to take into account the sorption phenomenon. This model will be implemented in CODE_ASTER, i.e. a finite elements code developed by EDF (Electricité De France), to investigate the influence of hydro-mechanical properties of coal (Biot's coefficient, bulk modulus), petrophysical properties (i.e., permeability) and Langmuir's isotherm parameters by using numerical simulations. Similar studies (on coal saturated by gas) of the influence of Biot's coefficient have been carried out by Wu et al. [13] by varying the ratio of coal bulk modulus K and grain modulus K_s (K/K_s). In our study, coal is saturated with water or is dry. While the dissolution of CO₂ is a rather slow process [33], it should not however be neglected. In this paper, we will also show the effects of its dissolution in interstitial water by comparing with a case without CO₂ dissolution in water. The results obtained in the case without adsorption phenomenon will also be presented. Although Langmuir's isotherm is used by most authors in their modeling, the impact of its parameters during the injection and/or extraction is not well known. With our model, we investigated the role played by the Langmuir's isotherm parameters during injection of CO₂. We also tested the role played by the initial liquid pressure in rock (i.e., coal) mass during CO₂ injection and we will compare these simulations with the dry (i.e., without water) case. It is worth emphasizing that coal is a very heterogeneous and anisotropic rock from mechanical and hydraulic points of view. As a first approach in our study and for the sake of simplicity in our model, we considered that coal cracks have a homogeneous distribution without size precision and that coal is an isotropic and homogenized medium from mechanical and hydraulic standpoints.

2. Theoretical framework

Like many existing porosity models, our model is based on the theory of linear poro-elasticity and is then obtained from the stress tensor exerting on the porous medium. However, there are

some non-linear porous media models which can be found in the literature, but that does not concern us in this paper. The following lines give the equations for the evolution law of Eulerian porosity. Unlike other models, the stress as a variable does not appear explicitly in our model. But effects of stress variations on the porosity will be taken into account through the mechanical deformation of the rock.

2.1. Dual porosity of coal

Coal is a reservoir rock with an important network of natural fractures called the cleat system. The size of its pores varies from micrometer to angstrom. Coal seams contain both the micropores of the rock matrix ($< 500 \text{ \AA}$) which represent primary porosity, and the macropores or fractures ($> 500 \text{ \AA}$), which represent secondary porosity. Coal is thus a dual porosity rock and it is often represented by a series of rectangular building blocks where the blocks are the matrix and the space between two blocks is the fractures [34-35]. Figure 1 gives the conceptual plan view (inspired from Harpalani and Chen [35]) of coal and shows the two main types of existing fractures (face cleat and butt cleat). The width of a fracture is related to the rank of coal (coals are classified by their rank or thermal maturity). Because of the size of micropores, the gas exists in adsorbed state while in the fractures the gas is in a free state. Therefore, the stored gases obey different laws governing these two states [36], namely Fick's law for diffusion [22] and Darcy's law for gas flow in fractures [17]. For the sake of simplicity in our model, we considered that coal cracks have a homogeneous distribution without size precision and that coal is an isotropic and homogenized medium from mechanical and hydraulic standpoints.

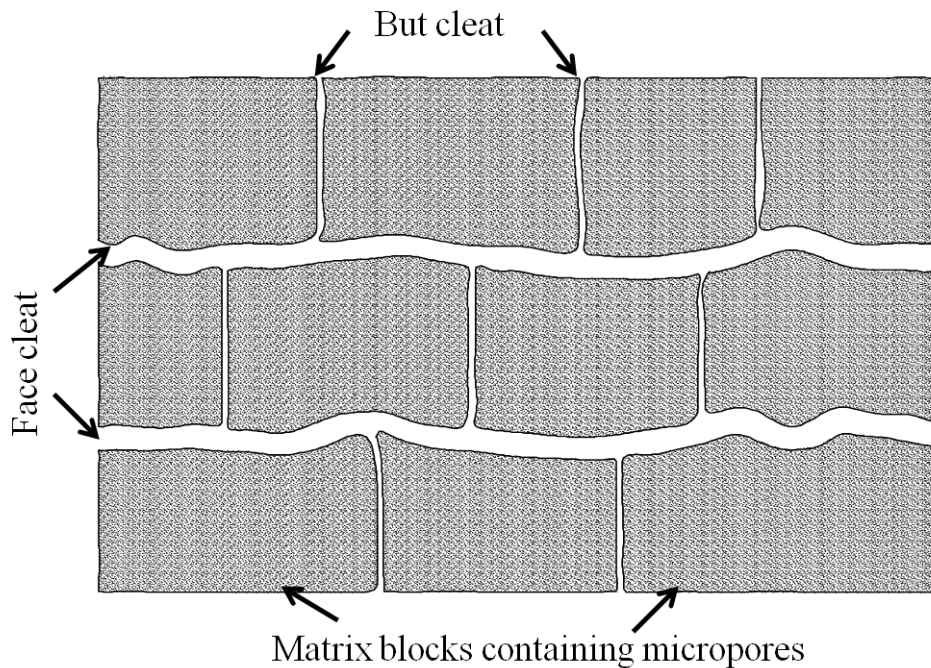


Figure 1. Conceptual illustration of coal fracture system: plan view.

2.2. Poro-elasticity equations

The convention of negative compressions for stresses and strains was used in this study. We considered a porous medium saturated by two (2) fluids: water and CO₂. The subscripts *l* and *g* respectively represent water (liquid) and gas mixture (only CO₂ in our case). The stress tensor $\underline{\underline{\sigma}}$ exerting on the porous medium can be decomposed into effective stress tensor $\underline{\underline{\sigma'}}$ and pressure stress tensor σ_p :

$$\underline{\underline{\sigma}} = \underline{\underline{\sigma'}} - \sigma_p \underline{\underline{1}} \quad (1)$$

$\underline{\underline{1}}$ in (1) is the unit tensor of second order. The non-linear isotropic poroelastic behavior equation of the stress tensor can be expressed incrementally as a function of drained parameters which do not depend on the fluid [37]:

$$d\underline{\underline{\sigma}} = \lambda_0 Tr(d\underline{\underline{\varepsilon}}) \underline{\underline{1}} + 2G d\underline{\underline{\varepsilon}} - (b_l dP_l + b_g dP_g) \underline{\underline{1}} - 3\alpha_0 K_0 dT \underline{\underline{1}} \quad (2)$$

λ_0 and G in Eq. (2) are Lamé's coefficients; d represent the increment of the tensor or variable, Tr the trace, $\underline{\underline{\varepsilon}}$ the deformation tensor; b_l and b_g respectively the Biot's coefficient relative to liquid and gas; P_l and P_g respectively the liquid and gas pressure; α_0 coefficient of drained thermal expansion and T the temperature of the medium. K_0 is the drained incompressibility modulus given by $K_0 = (3\lambda_0 + 2G)/3$. K_0 is also related to drained Young's modulus E_0 and drained Poisson's ratio ν_0 through isotropic elasticity theory [38]:

$$K_0 = E_0 / 3(1 - 2\nu_0) \quad (3)$$

The following identities will be used for b_l and b_g : $b_l + b_g = b$ and $b_l = bS_l$. S_l and b are the liquid saturation and the Biot's coefficient, respectively.

The mean stress σ_m is by definition the third of the trace of the expression given by Eq. (2):

$$d\sigma_m = \frac{1}{3} d\underline{\underline{\sigma}} \underline{\underline{1}} = K_0 d\varepsilon_v - (b_l dP_l + b_g dP_g) - 3\alpha_0 K_0 dT \quad (4)$$

Stating that $\underline{\underline{\varepsilon}} = (\nabla u + {}^t\nabla u)/2$ is the total strain tensor, u the displacement, ∇ the gradient symbol and t the transposed symbol, ε_v (the volumetric deformation) is the trace of $\underline{\underline{\varepsilon}}$ ($\varepsilon_v = Tr(\underline{\underline{\varepsilon}})$). The partition of the mean stress as function of the Eulerian porosity φ of the rock is:

$$d\sigma_m = (1 - \varphi) d\sigma_s - \varphi dP_g + \varphi S_l dP_c \quad \text{With } d\sigma_s = K_s d\varepsilon_{v,s} - 3\alpha_0 K_s dT \quad (5)$$

Eq. (5) can be found in [37] (II. 36). This partition doesn't take into account the efforts related to capillary interfaces. P_c is the capillary pressure. $d\sigma_s$ is the increment of stress relating to the solid matrix (i.e., solid skeleton) and $d\varepsilon_{v,s}$ is the volumetric deformation of the solid matrix:

$$d\varepsilon_{v,s} = d\varepsilon_v - d\varphi / (1 - \varphi) \quad (6)$$

K_s is the incompressibility modulus of the solid matrix. It is calculated from the following relationship [37]:

$$b = 1 - K_0 / K_s \quad (7)$$

Therefore, the expression of the variation of Eulerian porosity is given by [37]:

$$d\varphi = (b - \varphi) (d\varepsilon_v - 3\alpha_0 dT + (dP_g - S_l dP_c) / K_s) \quad (8)$$

Eq. 8 does not take into account the sorption of gas onto the solid matrix. The gas sorption is generally modeled with the Langmuir's isotherm [39-41] and therefore to establish the porosity evolution taking into account this phenomenon, we will use this Langmuir's isotherm.

2.3. Langmuir's isotherme

The Langmuir adsorption model [42], is a particular isotherm, based on a model where the surfaces are considered homogeneous. The adsorption is made on a finite number of sites in the form of a monolayer. However, there are three (3) formulations for this isotherm. In the classical formulation, the fraction θ of occupied sites is linked with the fluid pressure P_g in the pores:

$$\theta = \alpha_L P_g / (1 + \alpha_L P_g) \quad (9)$$

α_L is the Langmuir constant depending on the temperature of adsorbed gas. This relationship is consistent with Henry's law when the pore pressure lowers. Another formulation is to rewrite adsorption isotherm (Eq. 9) in terms of adsorbed volume V_{ads} [15] which is function of Langmuir volume V_L and Langmuir pressure P_L :

$$V_{ads} = V_L P_g / (P_L + P_g) \quad (10)$$

In the third formulation, the adsorption isotherm (Eq. 9) is written in terms of volumetric strain ε_V [24] which is a function of Langmuir volumetric strain ε_L (the maximum strain which can be achieved at infinite pressure) due to sorption:

$$\varepsilon_V = \varepsilon_L P_g / (P_L + P_g) \quad (11)$$

Volumetric strain is directly linked to the adsorbed gas volume; therefore the Langmuir pressure P_L should have the same value in the two last formulations. By considering β_L the inverse of P_L in the last formulation (Eq. 11), it becomes:

$$\varepsilon_V = \varepsilon_L \beta_L P_g / (1 + \beta_L P_g) \quad (12)$$

Most models of porosity/permeability are based on the two last formulations (Eqs. 10 and 11/12) [13, 15, 19-20, 22-24, 43]. A relation between ε_L and β_L was given by Tóth [44]:

$$\varepsilon_L = 1 + 1/\beta_L P_m \quad (13)$$

In Eq. (13) P_m is defined as the equilibrium pressure where the total monolayer capacity is completed [44].

However, this expression has never been used in modeling. Palmer and Mansoori [19] used the following relationship to try to make their model correspond to experimental data:

$$\varepsilon_L / \beta_L = 8 psi \quad (14)$$

But found that it did not in fact correspond to the experimental values they found. In our model, we did not use these relations between ε_L and β_L preferring instead to use the specific values for these parameters given by other authors [13, 43].

2.4. Homogenized equation

This paragraph gives the final Eulerian porosity model established by taking into account the adsorption phenomenon, i.e. the main mechanism of production or storage of gas in coal matrix [10, 13]. This model was obtained by integrating the following term [19] in Eq. (8) by analogy with the variation of the rock volumetric deformation per unit of temperature/pressure:

$$d\varepsilon_v = - \frac{d}{dP_g} \left(\varepsilon_L \beta_L P_g / (1 + \beta_L P_g) \right) dP_g \quad (15)$$

In Eq. (15), the expression of the Langmuir isotherm is included between brackets. This expression therefore describes the fixation of gas molecules in the micropores during injection. White defines this phenomenon as being a complex physico-chemical process of condensation of gas on the free surfaces [10]. The volumetric strain due to the injection of gas is therefore given by:

$$\left(1/K_s - \varepsilon_L \beta_L / (1 + \beta_L P_g)^2 \right) dP_g \quad (16)$$

The first term represents the mechanical deformation and the second term corresponds to the deformation due to gas adsorption. Our final expression for the variation of Eulerian porosity therefore contains these two volumetric strains. This expression is then given by:

$$d\varphi = (b - \varphi) \left(d\varepsilon_v - 3\alpha_0 dT + \left(1/K_s - \varepsilon_L \beta_L / (1 + \beta_L P_g)^2 \right) dP_g - S_l / K_s dP_c \right) \quad (17)$$

In previous works, such as that of Gu and Chalaturnyk [32], on coupled flow and geomechanical modeling of coal, stress appears as a variable in the model equation. In our work, according to Eq. (2), the stress is calculated as function of strain ε , pore pressure P_g and capillary pressure P_c . Therefore, the stress variations effects on porosity are taken into account via $d\varepsilon_v$ in the Eq. (17).

Eq. (17) will be implemented in Code_Aster (EDF) to perform numerical simulations. The permeability of coal matrix is assumed to vary with porosity. So to take this variation of permeability as a function of porosity variation into account, we used the following well-known relation [15, 45-46]:

$$k/k_0 = (\varphi/\varphi_0)^3 \quad (18)$$

k/k_0 is the intrinsic permeability ratio (the subscript 0 denotes the initial value of the variable). This relationship is known to be that of coal matrix.

2.5. Diffusion and transport equations

The laws which describe hydrous transport are Darcy's law and Fick's law. Darcy's law describes the conductive transport of liquid and gas mixture in porous medium. These expressions are given by:

$$\text{For liquid} \quad M_l / \rho_l = \lambda_l^H \left(-\nabla P_l + \rho_l F^m \right) \quad (19)$$

$$\text{For gas} \quad M_g / \rho_g = \lambda_g^H \left(-\nabla P_g + \rho_g F^m \right) \quad (20)$$

Where M_i , ρ_i , λ_i^H and F^m are mass flux, density, hydraulic conductivity and force mass, respectively.

Fick's law is used to describe the diffusion in:

$$\text{Gas mixture} \quad M_{vp} / \rho_{vp} - M_g / \rho_g = -F_{vp} \nabla (P_{vp} / P_g) \quad (21)$$

$$\text{Liquid mixture} \quad M_{ad} - M_l = -F_{ad} \nabla (\rho_{ad}) \quad (22)$$

F_{vp} and F_{ad} are Fick's coefficient of gas mixture and liquid mixture (water and dissolved CO₂), respectively, which depend on temperature, pressure and porous medium tortuosity.

2.6. Solubility of CO₂ in water

Our modelling covers the dissolution of CO₂ in water. It is defined through the Henry constant K_H , which links the molar concentration of dissolved CO₂ C_{ad} (moles/m³) with the pressure of “dry” CO₂ P_g :

$$C_{ad} = P_g / K_H \quad (23)$$

The dissolved CO₂ pressure P_{ad} is therefore related to the “dry” CO₂ pressure P_g by:

$$P_{ad} = RTP_g / K_H \quad (24)$$

The solubility of dissolved CO₂ as a gas in water thus depends on the pressure and temperature according to Henry's Law (Eqs. 23-24).

3. Description of the model

3.1. Code_Aster: presentation

Code_Aster is an Analysis code of Structures and Thermo-Mechanical for Studies and Research (in French abbreviate ASTER) developed by EDF (Electricité De France). It is a free software for numerical simulations with which structure calculations for thermal, mechanical or coupled thermo-hydro-mechanical phenomena can be made with linear or non linear (which concern the behavior of materials, large deformations or large rotation and frictional contacts) behaviors and acoustic calculations. These problems are solved by using the finite element method. This kind of study requires two data files namely firstly, one (or more) file(s) mesh which define(s) the geometrical and topological description of mesh (this file is generally from a mesh software used in a pre-processor (SALOME, GIBI, GMSH, IDEAS ...)); and secondly, a command file that can both read and assign modeling data for different treatment operations and also edit results (www.code-aster.org). The mesh software used in this study is the GIBI.

3.2. Implementation

We integrate Eq. (17) from the current time (+) to the previous time (-):

$$\int_{-}^{+} d\phi / (b - \phi) = \int_{-}^{+} d\varepsilon_v - 3\alpha_0 \int_{-}^{+} dT + \int_{-}^{+} dP_g / K_s - \varepsilon_L \int_{-}^{+} \beta_L / (1 + \beta_L P_g)^2 dP_g - \int_{-}^{+} (S_l / K_s) dP_c \quad (25)$$

We first calculate the saturation at the end of the time (+) as function of capillary pressure P_c $S_l^+ = S_l(P_c^+)$. This leads to:

$$\ln\left(\frac{(b - \varphi^+)}{(b - \varphi^-)}\right) = - \left(\begin{aligned} & \left(\varepsilon_v^+ - \varepsilon_v^- \right) - 3\alpha_0 (T^+ - T^-) - S_l^+ (P_c^+ - P_c^-) / K_s \\ & + (P_g^+ - P_g^-) / K_s - \varepsilon_L \left(1 / (1 + \beta_L P_g^+) - 1 / (1 + \beta_L P_g^-) \right) \end{aligned} \right) \quad (26)$$

According to Eq. (26), the Eulerian porosity is calculated by finite elements as follows:

$$\varphi^+ = b - (b - \varphi^-) \exp \left(\begin{aligned} & - \left(\varepsilon_v^+ - \varepsilon_v^- \right) + 3\alpha_0 (T^+ - T^-) + (S_l^+ / K_s) (P_c^+ - P_c^-) \\ & - (P_g^+ - P_g^-) / K_s - \varepsilon_L \left(1 / (1 + \beta_L P_g^+) - 1 / (1 + \beta_L P_g^-) \right) \end{aligned} \right) \quad (27)$$

The second term and the third term in the exponential function are zero for isothermal conditions (i.e., no temperature variation) and for saturated medium without capillary pressure, as is our case. The fourth term and the last term in the exponential function are equal to zero if the coal matrix is incompressible (i.e., Biot's coefficient equal to 1 according to the definition of Biot's coefficient: $b = 1 - K_0/K_s$ (Eq. 7)) and if there is no adsorption phenomenon, respectively. Langmuir isotherm is implemented in Code_Aster in such a way that it can be used as an option.

Fick's laws of diffusion (Eqs. 21-22) and Darcy's laws (Eqs. 19-20) are used to describe the transport of fluids in our study and Henry's law (Eqs. 23-24) for CO₂ dissolution in water. These laws are already implemented in Code_Aster. The mechanical calculation was carried out by quadratic interpolation and hydraulic calculation by linear interpolation.

3.3. Mesh and boundary conditions

To study the poroelastic response of coal to CO₂ injection, we considered a 2D (plane strains) model with a vertical injection well (radius = 0.5 m) in the z direction, as shown in Figure 2. To take symmetry axes into account, we considered only a quarter of rock mass of size 1000 m×1000 m. The mesh has 16,800 elements of quadrangle type with 8 nodes (quadratic interpolation), for a total of 50,981 nodes. The grid sizes are smaller near the wellbore and larger near the boundary.

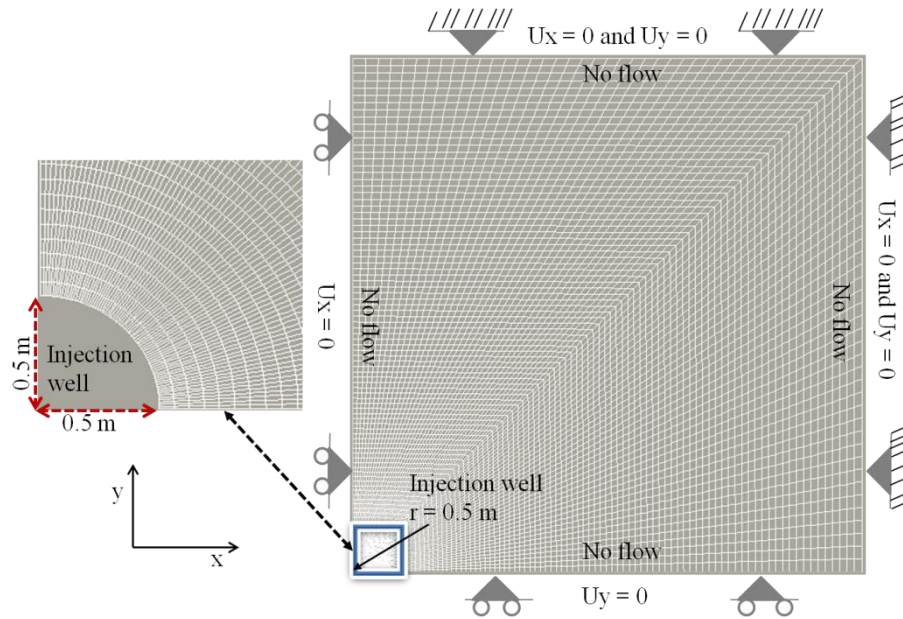


Figure 2. Geometry of the 2D (plane strains) model for CO₂ injection and boundary conditions.

We considered both water-saturated and dried (i.e., without water) porous media. In the saturated case, the initial pressure of water was 0.1 MPa. In both cases, we considered total isotropic stresses (-20 MPa) at the border of the model. In this study, we took into account the impact of the borehole excavation. For this, we considered three (3) phases of calculations:

- (1) Imposition of the initial state before excavation: the pressure of CO₂ is equal to zero in the model. Displacements are blocked at the wall of the injection well, at the model boundaries and at the two symmetry axes. Fluid flow was also supposed to be equal to zero.
- (2) The borehole excavation. During this stage, the gas pressure was supposed to be equal to the atmosphere pressure at the model boundaries and at the symmetry axes.
- (3) Injection of CO₂. The CO₂ pressure was imposed at the wall of the injection well ($P_{CO_2} = 7$ MPa).

3.4. Model Parameters and different calculations

To study the response of coal to CO₂ injection, the input properties of the model are listed in Table 1. The intrinsic permeability used was equal to that of water in the case of saturated rock and to that of gas in the case of dry rock according to the laws of relative permeability. We used for this work the Van Genuchten model [47] for the relative permeability of fluids (CO₂ and H₂O).

For Langmuir's parameters, we used values from literature on the subject: $\beta_L = 0.232 \text{ MPa}^{-1}$ and $\varepsilon_L = 0.0128$ for Palmer and Mansoori [19]; $\beta_L = 0.164 \text{ MPa}^{-1}$ and $\varepsilon_L = 0.023$ for Wu et al. [13] and $\beta_L = 0.0862 \text{ MPa}^{-1}$ and $\varepsilon_L = 0.015$ for Connell et al. [43]. Another value of β_L (4.4 MPa⁻¹), determined at the Laboratory of Chemistry and Methodologies for Environment (LCME) in Metz (France), was also used. Permeability of 10^{-18} m^2 was chosen within the range of values found in the literature: 10^{-19} - 10^{-16} m^2 [48]; 10^{-17} - 10^{-13} m^2 [49]; 10^{-21} - 10^{-20} m^2 [50], etc.

Table 1. Values for coal used in the numerical modeling.

Parameter	Value	Unit
Poro-elastic properties		
Drained Young's modulus of coal, E_0	750	MPa
Drained Poisson's ratio of coal, ν_0	0.25	-
Density of coal ρ_c	1100	kg/m ³
Temperature T	303.15	°K
Dilatation's coefficient thermal α	10^{-5}	/°C
Petro-physical properties		
Initial porosity of coal ϕ_0	0.1	-
Initial permeability (of water) of coal k_0	10^{-18}	m ²
Initial permeability (of gas) of coal k_0	$10^{-18} - 10^{-14}$	m ²
Transport and dissolution properties		
Density of CO ₂ ρ_g	1.98	kg/m ³
Viscosity of CO ₂ μ_g	1.37×10^{-5}	Pa.s
Viscosity of liquid μ_l	10^{-3}	Pa.s
Water saturation S_l	100	%
Fick's coefficient F_{vp}	10^{-9}	m ² /s
Fick's coefficient F_{ad}	10^{-11}	m ² /s
Henry's constant K_H	3162	Pa.m ³ mol ⁻¹

We performed different kinds of calculations to investigate the influence of some parameters: Biot's coefficient, drained Young and Bulk moduli E_0 and K_0 , Langmuir's parameters ε_L and β_L , value of the initial water pressure influence. These calculations are summarized in Table 2. We also tested the injection of CO₂ in the rock mass with two injection wells. Only water-saturated case, in which CO₂ dissolution in interstitial water is taken into account, will be considered for this simulation.

Table 2. Different kinds of simulations for the parametric study.

Study 1 Influence of Biot's Coefficient b	$b = 0.5$; $b = 0.67$ and $b = 1$
Study 2 Influence of Langmuir parameter ε_L	$\varepsilon_L = 0.0128$ (Palmer and Mansoori 1998) $\varepsilon_L = 0.015$ (Connell et al. 2010b) $\varepsilon_L = 0.023$ (Wu et al. 2010a)
Study 3 Influence of Langmuir parameter β_L	$\beta_L = 0.0862$ MPa ⁻¹ (Connell et al. 2010b) $\beta_L = 0.164$ MPa ⁻¹ (Wu et al. 2010a) $\beta_L = 0.232$ MPa ⁻¹ (Palmer and Mansoori 1998) $\beta_L = 4.4$ MPa ⁻¹ (LCME)
Study 4 Influence of initial liquid pressure P_l	$P_l = 0.1$ MPa; $P_l = 1$ MPa and $P_l = 3$ MPa $P_l = 0$ (i.e. dry case)
Study 5 Influence of drained Young E_0 and Bulk K_0 moduli	$E_0 = 750$ MPa; $E_0 = 1500$ MPa and $E_0 = 9750$ MPa

4. Results

4.1. General results and effects of CO₂ dissolution in water

To study the effects of CO₂ dissolution in water, we performed two kinds of calculation - one *with* CO₂ dissolution in water and a second without. In both cases, the same parameters for coal (Table 1) were used (Henry's constant K_H is obviously not used in the case without CO₂ dissolution in water). For these simulations, we considered that the Biot's coefficient b was equal to 1 while the Langmuir's parameters ε_L and β_L were equal to 0.023 and 4.4 MPa⁻¹, respectively. The initial water pressure P_l was 0.1 MPa. Figure 3 shows the propagation of gas pressure from the injection well to the rock mass with Langmuir's isotherm (c, d) and without Langmuir's isotherm (a, b) and for different simulation times. Figures 3a and 3c were obtained by taking into account CO₂ dissolution in water whereas Figures 3b and 3d were obtained without CO₂ dissolution in water. A large difference in the progression of gas pressure with/without CO₂ dissolution in water is observed; in fact the progression is ten times larger without CO₂ dissolution in water.

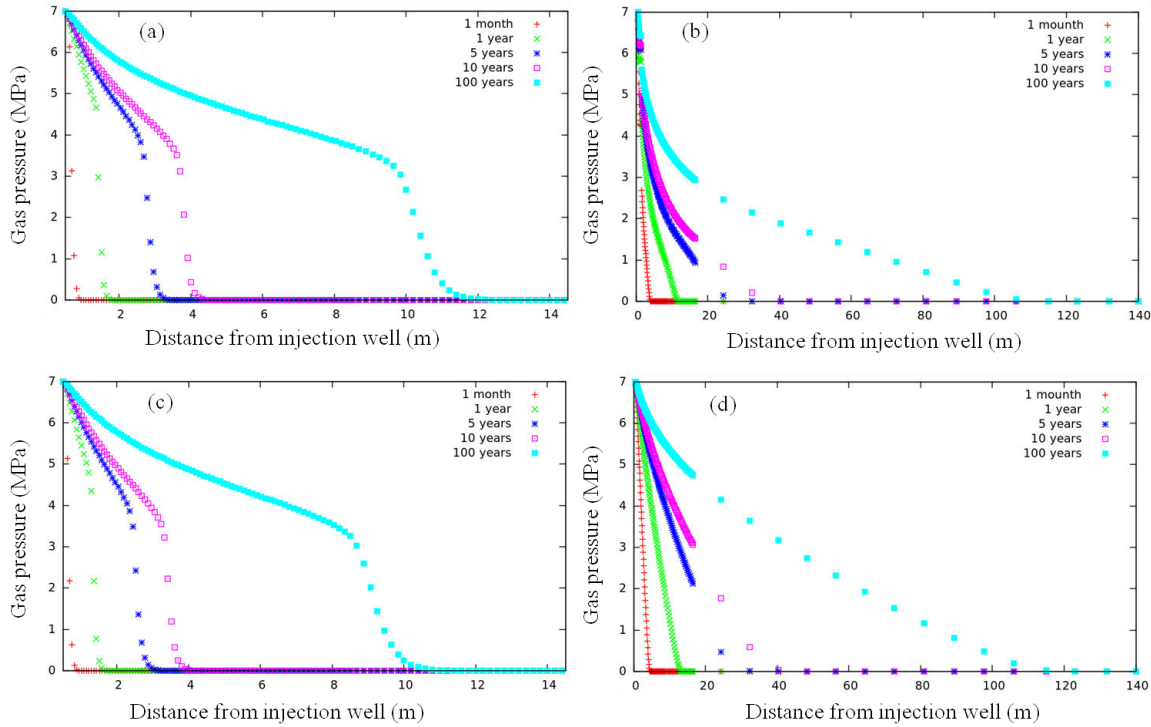


Figure 3. CO₂ pressure propagation in the rock mass: (a, c) with CO₂ dissolution, (b, d) without CO₂ dissolution, (a, b) without Langmuir's isotherm, (c, d) with Langmuir's isotherm.

Figures 4 and 5 show the variations of the porosity and permeability ratio (k/k_0), respectively, without Langmuir's isotherm (a, b) and with Langmuir's isotherm (c, d); with CO₂ dissolution in water (a, c) and without CO₂ dissolution (b, d). These Figures show a decrease in porosity/permeability with the use of Langmuir's isotherm and an increase in porosity/permeability without Langmuir's isotherm, with/without CO₂ dissolution in water.

Figure 6 represents the variations of the radial displacement without Langmuir's isotherm (a, b) and with Langmuir's isotherm (c, d); with CO₂ dissolution in water (a, c) and without CO₂

dissolution (b, d). Displacements were much more significant (~ twenty times greater) when CO₂ dissolution in water was not taken into account and with Langmuir's isotherm.

With initial total isotropic stresses of -20 MPa, Figure 7 shows the variations of effective radial stress without Langmuir's isotherm (a, b) and with Langmuir's isotherm (c, d). Figures 7a and 7c were obtained by taking into account CO₂ dissolution in water whereas Figures 7b and 7d were obtained without CO₂ dissolution in water. An increase in effective radial stress can be observed from injection well.

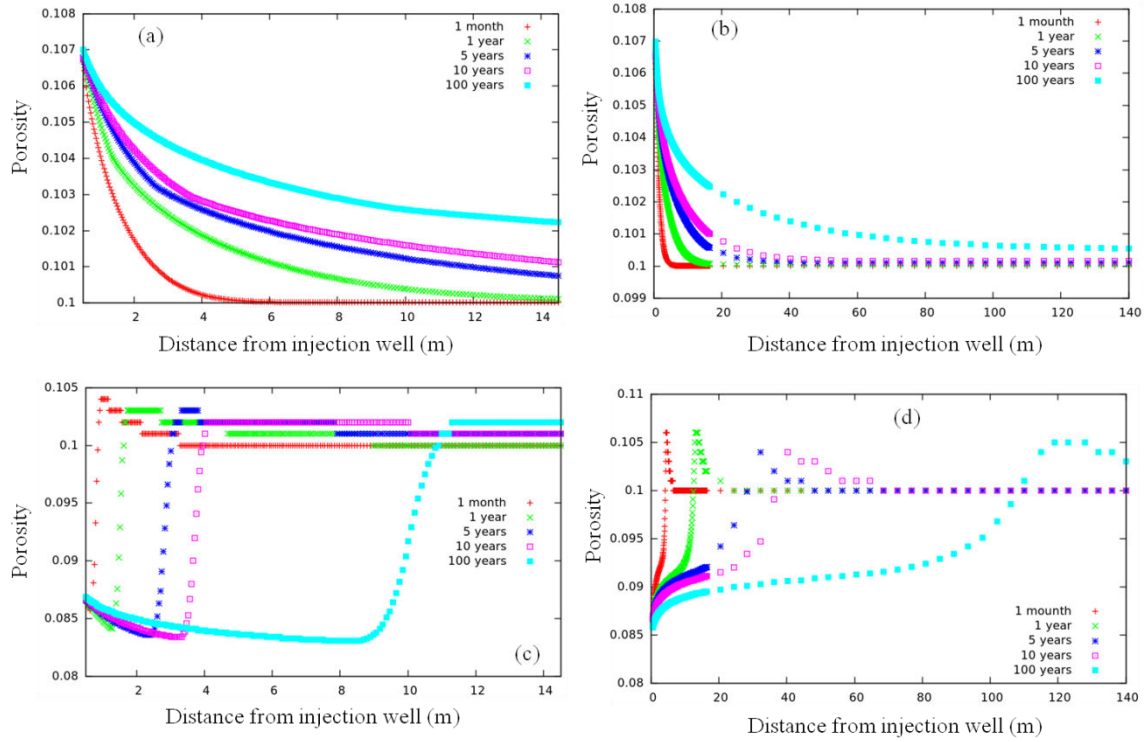


Figure 4. Evolution of the porosity ϕ in the rock mass: (a, c) with CO₂ dissolution, (b, d) without CO₂ dissolution, (a, b) without Langmuir's isotherm, (c, d) with Langmuir's isotherm.

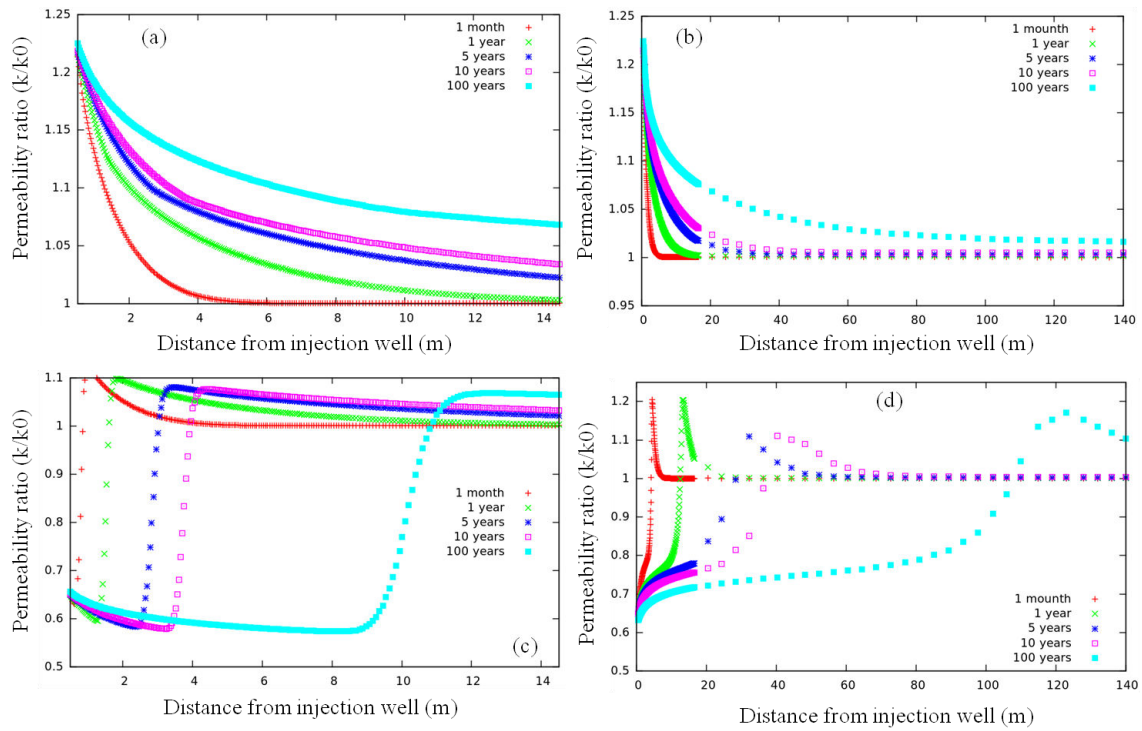


Figure 5. Evolution of the permeability ratio k/k_0 : (a, c) with CO_2 dissolution, (b, d) without CO_2 dissolution, (a, b) without Langmuir's isotherm, (c, d) with Langmuir's isotherm.

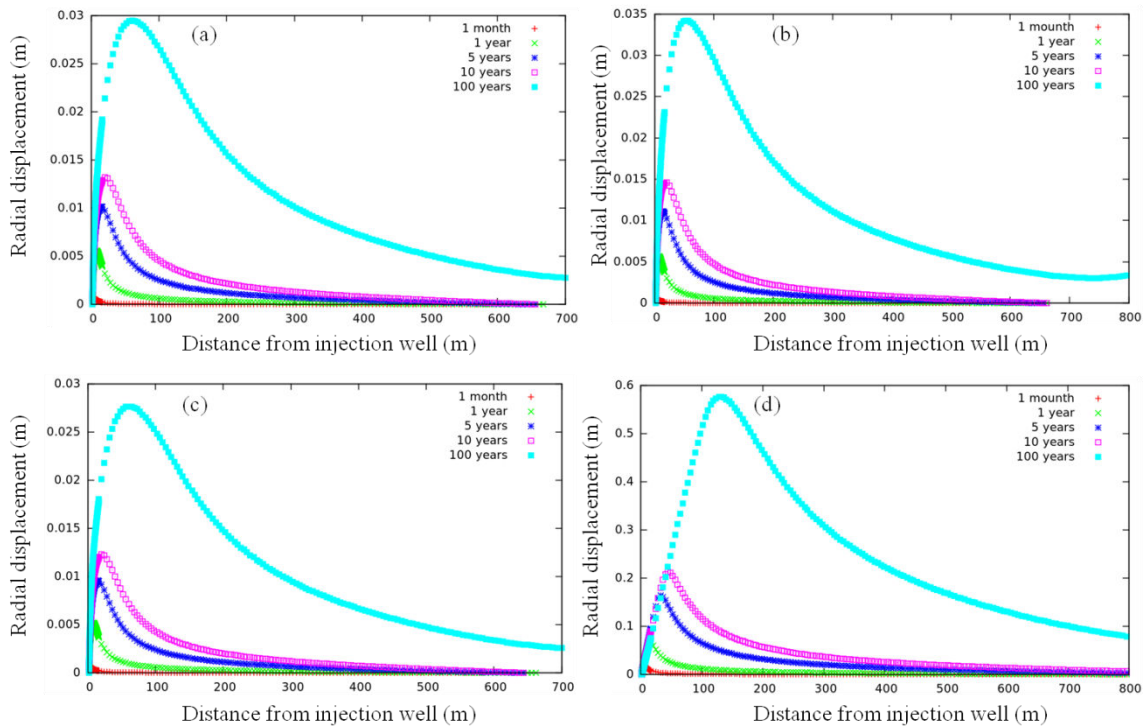


Figure 6. Evolution of the radial displacement: (a, c) with CO_2 dissolution, (b, d) without CO_2 dissolution, (a, b) without Langmuir's isotherm, (c, d) with Langmuir's isotherm.

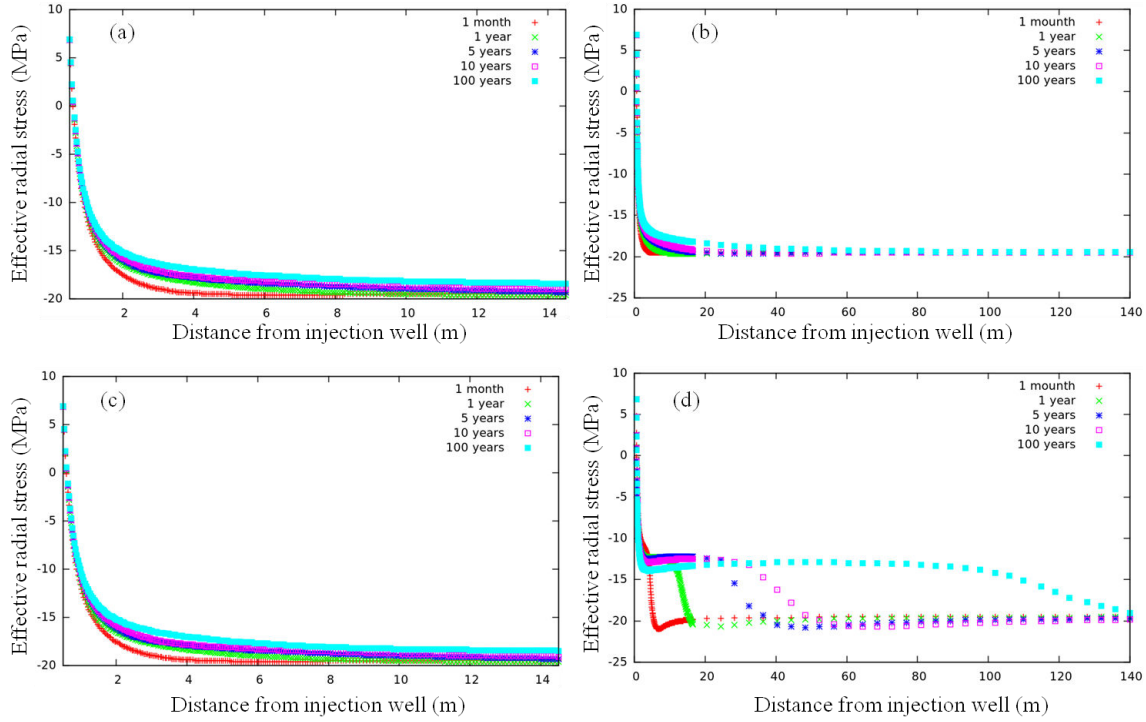


Figure 7. Evolution of the effective radial stress: (a, c) with CO₂ dissolution, (b, d) without CO₂ dissolution, (a, b) without Langmuir's isotherm, (c, d) with Langmuir's isotherm.

4.2. Influence of Biot's coefficient b : water-saturated case

To investigate the influence of Biot's coefficient, we tested the three values mentioned in Table 2: $b = 0.5$; $b = 0.67$ and $b = 1$. These values mean that the ratios of drained incompressibility modulus K_0 and incompressibility modulus of the solid matrix K_s (K_0/K_s) were 1/2; 1/3 and 0 (i.e., $K_s \rightarrow \infty$), respectively (Eq. 7). For these simulations, we used the following values for Langmuir's parameters: $\varepsilon_L = 0.023$ and $\beta_L = 4.4 \text{ MPa}^{-1}$. The initial water pressure in coal was 0.1 MPa. All Figures in this comparison take into account CO₂ dissolution in water. Figure 8 shows the propagation of gas pressure from the injection well to the rock mass (a, c) and the variations of radial displacement (b, d), for different values of Biot's coefficient b and for a simulation time t of 100 years. Figures 8a and 8b were obtained without Langmuir's isotherm whereas Figures 8c and 8d were obtained by taking into account Langmuir's isotherm. When Langmuir's isotherm was taken into account, the propagation of CO₂ pressure into the rock mass was found to be slightly larger for small values of Biot's coefficient. When Langmuir's isotherm was not taken into account, the value of Biot's coefficient did not influence the propagation of CO₂ pressure. In all cases (with/without Langmuir's isotherm), the displacement increases with the value of the Biot's coefficient.

Figure 9 shows the variations of the porosity ϕ (a, c) and permeability ratio k/k_0 (b, d) with the distance from the injection well and for different values of Biot's coefficient b and for a simulation time t of 100 years. Figures 9a and 9b were obtained without Langmuir's isotherm; Figures 9c and 9d with Langmuir's isotherm. These Figures show a decrease in porosity/permeability with the use of Langmuir's isotherm and an increase in porosity/permeability without Langmuir's isotherm. It should be recalled at this point that the initial value of porosity of coal ϕ_0 is 0.1 (Table 1). The value of Biot's coefficient also influences the porosity/permeability evolution. Indeed, porosity and permeability increase even more with the value of Biot's coefficient when Langmuir's isotherm is not taken into

account, whereas the porosity and permeability decrease even more with the value of Biot's coefficient when Langmuir's isotherm is taken into account.

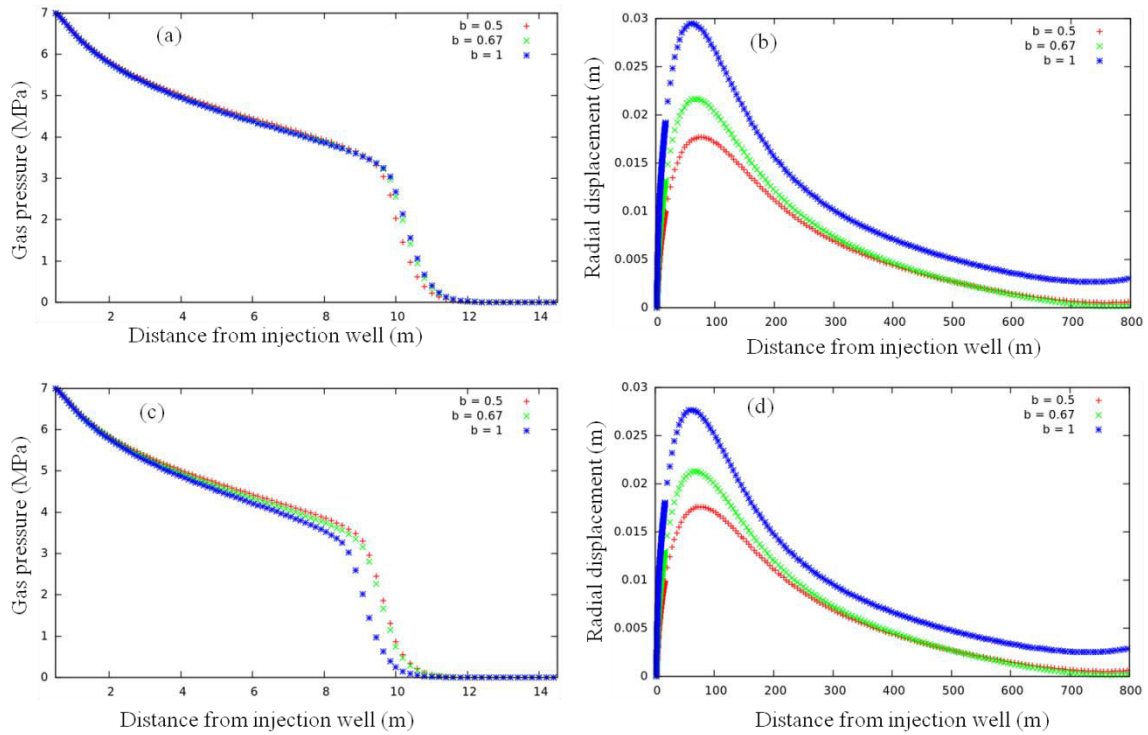


Figure 8. Influence of Biot's coefficient b on CO_2 pressure propagation (a, c) and on the radial displacement (b, d): (a, b) without Langmuir's isotherm, (c, d) with Langmuir's isotherm ($t = 100$ years).

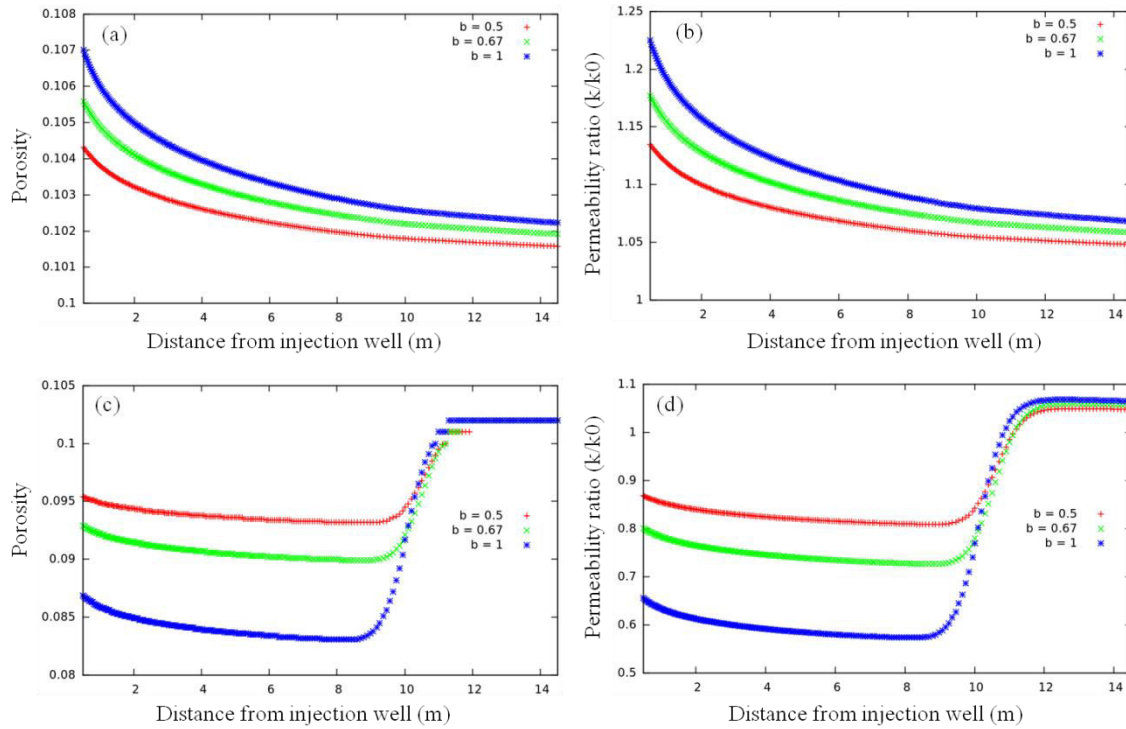


Figure 9. Influence of Biot's coefficient b on the porosity ϕ (a, c) and on the permeability ratio k/k_0 (b, d): (a, b) without Langmuir's isotherm, (c, d) with Langmuir's isotherm ($t = 100$ years).

4.3. Influence of the Langmuir's parameters ε_L and β_L

To study the influence of the parameter ε_L , the value of β_L was fixed at 4.4 MPa^{-1} and the Biot coefficient was fixed at 1. The initial water pressure is the same as previously (0.1 MPa). Figure 10 shows the influence of this parameter on the gas pressure propagation (a), radial displacement (b), porosity evolution (c) and permeability ratio (d) for a simulation time of 100 years. CO_2 pressure propagates more easily for lower values of ε_L . In addition, the radial displacement increases with smaller value of ε_L . This Figure shows a significant decrease in porosity/permeability for high values of ε_L .

To investigate the influence of β_L , we fixed the value of ε_L at 0.023; Biot's coefficient was still equal to 1 and the initial water pressure equal to 0.1 MPa. The dissolution of CO_2 in water was also taken into account in this case. Figure 11 shows the gas pressure propagation (a), the radial displacement (b), the evolution of the porosity (c) and the permeability ratio (d) for different values of β_L and at a simulation time of 100 years. β_L has the same effect than ε_L : CO_2 pressure was found to propagate more easily and radial displacement to increase for lower values. For high values of β_L we observed significant decrease in porosity and permeability.

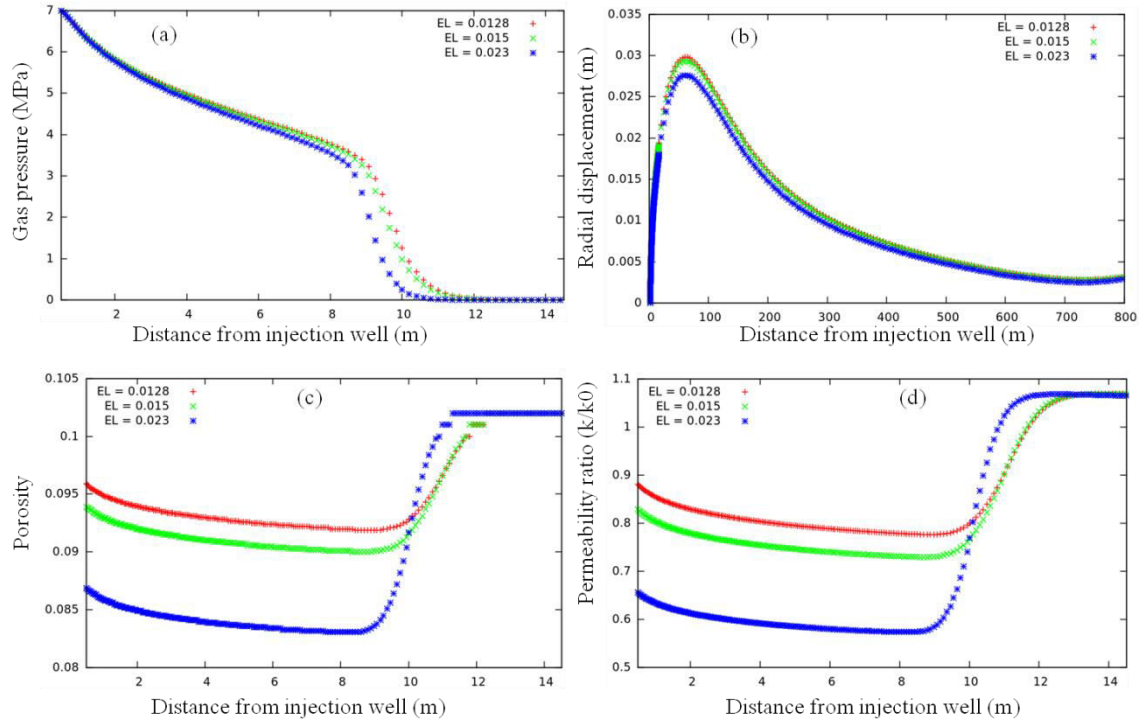


Figure 10. Influence of the Langmuir's parameter ε_L noted EL in the figure ($t = 100$ years): on the gas pressure propagation (a), on the radial displacement (b), on the porosity ϕ (c) and on the permeability ratio k/k_0 (d).

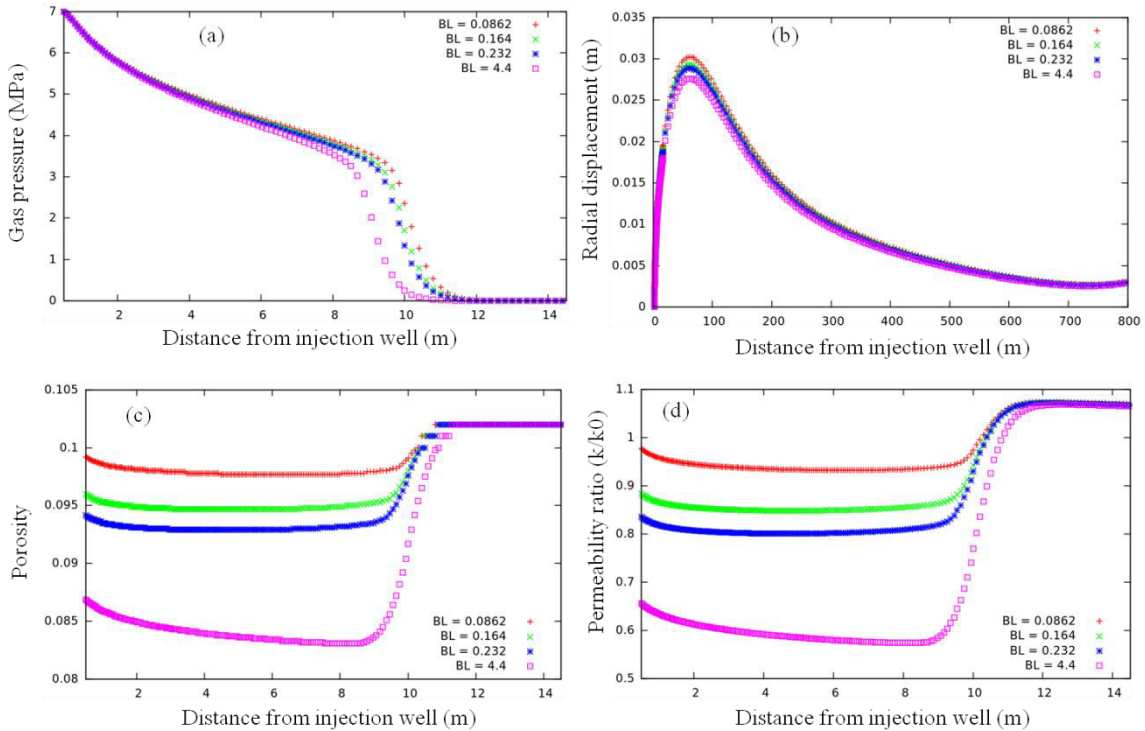


Figure 11. Influence of Langmuir's parameter β_L (in MPa^{-1}) noted BL in the figure ($t = 100$ years): on the gas pressure propagation (a), on the radial displacement (b), on the porosity ϕ (c) and on the permeability ratio k/k_0 (d).

4.4. Influence of the initial pressure of liquid P_l : water-saturated and dry cases

In this section, the influence of the initial (i.e., before CO_2 injection) pressure of interstitial water was analyzed. For the saturated case, we considered different values of initial liquid pressure: 0.1 MPa, 1 MPa and 3 MPa. Biot's coefficient was equal to 1 and the values of Langmuir's parameters ε_L and β_L were respectively 0.023 and 4.4 MPa^{-1} . Figure 12 shows the propagation of the gas pressure (a), the variations of the radial displacement (b), the evolution of porosity (c) and the permeability ratio (d) for a simulation time of 100 years. In these simulations, we took into account CO_2 dissolution in water and Langmuir's isotherm. We found that high values of initial pressure of interstitial water prevent the propagation of gas pressure and therefore the decrease in porosity/permeability. In the case where there was no CO_2 dissolution in water, the same modeling with the same values of initial pressure of interstitial water (0.1 MPa, 1 MPa and 3 MPa) was carried out but no effect was observed for the different values of initial pressure of interstitial water (neither on gas pressure progression, neither on petrophysical properties).

In Figure 13, we present the variations of porosity (a, c) and permeability ratio (b, d) in the dry case (i.e., $P_l = 0$) with initial intrinsic (gas) permeability of 10^{-18} m^2 . So obviously we cannot talk about CO_2 dissolution in water in this case. Figures 13a and 13b were obtained without Langmuir's isotherm whereas Figures 13c and 13d were obtained by taking Langmuir's isotherm into account. One can note that these variations are practically the same as in the water-saturated case without CO_2 dissolution (Figures 4b and 4d for porosity, Figures 5b and 5d for permeability ratio) except some perturbations in this saturated which may be due to the presence of the water.

In the dry case we tested the effect of initial intrinsic (gas) permeability. For this we took two values of permeability: one was equal to 10^{-18} m^2 (used previously for the Figure 13) and other to 10^{-14} m^2 (all with the Langmuir's adsorption isotherm). Figure 14 shows the porosity variation ($\phi - \phi_0$) in the rock mass for a simulation time of 100 years. Figure 14a was obtained with an initial gas permeability of 10^{-18} m^2 and Figure 14b with an initial gas permeability of 10^{-14} m^2 . A negative difference of porosity was observed in both cases but the decrease in porosity was found to be much more significant for $k_0 = 10^{-14} \text{ m}^2$.

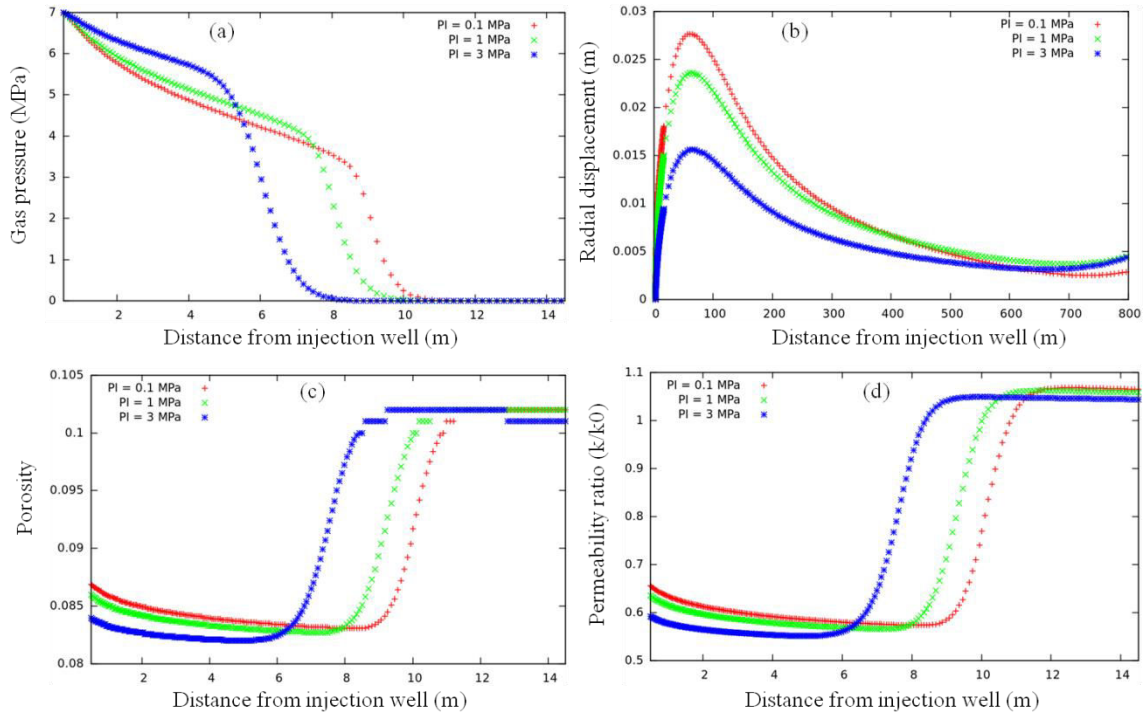


Figure 12. Influence of the initial pressure of liquid P_l ($t = 100$ years): on the gas pressure propagation (a), on the radial displacement (b), on the porosity ϕ (c) and on the permeability ratio k/k_0 (d).

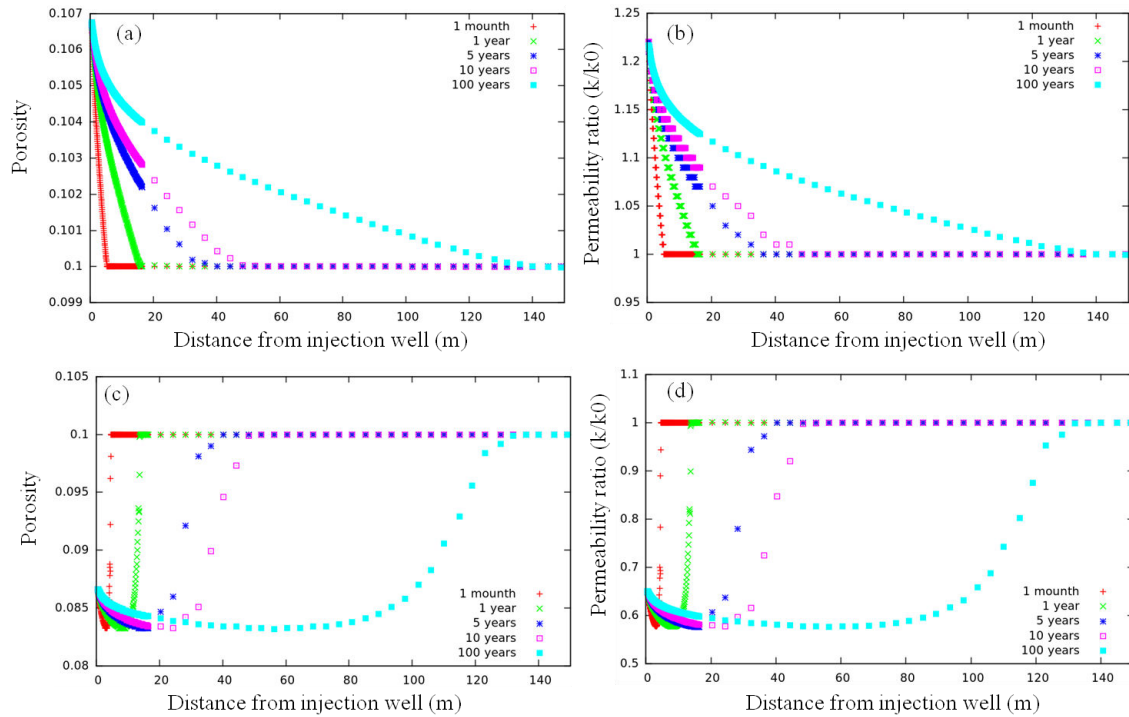


Figure 13. Evolution of porosity ϕ (a, c) and permeability ratio k/k_0 (b, d): (a, b) without Langmuir's isotherm, (c, d) with Langmuir's isotherm (dry case).

4.5. Influence of the drained Young's modulus E_0

Here we tested different values of E_0 (the Poisson's ratio was fixed at 0.25 and the Biot's coefficient was equal to 1): 9750 MPa, 1500 MPa, and 750 MPa which correspond, according to Eq. (3) to $K_0 = 6500$ MPa, 1000 MPa and 500 MPa, respectively. For these calculations, we took the Langmuir's isotherm ($\varepsilon_L = 0.023$; $\beta_L = 4.4 \text{ MPa}^{-1}$) and CO₂ dissolution in water ($P_l = 0.1 \text{ MPa}$) into account. Figure 15 represents the gas pressure propagation (a, c) and the radial displacement (b, d) for different values of E_0 for a simulation time t of 100 years. Figures 15a and 15b were obtained without Langmuir's isotherm and Figures 15c and 15d with Langmuir's isotherm. Gas pressure with smaller values of E_0 (compared to larger values) was slightly in advance in terms of distance from injection well. We also noted more radial displacement with smaller values of E_0 (with or without Langmuir's isotherm). Figure 16 shows the variations of the porosity (a, c) and the permeability ratio (b, d), Figures 16a and 16b were obtained without Langmuir's isotherm and Figures 16c and 16d with Langmuir's isotherm. The increase in porosity/permeability (without Langmuir's isotherm) was very low and the decrease in porosity/permeability was more significant with high values of Young's modulus. The simulation time was 100 years for all figures.

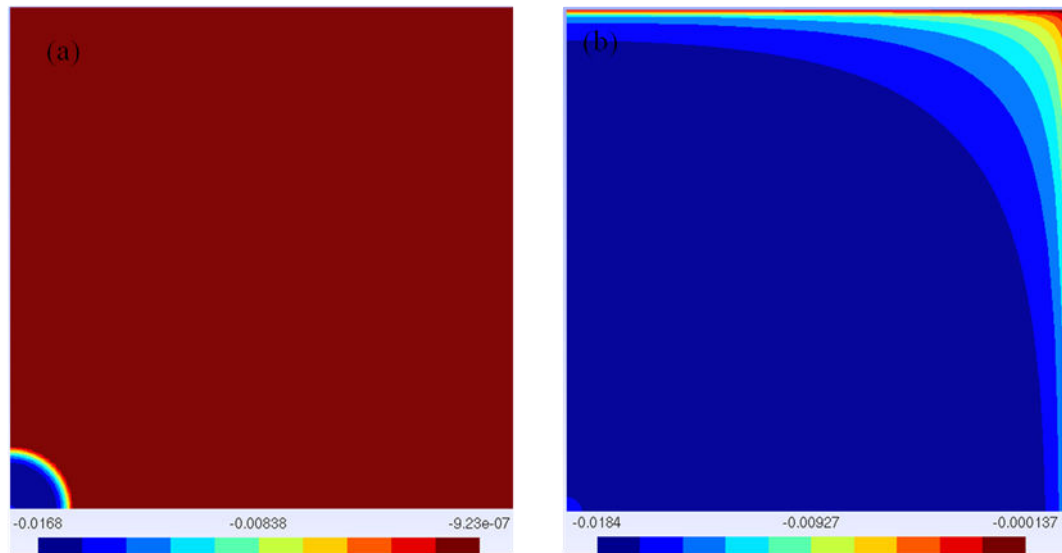


Figure 14. Difference of porosity ($\phi - \phi_0$) in rock mass ($t = 100$ years): (a) $k_0 = 10^{-18} \text{ m}^2$ and (b) $k_0 = 10^{-14} \text{ m}^2$ (dry case, i.e. $P_l = 0$).

4.6. Model with two injection wells

In a perspective of the modelling of CO₂ injection with enhanced coal bed methane recovery, we tested in this section the injection of CO₂ in a rock mass with two injection wells. For this, we considered a rock mass size 300 m×200 m with two wells and a depth of 1,000 m. Each well radius is 0.5 m. The centers of the wells have the following coordinates: ($x = 100 \text{ m}$, $y = 100 \text{ m}$) and ($x = 200 \text{ m}$, $y = 100 \text{ m}$). The mesh of the model has 4,680 elements of quadrangle type with 8 nodes (quadratic interpolation), for a total of 14,363 nodes. As for the case with one injection well, the grid sizes are smaller near the wellbores and larger near the boundaries. We considered here only water-saturated porous medium with the same initial conditions (initial pressure of water 0.1 MPa, total isotropic stresses -20 MPa) and calculations phases used in §3.3. The only difference here is that there is no symmetry axis. So pressures and displacements are fixed on the four sides of the rock mass.

We take into account both Langmuir's isotherm and CO₂ dissolution in interstitial water. The intrinsic permeability is set to 10^{-16} m², Biot's coefficient is equal to 1, the Langmuir parameters ε_L and β_L are equal to 0.023 and 4.4 MPa⁻¹ respectively. The other values of model parameters are the same as mentioned in Table 1. For the CO₂ injection, we imposed at the walls of the two injection wells the same CO₂ pressure ($P_{CO_2} = 7$ MPa).

We present in Figure 17 the isovalues of gas pressure propagation in the rock mass from the two injection wells with time (1 year in a), 5 year in b) 10 years in c) and 100 years in d)). One can observe how this gas pressure propagates from the two injection wells in the rock mass and how the two gas plumes meet with time. We present also in Figure 18 the isovalues of the porosity variation ($\phi - \phi_0$).

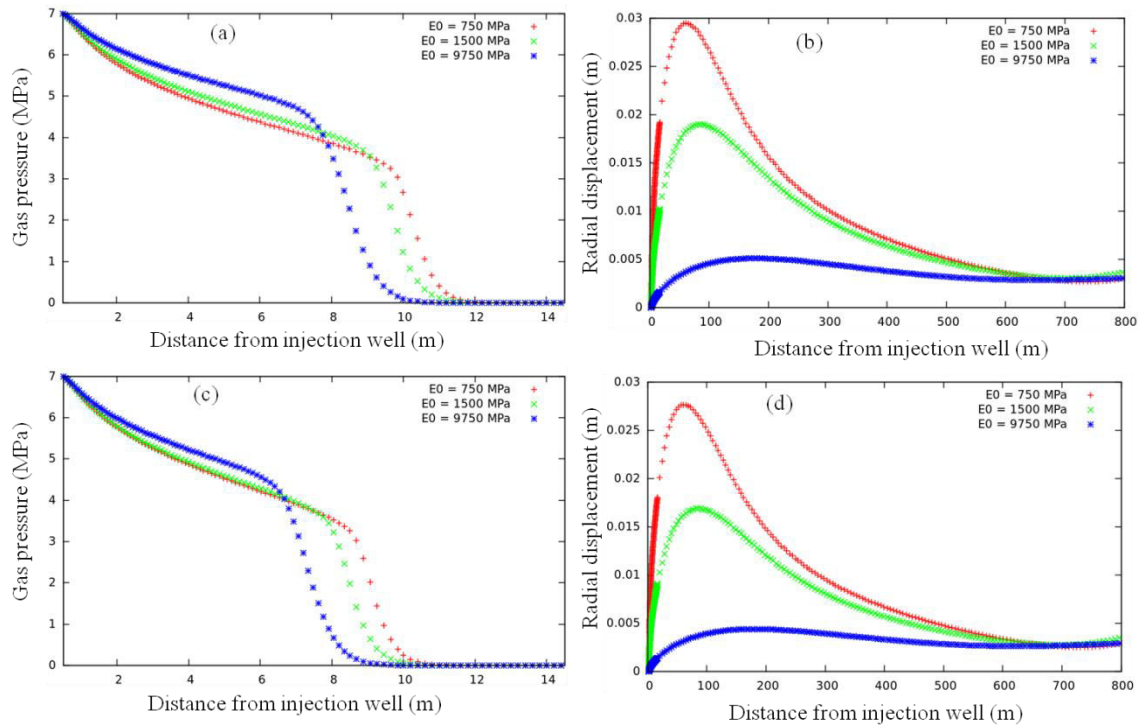


Figure 15. Influence of drained Young modulus E_0 on CO₂ pressure propagation (a, c) and on the radial displacement (b, d): (a, b) without Langmuir's isotherm, (c, d) with Langmuir's isotherm ($t = 100$ years).

5. Discussion

5.1. General observations and effects of CO₂ dissolution in water

When sorption phenomenon is taken into account with Langmuir's isotherm (Eq. 12), the decrease in porosity (Figs. 4c, 4d, 9c, 10c, 11c, 12c, 13c, 16c) observed with the increase in gas pressure (Figs. 3c, 3d, 8c, 10a, 11a, 12a, 15c) is due to the swelling of the rock matrix. From a physical point of view, this swelling reduces the spacing between the matrix blocks (pore closure) and therefore induces a decrease in porosity and permeability of coal during CO₂ injection. This phenomenon is known as the "Physico-Chemical mechanism of matrix swelling and reduction of porosity associated". Note that the swelling increases with high gas pressure. Indeed, the number of occupied sorption sites is higher at higher pressure [51-54]. Then, the decrease in permeability (Figs. 5c, 5d, 9d, 10d, 12d, 13d, 16d) due to the decrease

of porosity (Eq. 18) in turn impacts the propagation of gas pressure. This slows down the propagation in the rock mass over time. When Langmuir's isotherm is not taken into account, an increase in porosity (Figs. 4a, 4b, 9a, 13a, 16a) is observed, compared to the case with Langmuir's isotherm. This increase is due to hydro-mechanical coupling (i.e., increase in pore pressure) which is represented through the effective stress concept (Eqs. 1-8). According to Eq. (27), in the case where Biot's coefficient is equal to 1 and without Langmuir's adsorption isotherm, only the term $-(\varepsilon_v^+ - \varepsilon_v^-)$ in the exponential function is not equal to zero ($K_s \rightarrow \infty$ and isothermal conditions). Otherwise the porosity would remain constant and this is not the case (Figs. 4a, 9a, 13a). This term is the strain due to the effective stress variations (calculated in our case with Code_Aster via displacement). Figure 7 shows these variations of effective stress due to the gas pressure presence in the rock mass. The increase observed in Figure 7 from the injection well induces the deformation of coal. Mitra et al. [55] observed from their experiments that decrease in methane pore pressure causes significant reduction in horizontal stress. Following on from this idea, an increase in pore pressure will increase effective stresses. Pan and Connell [31] have effectively discussed the idea that permeability of coal behaves in the same way as other fractured reservoirs with effective stress. It would decrease exponentially with increasing effective stress. Coal permeability modeling must incorporate the effects of effective stress. These variations of effective stress are covered by our model. The increase in permeability in the case without Langmuir's isotherm (Figs. 5a, 5b, 9b, 13b, 16b) explains why gas pressure propagation reaches a distance slightly greater than in the case with Langmuir's isotherm (Fig. 3a, 3b, 8a, 15a).

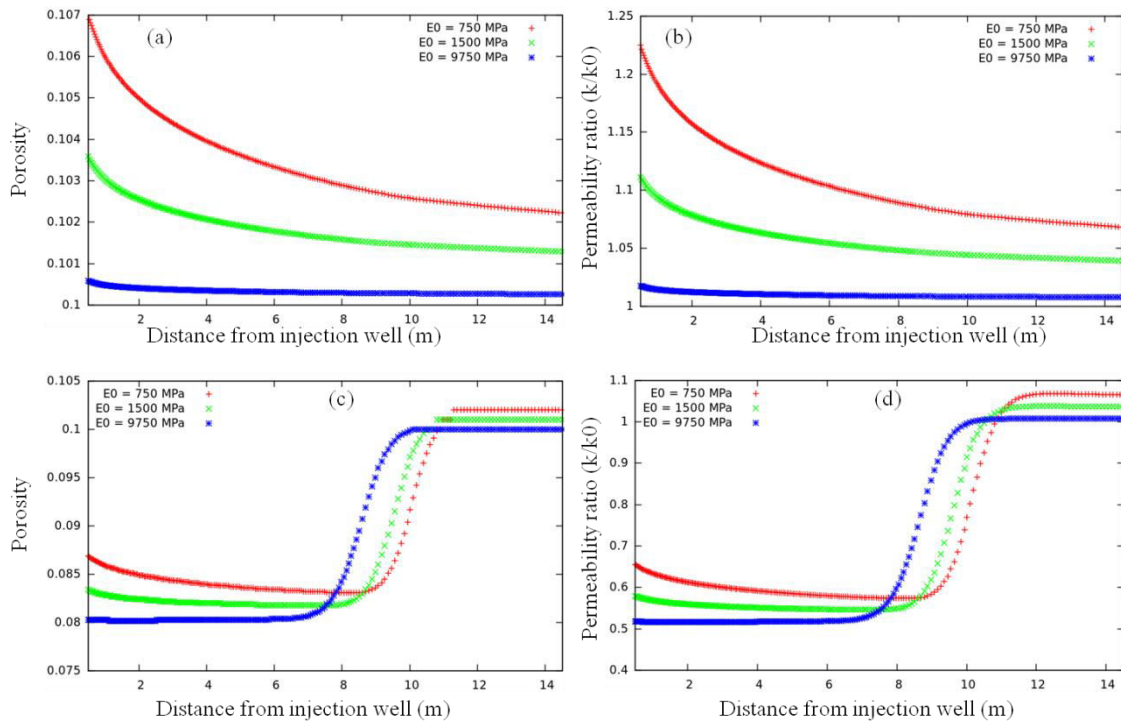


Figure 16. Influence of drained Young modulus E_0 on the porosity ϕ (a, c) and on the permeability ratio k/k_0 (b, d): (a, b) without Langmuir's isotherm, (c, d) with Langmuir's isotherm ($t = 100$ years).

CO₂ is sparsely soluble in water but the effects of its dissolution are not to be neglected. The effects of CO₂ dissolved in oil and water are the main reasons for any pressure decrease [56]. Figure 3 showed significant differences in gas pressure propagation when CO₂ dissolution in

water is taken into account or not. This is due to the fact that a part of this gas is dissolved in water according to Eq. (24). This dissolution thus reduces the “dry” CO₂ pressure in the rock mass and may explain the better propagation of gas pressure in the case without CO₂ dissolution in water. The radial displacement observed in Figure 6 shows its dependence on gas pressure and the swelling of rock matrix. A high level of displacement was observed in the case with Langmuir's isotherm (in which swelling is observed) and without CO₂ dissolution in water (in which gas pressure reaches a significant distance) (Fig. 6d). This means that taking into account of CO₂ dissolution in water will limit displacements of rock. Therefore, adequate modeling of CO₂ injection in water-saturated coal needs to take the dissolution of CO₂ in the pore water into account.

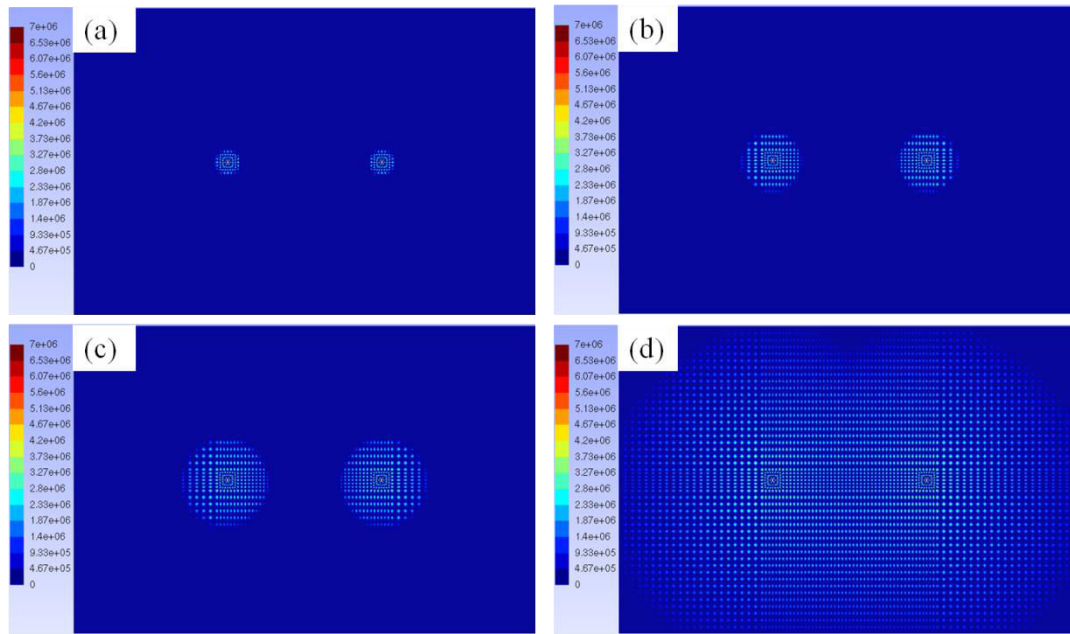


Figure 17. Isovalues of gas pressure propagation (in Pa) from the two injection wells in rock mass: (a) for 1 year, (b) for 5 years, (c) for 10 years and (d) for 100 years.

5.2. Influence of hydro-mechanical properties of coal (Biot's coefficient, bulk modulus)

Biot's coefficient b is a parameter related to the effective stress concept and its value is comprised between 0 and 1 (Eq. 7). It measures the effect of pore pressure on the deformation of rocks such as coal. When $b = 1$, the solid skeleton (i.e., rock matrix) can be considered incompressible (i.e. $K_s \rightarrow \infty$) and therefore no mechanical deformation of the rock matrix due to the gas pressure is expected. In the case without Langmuir's isotherm, the increase in porosity/permeability (Figs. 9a, 9b) due to the hydro-mechanical coupling is larger for higher values of b . This is due to the relationship between this coefficient and the pore pressure (Eqs. 2-8). In the case with Langmuir's isotherm, matrix swelling increases and porosity/permeability decreases with the Biot's coefficient (Figs. 9c, 9d), as illustrated by Eqs. (15-17). The effect of Biot's coefficient on the propagation of gas pressure in the rock mass (Fig. 8a, 8c) can be explained by its effects on porosity and permeability. Wu et al. [13] (2010a), obtained the same results concerning the effect of Biot's coefficient with and without sorption by varying the ratio of coal bulk modulus K and grain modulus K_s (K/K_s). These authors did their study on coal saturated by gas. The radial displacement (Figs. 8b, 8d) depends on both the rock matrix deformation and porosity variations which evolve as a

function of pore pressure (Figs. 8a, 8c) according to Eqs. (8) and (17). This explains why radial displacement is systemically higher for larger values of the Biot's coefficient.

The value of b equal to unity was taken in most previous permeability modeling. Biot's coefficient is near unity as indicated in Zhao et al. [57] for well fractured coal and discussed in Mitra et al. [55]. Palmer [25] underlined that coal is a friable rock with a high compressibility of grains and suggested that considering $b = 1$ is no longer valid. Pan and Connell [31] also noted that taking $b = 1$ leads to an overestimation of the effective stress variation and thus an overestimation of the change to permeability. Pan and Connell [31] also found that measurements of the solid matrix modulus and bulk modulus for a Bowen Basin and a Hunter Valley coal sample showed that Biot's coefficient ranges from 0.8 and 0.87, respectively [58]. So, we tested the impact of different values of the Biot's coefficient b in §4.2 but used $b = 1$ for the rest of our simulations (i.e., incompressible matrix: $K_s \rightarrow \infty$). Obviously, for good in-situ modeling (i.e., at the scale of an injection site), knowledge (e.g., large-scale measurement) of Biot's coefficient is required.

Figure 15 and Figure 16 show that the value of the Young's/bulk modulus has a great influence on the results. Radial displacement is obviously larger for smaller values of E_0 (Figs. 15b, 15d). In addition, according to Eqs. (17-18), the positive effect of hydro-mechanical coupling on CO_2 injectivity (i.e., increase in porosity/permeability) is more significant with high values of Young's/bulk modulus when Langmuir's isotherm is not taken into account (Figs. 16a, 16b). In the case with Langmuir's isotherm, the high positive effect of hydro-mechanical coupling (for smaller value of E_0/K_0) reduces the decrease in porosity/permeability due to the adsorption process. These influences are shown in Figs. 16c and 16d. Low values of Young's/bulk modulus increase thus the positive effect of hydro-mechanical coupling, thus inhibiting the negative effect (i.e., decrease in porosity/permeability) of the Langmuir's adsorption isotherm.

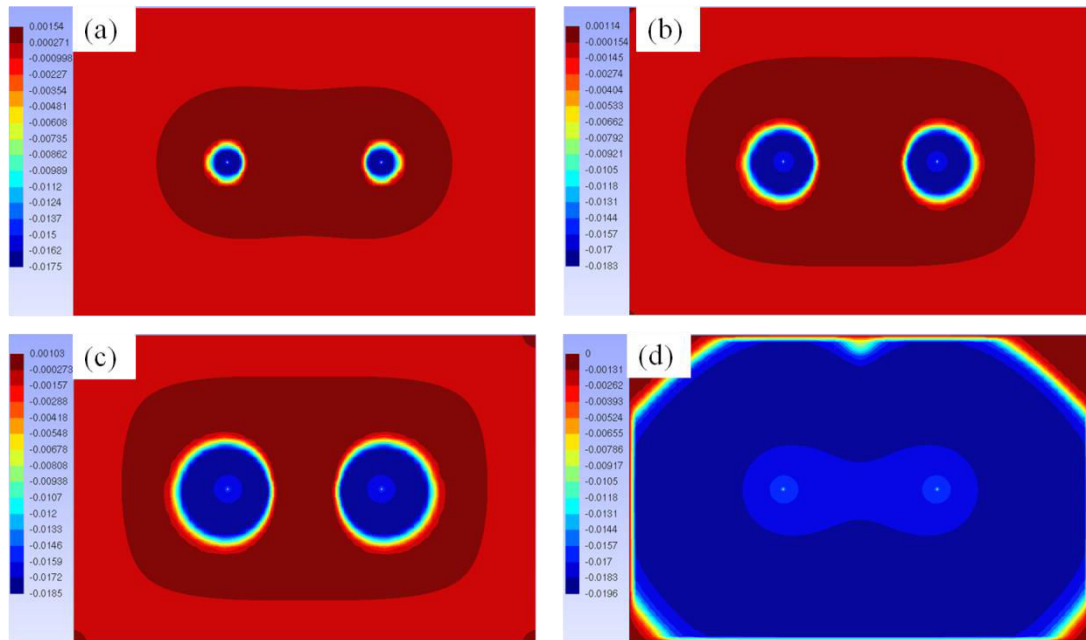


Figure 18. Isovalues of the porosity variation ($\phi - \phi_0$) in rock mass: (a) for 1 year, (b) for 5 years, (c) for 10 years and (d) for 100 years.

5.3. Effects of Langmuir's isotherm parameters and initial water pressure in coal

The parameters of Langmuir's isotherm (ε_L and β_L), which are related to the sorption mechanism, influence the response of the rock mass to the CO_2 injection. Adsorption increases with the value of these parameters (Eq. 16). The swelling of the coal matrix therefore becomes increasingly significant, thus decreasing more and more porosity and permeability (Figs. 10c, 10d, 11c, and 11d) according to Eqs. (17-18). This therefore affects gas pressure propagation in the rock mass and thus the radial displacement (Figs. 10a, 10b, 11a, and 11b). Although Langmuir's isotherm is used by most authors in their modeling (ex. [13, 15, 19, 43]), the impact of its parameters during injection and/or extraction is not well known. Our study therefore explains the role played by these parameters during CO_2 injection in coal. The best knowledge of these parameters is thus necessary for any modeling taking into account the sorption/desorption phenomenon (which is moreover the main mechanism of production or sequestration of gas in coal matrix [10, 13]), and particularly for in-situ modeling.

The observations made from Figure 12a show that the presence of a high initial pressure of liquid (water-saturated case) in the rock mass slows down the propagation of the CO_2 injected at high pressure. This is due to the competition between these two pressures. As petrophysical properties (porosity, permeability) are functions of gas pressure, they are thus affected (Fig. 12c, 12d) as is radial displacement (Fig. 12b). The radial displacement decreases as the initial pressure of water increases.

In the case of CO_2 injection in dry coal, there is obviously no more pressure competition and dissolution effects. The gas pressure will thus propagate faster than in the water-saturated case and reach a greater distance. This large distance reached by the gas pressure thus has a great impact on porosity and permeability increase/decrease, respectively without/with Langmuir's adsorption isotherm (Figure 13). In this dry case, if initial gas permeability is high, the propagation of gas pressure is obviously faster. This can be seen in Figure 14 for two different values of initial permeability (10^{-18} m^2 and 10^{-14} m^2). In this Figure, the blue color signifies a part of coal where the decrease in porosity was high as was gas pressure. The negative difference of porosity indicates here the decrease of initial porosity due to gas pressure and Langmuir's adsorption isotherm. This effectively shows the important effect of permeability during CO_2 injection in the rock mass.

Concerning the case with two injection wells, the observations made from Figure 17 show that for a given permeability, if we inject CO_2 simultaneously in both wells, the two gas plumes meet with the time. Decrease in the porosity of coal, due to the increase in gas pressure and swelling of coal matrix, follows the directions of propagation of gas pressure (Fig. 18). This simulation announces our interest for future modelling of the injection of CO_2 with CH_4 recovery.

6. Conclusions

In this work, we presented a theoretical model of Eulerian porosity which takes into account the adsorption phenomenon described by Langmuir's isotherm. This model was implemented in a finite element code for structural calculations (Code_Aster, EDF) and used with numerical simulations to investigate the influence of hydro-mechanical properties of coal (Biot's coefficient, bulk modulus), Langmuir's adsorption parameters and the initial liquid pressure in the rock mass on the response of coal to CO_2 injection. These numerical simulations allowed us to draw the following conclusions:

- (1) The swelling of the rock matrix due to the adsorption of CO₂ induces a decrease in porosity (pore closing) and therefore a decrease in permeability and is a function of gas pressure in the coal. High gas pressure induces higher decrease in porosity. In the case without sorption isotherm, an increase in porosity/permeability is observed and is due to the positive effect of hydro-mechanical coupling (pore opening due to the increase in gas pressure).
- (2) Biot's coefficient affects differently porosity and permeability. The decrease is increasingly significant with increasing values of Biot's coefficient when Langmuir's adsorption isotherm is taken into account. The increase is higher with increased values of Biot's coefficient when Langmuir's adsorption isotherm is not taken into account. This underlines the importance of the sorption phenomenon in coal rock matrix during injection.
- (3) The increase in Langmuir's sorption parameters promotes the decrease in porosity, and thus the decrease in intrinsic permeability, with gas pressure. Our study therefore shows the role played by these parameters during CO₂ injection in coal.
- (4) In presence of a strong initial liquid pressure in coal, the propagation of gas pressure is slowed down which impacts the evolution of petro-physical properties. High initial pressure of liquid limits particularly the displacement of rock during CO₂ injection. CO₂ dissolution in water also affects gas pressure propagation (thus petro-physical properties). Therefore, adequate modeling of CO₂ injection in water-saturated coal needs to take into account the dissolution of CO₂ in the pore water.
- (5) The value of the Young's/bulk modulus has a great influence on the results. Low values of Young's/bulk modulus increase the positive effect (i.e., increase in porosity/permeability) of hydro-mechanical coupling and thus inhibit the negative effect (i.e., decrease in porosity/permeability) due to the Langmuir's adsorption isotherm.

Like Wu et al.'s model [13], our model can therefore simulate the influence of the Biot's coefficient during CO₂ injection in coal despite relying on a different method. It can also be used to simulate the effect of mechanical parameters during injection. Although the Langmuir isotherm is used by most authors in their modeling, previously little was really known about the impact of its parameters on the response of coal to CO₂ injection. Our study explains the role played by these parameters during CO₂ injection in coal and in-depth knowledge of all the parameters studied here (Biot's coefficient, Langmuir's parameters, Young's/bulk modulus) is clearly necessary in particular for the in-situ modeling. In addition, our numerical simulations were performed within a fully coupled Thermo-Hydro-Mechanical analysis code for structures calculations which allows taking into account all the coupled Thermo-Hydro-Mechanical and Physicochemical (i.e., adsorption mechanism) phenomena implied in the CO₂ injection process in coal matrix, unlike other previous studies.

Acknowledgments

This work has been carried out through grants from the ANR program "CHARCO" (ANR-06-CO₂-001) and federating project "IMAGES" (University of Lorraine, FEDER). The authors express their gratitude to these organizations.

7. References

1. Arri LE, Yee D, Morgan WD, Jeansonne MW. Modelling Coalbed Methane Production with Binary Gas Sorption. *Casper, WY, SPE Paper No 24363. Proceedings of the Rocky Mountain Regional Meeting of the Society of Petroleum Engineers* 1992; PP 459–472.

2. Reznik AA, Singh PK, Foley WL. An analysis of the effect of CO₂ injection on the recovery of in-situ methane from bituminous coal: an experimental simulation. *Society of Petroleum Engineers Journal* 1984; 521–528.
3. Gunter William D, Mathew J Mavor, John R Robinson. CO₂ Storage and Enhanced Methane Production: Field Testing at Fenn-Big Valley, Alberta, Canada, with Application. In *Greenhouse Gas Control Technologies 7*, edited by E.S. Rubin, D.W. Keith, C.F. Gilboy, M. Wilson, T. Morris, D.W. Keith J. Gale and K. Thambimuthu K (eds.). Elsevier Science Ltd: Oxford, 2005; 413–421.
4. Jackson G. CO₂ Enhanced Methane and Reduced Water Production in High Permeability, Under-saturated Coal Seams - a Modeling Study. In: *Gale, J., Rokke, N., Zweigel, P., Swenson, H. (Eds.), Proceedings of Eighth International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies*. Elsevier Ltd, Oxford (CD-ROM), 2006.
5. Reeves S, Taillefert A, Pekot L, Clarkson C. The Allison Unit CO₂ — ECBM Pilot: a Reservoir MODELING Study. *Topical Report, U.S. Department of Energy* 2003; DE-FC26-ONT40924.
6. Reeves SR, Davis DA, Oudinot AY 2004. A Technical and Economic Sensitivity Study of Enhanced Coalbed Methane Recovery and Carbon Sequestration in Coal. *Topical Report, U.S. Department of Energy* 2004; DE-FC26-ONT40924.
7. Ross Hannah E, Paul Hagin, Mark D Zoback. CO₂ Storage and Enhanced Coalbed Methane Recovery: Reservoir Characterization and Fluid Flow Simulations of the Big George Coal, Powder River Basin, Wyoming, USA. *International Journal of Greenhouse Gas Control* 2009; 3 (6), pp. 773–786, doi:10.1016/j.ijggc.2009.06.002.
8. Van, Bergen F, Pagnier H, Krzystolik P. Field Experiment of CO₂ ECBM in the Upper Silesian Basin of Poland. *Proceedings of the 8th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies. IEA Greenhouse Gas Program, Cheltenham, UK* 2006.
9. Larsen JW, Flowers RA, Hall PJ. Structural Rearrangement of Strained Coals. *Energy Fuels* 1997; 11: 998–1002.
10. White CM, Smith DH, Jones KL, Goodman AL, Jikich SA, LaCount RB and al.. Sequestration of Carbon Dioxide in Coal with Enhanced Coalbed Methane Recovery– a Review. *Energy Fuels* 2005; 19 (3): pp. 659–724.
11. Yun Y, Suuberg EM. Physical Transition in Pittsburgh No. 8 Coal as Observed by Differential Scanning Calorimetry and Solvent Swelling. *Energy Fuels* 1992; 6: 328–30.
12. Richard D. West, Markevicius Gediminas, Malhotra Vivak M Hofer Stephen. Variations in the Mechanical Behavior of Illinois Bituminous Coals. *Fuel* 2012; 98: 213–217.
13. Wu Yu, Jishan Liu, Derek Elsworth, Zhongwei Chen, Luke Connell, Zhejun Pan. Dual Poroelastic Response of a Coal Seam to CO₂ Injection. *International Journal of Greenhouse Gas Control* 2010; 4 (4): pp. 668–678, doi:10.1016/j.ijggc.2010.02.004.
14. Wu Yu, Jishan Liu, Derek Elsworth, Xiexing Miao, Xianbiao Mao. Development of Anisotropic Permeability During Coalbed Methane Production. *Journal of Natural Gas Science and Engineering* 2010; 2 (4): pp. 197–210, doi:10.1016/j.jngse.2010.06.002.
15. Cui X, Bustin RM. Volumetric Strain Associated with Methane Desorption and Its Impact on Coalbed Gas Production from Deep Coal Seams. *AAPG Bull* 2005; 89:1181–202.
16. Gilman A, Beckie R. Flow of Coalbed Methane to a Gallery. In: *Transport Porous Media* 2000; 41: 1–16.
17. Gray I. Reservoir Engineering in Coal Seams: Part 1 – the Physical Process of Gas Storage and Movement in Coal Seams. In: *Paper SPE 12514, SPE Reservoir Engineering* 1987; pp. 28–34.
18. Harpalani S, Zhao X. An Investigation of the Effect of Gas Desorption on Coal Permeability Formation. In: *Proceedings of the 1989 International Coalbed Methane Symposium* 1989; pp. 57–64.

19. Palmer I, Mansoori J. How Permeability Depends on Stress and Pore Pressure in Coalbeds: A New Model. In: *Paper SPE 52607, SPE Reservoir Evaluation & Engineering* 1998; pp. 539–544.
20. Pekot LJ, Reeves SR. Modeling the Effects of Matrix Shrinkage and Differential Swelling on Coalbeds Methane Recovery and Carbon Sequestration. In: *Paper 0328, International Coalbed Methane Symposium, University of Alabama, Tuscaloosa, Alabama, USA* 2003.
21. Robertson EP, Christiansen RL. A Permeability Model for Coal and Other Fractured Sorptive-elastic Media. In: *INL/CON-06-11830, Preprint* 2006.
22. Sawyer WK, Paul GW Schraufnagel RA. Development and Application of a 3D Coalbed Simulator. In: *Paper CIM/SPE 90-119, Presented at the 1990 International Technical Meeting Hosted Jointly by the Petroleum Society of CIM and the Society of Petroleum Engineers, Calgary, Alberta, Canada* 1990.
23. Seidle JP, Huitt LG. Experimental Measurements of Coal Matrix Shrinkage Due to Gas Desorption and Implications for Cleat Permeability Increases. In: *Paper SPE 30010, Proceedings of the 1995 International Meeting on Petroleum Engineering, Beijing, China* 1995.
24. Shi JQ, Durucan S. Drawdown Induced Changes in Permeability of Coalbeds: A New Interpretation of the Reservoir Response to Primary Recovery. In: *Transport in Porous Media* 2004; 56: 1–16.
25. Palmer Ian. Permeability Changes in Coal: Analytical Modeling. *International Journal of Coal Geology* 2009; 77 (1–2), pp. 119–126, doi:10.1016/j.coal.2008.09.006.
26. Palmer I, Mansoori J. How Permeability Depends on Stress and Pore Pressure in Coalbeds: a New Model. *Annual Technical Conference and Exhibition. Denver, Colorado. SPE 36737* 1996.
27. Shi JQ, Durucan S. Changes in Permeability of Coalbeds During Primary Recovery - Part 1: Model Formulation and Analysis. *Proceedings of the 2003 International Coalbed Methane Symposium. University of Alabama, Tuscaloosa, Alabama. Paper 0341* 2003.
28. Shi JQ, Durucan S. Changes in Permeability of Coalbeds During Primary Recovery - Part 2: Model Formulation and Analysis. *Proceedings of the 2003 International Coalbed Methane Symposium. University of Alabama, Tuscaloosa, Alabama. Paper 0342* 2003.
29. Shi JQ, Durucan S. A Model for Changes in Coalbed Permeability During Primary and Enhanced Methane Recovery. *SPE Res Eng* 2005; 8: 291–9.
30. Cui X, Bustin RM and Chikatararla L. Adsorption-induced Coal Swelling and Stress: Implications for Methane Production and Acid Gas Sequestration into Coal Seams. *Journal of Geophysical Research* 112, B10202 2007.
31. Pan Zhejun, Luke D Connell. Modelling Permeability for Coal Reservoirs: A Review of Analytical Models and Testing Data. *International Journal of Coal Geology* 2012; 92 (0), pp. 1–44, doi:10.1016/j.coal.2011.12.009.
32. Gu F, Chalaturnyk RJ. Analysis of coalbed methane production by reservoir and geomechanical coupling simulation. *Journal of Canadian Petroleum Technology* 2005; 44 (10), pp. 33–42.
33. Lindeberg Erik, Per Bergmo 2003. The Long-Term Fate of CO₂ Injected into an Aquifer. In *Greenhouse Gas Control Technologies - 6th International Conference*, edited by J. Gale and Y. Kaya, 2003; pp. 489–494. Oxford: Pergamon.
34. Harpalani S. Compressibility of Coal and Its Impact on Gas Production from Coalbed Reservoirs. In: *Amadei, Dranz, Scott, Smeallie (Eds.), Rock Mechanics for Industry* 1999; pp. 301–308.
35. Harpalani Satya, Guoliang Chen. Estimation of Changes in Fracture Porosity of Coal with Gas Emission. *Fuel* 1995; 74 (10), pp. 1491–1498, doi: 10.1016/0016-2361(95)00106-F.

36. Kolesar JE, Ertekin T, Obut ST. The Unsteady-State Nature of Sorption and Diffusion phenomena in the Micopore Structure of Coal: Part 1- Theory and Mathematical formulation. *Society of Petroleum Engineers Formation Evaluation*: 1990; pp. 81–88.
37. Coussy O. *Mechanics of Porous Continua*. Chichester, Wiley, 1995.
38. Jaeger John Conrad, Neville GW Cook. *Fundamentals of Rock Mechanics*. Third edition, Chapman and Hall. London, 1979.
39. Clarkson CR, Bustin RM. The Effect of Pore Structure and Gas Pressure Upon the Transport Properties of Coal: a Laboratory and Modeling Study. 1. Isotherms and Pore Volume Distributions. *Fuel* 1999; 78: 1333–1344.
40. Clarkson CR, Bustin RM. The Effect of Pore Structure and Gas Pressure Upon the Transport Properties of Coal. 2. Adsorption Rate Modeling. *Fuel* 1999; 78: 1345–1362.
41. Faiz M, Saghafi A, Sherwood N, Wang I. The Influence of Petrological Properties and Burial History on Coal Seam Methane Reservoir Characterisation, Sydney Basin, Australia. *International Journal of Coal Geology* 2007; 70 (1–3), pp. 193–208, doi: 10.1016/j.coal.2006.02.012.
42. Langmuir Irving. THE ADSORPTION OF GASES ON PLANE SURFACES OF GLASS, MICA AND PLATINUM. *Journal of the American Chemical Society* 1918; 40 (9), pp. 1361–1403, doi: 10.1021/ja02242a004.
43. Connell Luke D, Meng Lu, Zhejun Pan. An Analytical Coal Permeability Model for Tri-axial Strain and Stress Conditions. *International Journal of Coal Geology* 2010; 84 (2), pp. 103–114, doi: 10.1016/j.coal.2010.08.011.
44. Tóth József. Some Consequences of the Application of Incorrect Gas/Solid Adsorption Isotherm Equations. *Journal of Colloid and Interface Science* 1997; 185 (1), pp. 228–235, doi: 10.1006/jcis.1996.4562.
45. Liu J, Elsworth D, Brady BH. Linking Stress-dependent Effective Porosity and Hydraulic Conductivity Fields to RMR. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences* 1999; 36 (5), pp. 581–596, doi: 10.1016/S0148-9062(99)00029-7.
46. McKee CR, Bumb AC, Koenig RA. Stress-Dependent Permeability and Porosity of Coal. *Proc., Coalbed Methane Symposium, Tuscaloosa, Alabama* (November 1987) 183.
47. Van Genuchten MT. A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils. *Soil Sci Soc Am* 1980; 44:892–8.
48. Shugang Wang, Elsworth Derek, Liu Jishan. Permeability Evolution in Fractured Coal: The Roles of Fracture Geometry and Water-content. *International Journal of Coal Geology* 2011; 85: 13 – 25.
49. Robertson EP, Christiansen RL. Measurement of Sorption Induced Strain. *Paper 0532, Proceedings of the 2005 International Coalbed Methane Symposium. Tuscaloosa A* 2005.
50. Han F, Busch A, Van Wageningen N, Yang J, Liu Z, Krooss BM. Experimental Study of Gas and Water Transport Processes in the Inter-cleat (matrix) System of Coal: Anthracite from Qinshui Basin, China. *Int J. Coal Geology* 2010; 81: 128–138.
51. Busch Andreas, Yves Gensterblum, Bernhard M Krooss, Nikolai Siemons. Investigation of High-pressure Selective Adsorption/desorption Behaviour of CO₂ and CH₄ on Coals: An Experimental Study. *International Journal of Coal Geology* 2006; 66 (1–2), pp. 53–68, doi: 10.1016/j.coal.2005.07.003.
52. Crosdale Peter J, Tim A Moore, Tennille E Mares. Influence of Moisture Content and Temperature on Methane Adsorption Isotherm Analysis for Coals from a Low-rank, Biogenically-sourced Gas Reservoir. *International Journal of Coal Geology* 2008; 76 (1–2), pp. 166–174, doi: 10.1016/j.coal.2008.04.004.
53. Doyle BR. *Hazardous Gases Underground — Applications to Tunnel Engineering*. Marcel Dekker, Inc 2001.

-
54. Young DM, Crowell AD. *Physical Adsorption of Gases*. Butterworth: London, 1962.
 55. Mitra Abhijit, Harpalani Satya, Liu Shimin. Laboratory Measurement and Modeling of Coal Permeability with Continued Methane Production: Part 1 – Laboratory Results. *Fuel* 2012; 94: 110–116, doi: 10.1016/j.fuel.2011.10.052.
 56. Pingping Shen, Chen Xinglong, Qin Jishun. Pressure Characteristics in CO_2 Flooding Experiments. *Petroleum Exploration and Development* 2010; 37 (2), pp. 211–215, doi: 10.1016/S1876-3804(10)60026-2.
 57. Zhao Y, Hu Y, Wei J, Yang D. The Experimental Approach to Effective Stress Law of Coal Mass by Effect of Methane. *Transport Porous Media* 2003; 53: 235–44.
 58. Connell LD, Pan Z, Lu M, Heryanto D. Coal Permeability and Its Behaviour with Gas Desorption, Pressure and Stress. *Presented at SPE Asia Pacific Oil & Gas Conference and Exhibition, Brisbane, Australia* 2010. Paper Number SPE-133915.

Commentaire sur les deux premières parties

Les résultats des études numériques 2D ont montré tout comme dans le cas analytique et numérique 1D, que le gonflement de la matrice rocheuse dû à l'adsorption de CO_2 entraîne une diminution de la porosité (fermeture des pores) et par conséquent une diminution de la perméabilité. Ce qui limitera l'injectivité à l'échelle du réservoir. Ce gonflement est cependant fonction de la pression du gaz (pression de CO_2 dans notre cas) : de fortes pressions de gaz induisent une grande diminution de la porosité. Lorsque la sorption n'est pas prise en compte, une augmentation de la porosité/perméabilité est observée et est due à l'effet positif du couplage hydromécanique (ouverture des pores due à l'augmentation de la pression du gaz). Ce qui augmentera l'injectivité à l'échelle du réservoir. Concernant le coefficient de Biot, il affecte différemment la porosité et la perméabilité selon qu'on prenne en compte ou non les effets de sorption, soulignant ainsi l'importance du phénomène de sorption dans le charbon lors de l'injection du CO_2 . La diminution de la porosité/perméabilité est de plus en plus importante avec l'augmentation des valeurs du coefficient de Biot lorsque l'isotherme d'adsorption de Langmuir est prise en compte, comme nous l'avons d'ailleurs constaté dans les cas analytique et numérique (sous Code_Aster) 1D. Mais contrairement aux cas analytique et numérique 1D, dans le cas 2D, lorsque l'isotherme d'adsorption de Langmuir n'est pas prise en compte, l'augmentation de la porosité/perméabilité est de plus en plus grande avec des valeurs élevées du coefficient de Biot. Cela serait dû aux variations des contraintes effectives dans ce cas 2D. La valeur du module de Young/module de compressibilité a une grande influence sur les résultats. Les faibles valeurs du module de Young/module de compressibilité augmentent l'effet positif (c'est-à-dire l'augmentation de la porosité/perméabilité) du couplage Hydro-Mécanique, inhibant ainsi l'effet négatif (c'est-à-dire la diminution de la porosité/perméabilité) due à l'isotherme d'adsorption de Langmuir. Ceci rejoint aussi les résultats trouvés dans les cas analytique et numérique 1D.

L'augmentation des valeurs des paramètres d'adsorption de Langmuir favorise la diminution de la porosité, et par conséquent la diminution de la perméabilité intrinsèque, avec la pression de gaz. Notre étude montre ainsi le rôle joué par ces paramètres lors de l'injection de CO_2 dans le charbon. Pour les charbons plus gonflables donc, à l'échelle du réservoir, l'injectivité sera limitée. En présence d'une forte pression initiale de l'eau interstitielle dans le charbon, la propagation de la pression de gaz est ralentie. Ceci affecte l'évolution des propriétés pétro-physiques. Une forte pression initiale de l'eau interstitielle limite en particulier le déplacement de la roche lors de l'injection de CO_2 . La dissolution du CO_2 dans l'eau influe également (elle réduit la pression de CO_2 gazeux dans le massif) sur la propagation de la pression de gaz (donc des propriétés pétro-physiques). Par conséquent, une modélisation adéquate de l'injection de CO_2 dans un charbon saturé d'eau doit tenir compte de la dissolution du CO_2 dans l'eau interstitielle.

De ces résultats et conclusions, nous pouvons dire que notre modèle, comme celui de Wu et al. (2010a), peut simuler l'influence du coefficient de Biot lors de l'injection de CO_2 dans le charbon. Il peut également être utilisé pour simuler l'effet des paramètres mécaniques lors de l'injection. Bien que l'isotherme de Langmuir soit utilisée par la plupart des auteurs dans leur modélisation, on connaît peu l'impact de ses paramètres sur la réponse du charbon à l'injection de CO_2 . Notre étude explique ici le rôle joué par ceux-ci lors de l'injection de CO_2 dans le charbon. Une bonne connaissance de tous les paramètres étudiés ici (le coefficient de Biot, les paramètres de Langmuir, le module de Young/module de compressibilité) est néanmoins nécessaire, notamment pour la modélisation *in-situ*. La pertinence de notre modèle vient du fait que nos simulations numériques sont réalisées avec un code d'analyse Thermo-Hydro-Mécanique entièrement couplé pour le calcul des structures qui permet de prendre en compte tous les phénomènes couplés Thermo-Hydro-Mécaniques et physico-chimiques

(c'est-à-dire le mécanisme d'adsorption) impliqués dans le processus d'injection de CO_2 dans le charbon.

4.4.Troisième partie : autres calculs numériques 2D avec Code_Aster

Cette troisième partie du chapitre donne des résultats numériques sous Code_Aster complémentaires à la deuxième partie. Ces résultats sont principalement liés à l'étude de l'influence de la pression du liquide dans le cas sans prise en compte de la dissolution du CO_2 dans l'eau interstitielle, à l'effet de la perméabilité du charbon lors de l'injection de CO_2 et aussi à des calculs en conditions de contraintes déviatoriques. Les mêmes conditions aux limites et même maillage que dans la deuxième partie seront considérés (paragraphe 4.3.3.3), sauf les contraintes qui seront différentes dans le cas de conditions de contraintes déviatoriques. Compte tenu des perspectives pour une injection de CO_2 suivie d'une récupération assistée du méthane CH_4 , un autre paragraphe dans cette partie sera consacré à un massif de charbon avec deux puits d'injection.

4.4.1. Influence de la pression initiale de liquide P_l dans le massif du charbon : cas sans prise en compte de la dissolution du CO_2 dans l'eau interstitielle

Dans l'article présenté ci-dessus, on a étudié l'effet de la pression du liquide sur la réponse du charbon à l'injection du CO_2 pour un cas saturé en eau avec la prise en compte de la dissolution du gaz dans l'eau interstitielle. Ici, nous reprenons le même calcul mais en négligeant la dissolution du CO_2 dans l'eau interstitielle. La loi de comportement utilisée dans Code_Aster est donc celle LIQU_GAZ (c'est-à-dire loi de comportement d'un milieu poreux non saturé liquide/gaz sans changement de phase) différente de celle utilisée dans l'article pour cette même étude, LIQU_AD_GAZ (c'est-à-dire loi de comportement d'un milieu poreux non saturé liquide/air (gaz) dissous/air (gaz) sec avec changement de phase).

Comme pour le cas avec dissolution du CO_2 dans l'eau interstitielle, pour étudier l'influence de la pression initiale du liquide dans le cas sans dissolution du CO_2 dans l'eau, nous considérons les mêmes valeurs de celle-ci : 0,1 MPa ; 1 MPa et 3 MPa. La Figure 36 montre la propagation de la pression du gaz (a), les variations du déplacement radial (b), l'évolution de la porosité (c) et le rapport de la perméabilité (d) pour les différentes valeurs de la pression initiale du liquide. Le temps de simulation est de 100 ans. Dans cette simulation, les effets de sorption (isotherme de Langmuir) sont pris en compte. Contrairement à ce qui a été observé lorsque la dissolution du CO_2 dans l'eau interstitielle a été prise en compte (les valeurs élevées de la pression initiale de l'eau interstitielle retarde la propagation de la pression de gaz et donc la diminution de la porosité/perméabilité) comme mentionné d'ailleurs dans le paragraphe 4.4 de l'article, l'influence de la pression initiale de l'eau interstitielle sur la propagation de la pression de gaz est très légère. Dans le cas avec dissolution de CO_2 dans l'eau, l'influence de la pression initiale de l'eau interstitielle était due d'une part à la compétitivité entre les deux pressions et d'autre part à une perte de la pression de CO_2 due à sa dissolution dans l'eau qui dépend de la pression d'eau. Dans ce cas sans la prise en compte de la dissolution de CO_2 dans l'eau interstitielle, seule la compétitivité entre les deux pressions affecte la propagation de la pression de CO_2 . Ce qui expliquerait pourquoi l'influence de la pression de l'eau interstitielle est très légère. Donc, comme les propriétés pétro-physiques (porosité, perméabilité) du charbon sont fonction de la pression de gaz, l'influence de la pression de l'eau interstitielle sur celles-ci sera aussi très légère. De même son influence sur le déplacement radial (Fig. 36b) sera aussi légère par rapport au cas avec la prise en compte de la dissolution de CO_2 dans l'eau interstitielle.

Sur la Figure 37 est présentée la contrainte effective radiale pour les différentes valeurs de la pression initiale de l'eau interstitielle, en (a) avec prise en compte de la dissolution du CO_2 dans l'eau interstitielle et en (b) sans prise en compte de la dissolution du CO_2 dans l'eau interstitielle. Les effets de la pression interstitielle sont quasiment les mêmes pour ces deux cas. Nous observons une diminution de la contrainte effective radiale lorsque la pression interstitielle augmente : c'est l'effet Hydro-Mécanique. La seule différence (comme observé aussi sur la Figure 12 de l'article) est que lorsque la dissolution du CO_2 dans l'eau interstitielle n'est pas prise en compte, la diminution de la contrainte radiale est beaucoup plus remarquable même en s'éloignant du puits d'injection. Cela est dû à la forte pression du gaz présente dans le massif pour ce dernier cas (LIQU_GAZ), comparé au premier (LIQU_AD_GAZ).

Dans ce cas sans prise en compte de la dissolution du CO_2 dans l'eau interstitielle (comparé au cas avec prise en compte de la dissolution), la compétitivité entre les deux pressions ne serait pas grande. Ceci peut expliquer la faible influence de la pression du liquide interstitiel sur la propagation du gaz, donc sur les paramètres pétro-physiques et aussi sur le déplacement radial (Fig. 36).

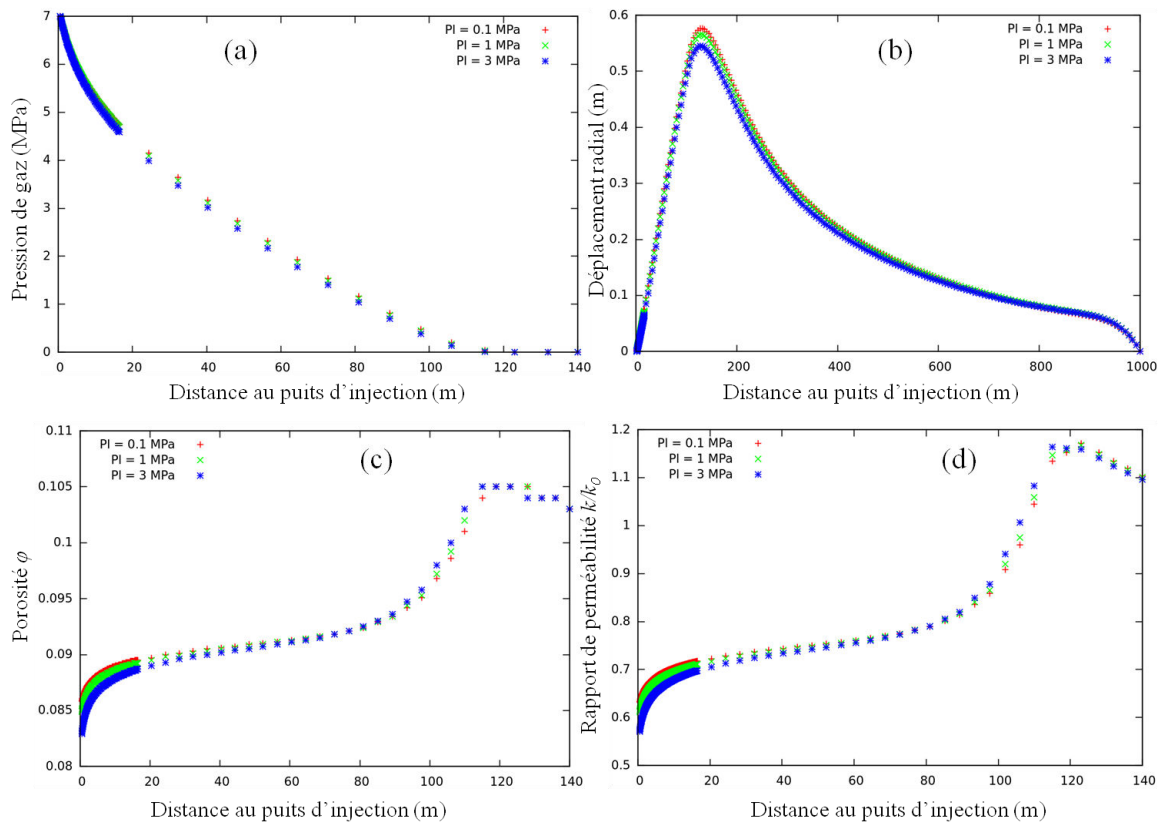


Figure 36. Influence de la pression initiale du liquide P_l ($t = 100$ ans): sur la propagation de la pression de gaz (a), sur le déplacement radial (b), sur la porosité ϕ (c) et sur le rapport de perméabilité k/k_0 (d).

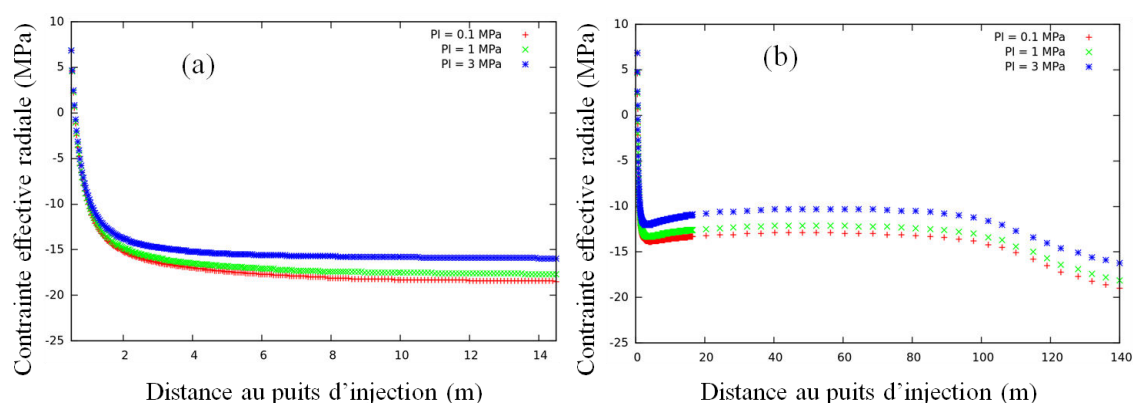


Figure 37. Influence de la pression initiale du liquide P_l ($t = 100$ ans) sur les variations de la contrainte effective radiale : (a) cas avec dissolution du CO_2 dans l'eau interstitielle et en (b) sans dissolution du CO_2 dans l'eau interstitielle.

4.4.2. Effets de la perméabilité intrinsèque

La perméabilité d'un corps poreux est sa propriété de se laisser traverser par les gaz ou les liquides. Elle est sensible aux variations de l'état de contrainte et de la pression interstitielle (Palmer and Mansoori 1998). Lors de l'injection de gaz dans un gisement de charbon, l'augmentation de la pression interstitielle conduit à une diminution des contraintes effectives et à une ouverture des pores (donc augmentation de la porosité/perméabilité), alors que l'adsorption du gaz entraîne un gonflement de la matrice et une diminution de la porosité/perméabilité. Ces effets ont été observés dans nos calculs (cf. deuxième partie de ce chapitre). Dans ce paragraphe, il s'agit d'étudier des charbons avec des perméabilités différentes. Nous rappelons que pour des raisons de simplicité dans notre modèle, nous avons considéré que les fractures du charbon ont une distribution homogène sans précision de taille et que le charbon est un milieu isotrope et homogénéisé du point de vue mécanique et hydraulique. Ce qui nous permet d'utiliser la perméabilité intrinsèque de celui-ci.

Pour étudier l'influence de la perméabilité intrinsèque sur la réponse du charbon à l'injection du CO_2 , nous utilisons les propriétés et paramètres mentionnés dans le Tableau 7 et considérons 4 différentes valeurs de perméabilité : $k_0 = 10^{-19} \text{ m}^2$, $k_0 = 10^{-18} \text{ m}^2$, $k_0 = 10^{-17} \text{ m}^2$ et $k_0 = 10^{-16} \text{ m}^2$. Nous faisons deux cas de calculs : un sans Langmuir et un autre avec Langmuir. Dans les deux cas, le coefficient de Biot est pris égal à 1. Dans le cas avec Langmuir, ε_L est pris égal à 0,023 et β_L à $4,4 \text{ MPa}^{-1}$. Pour les deux cas de calcul, la dissolution du CO_2 dans l'eau interstitielle est prise en compte.

La Figure 38 donne la propagation de la pression de gaz dans le massif pour un temps de simulation de 100 ans, en (a) sans Langmuir et en (b) avec Langmuir. On observe évidemment, pour les quatre différentes perméabilités choisies, une progression de la pression de gaz beaucoup plus rapide pour les plus grandes perméabilités, que ce soit dans le cas sans Langmuir ou avec Langmuir. On remarque tout de même que la propagation dans le cas sans Langmuir a une légère avance sur celle dans le cas avec Langmuir. Dans ce dernier cas, cela s'explique par l'effet de la sorption : une partie du CO_2 injecté est adsorbée par la matrice rocheuse (phénomène décrit par l'isotherme de Langmuir dans notre modèle). Ce qui nous permet de dire que, dans le cas avec Langmuir, la porosité est fortement réduite (Fig. 41b) ce qui induit une diminution de la perméabilité (Fig. 42b) et donc un ralentissement de la propagation de la pression de gaz.

Avec initialement des contraintes totales isotropes de -20 MPa, les Figures 39 et 40 montrent les variations des contraintes effectives radiales pour un temps de simulation, respectivement de 1 jour (juste après l'excavation) et de 100 ans, en (a) sans Langmuir et en (b) avec Langmuir, pour les quatre différentes perméabilités. On observe une grande variation positive (i.e., en traction) de la contrainte radiale autour du puits d'injection (la contrainte radiale est nulle après excavation et avant injection de gaz (Fig. 39)) : elle passe de 0 à 7 MPa, i.e. la pression de gaz, après l'injection. Elle est la même pour les quatre perméabilités autour du puits et est due à la forte pression du gaz injecté. La contrainte radiale retrouve rapidement, au bout de quelques mètres, sa valeur initiale de -20 MPa. En s'éloignant du puits d'injection, l'effet de la perméabilité se fait ressentir. En effet, plus la perméabilité est élevée, plus la variation positive de la contrainte radiale effective est importante.

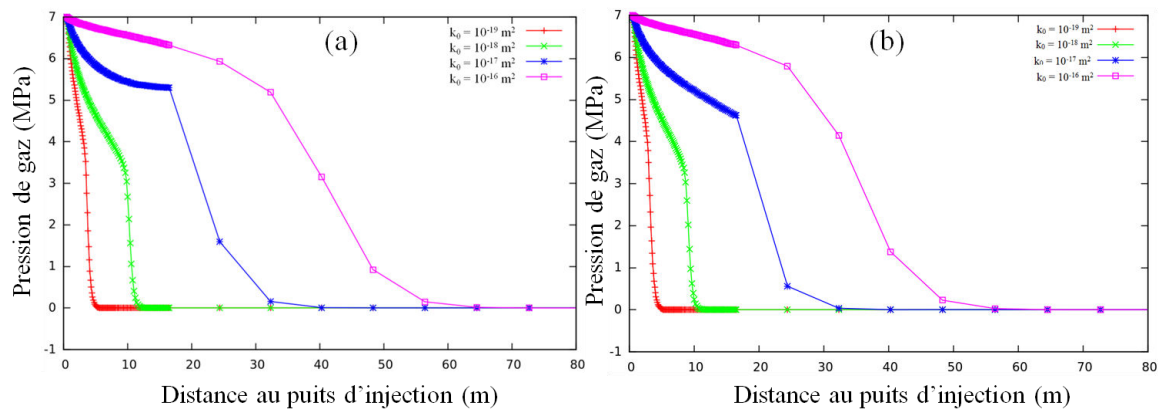


Figure 38. Effets de perméabilité sur la propagation de la pression de gaz à $t = 100$ ans: en (a) sans Langmuir et en (b) avec Langmuir.

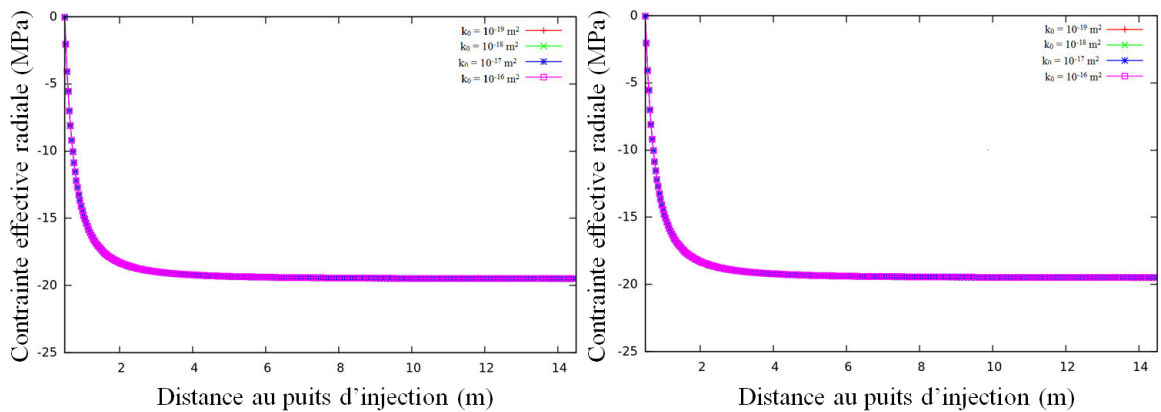


Figure 39. Profils des contraintes effectives radiales juste après le creusement (1 jour): en (a) sans Langmuir et en (b) avec Langmuir.

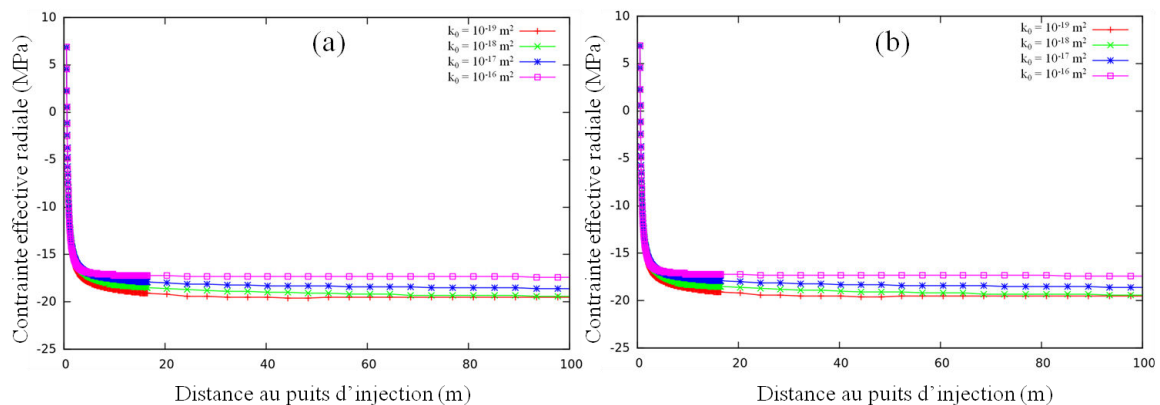


Figure 40. Effets de la perméabilité sur l'évolution des contraintes effectives radiales à $t = 100$ ans: en (a) sans Langmuir et en (b) avec Langmuir.

Comme indiqué dans la deuxième partie de ce chapitre, une fois à l'intérieur du massif du charbon, le gaz va modifier les propriétés pétro-physiques (porosité, perméabilité) de celui-ci. Nous présentons sur la Figure 41 l'évolution de la porosité pour les quatre différentes perméabilités utilisées, en (a) sans prise en compte des effets de sorption et en (b) avec la prise en compte des effets de sorption. Compte tenu de la Figure 38 sur la progression de la pression de gaz dans le massif du charbon (une pression de gaz beaucoup plus forte à l'intérieur du massif pour les perméabilités élevées), on observe une augmentation (Fig. 41a, sans Langmuir) et une grande diminution (Fig. 41b, avec Langmuir) de la porosité à l'intérieur du massif pour les grandes perméabilités. Cette baisse de porosité/perméabilité dans le cas avec Langmuir affecte une distance très importante dans la propagation de la pression de gaz dans ce dernier cas (Fig. 38b). D'où l'intérêt de la prise en compte de la sorption dans les modélisations du stockage géologique de CO_2 dans le charbon.

Les variations du rapport de la perméabilité sont présentées sur la Figure 42, avec en (a) le cas sans Langmuir et en (b) pour le cas avec Langmuir. Ces variations évoluent dans le même sens que la porosité et s'expliquent par la relation entre ces deux propriétés du charbon (Eq. 18 de l'article).

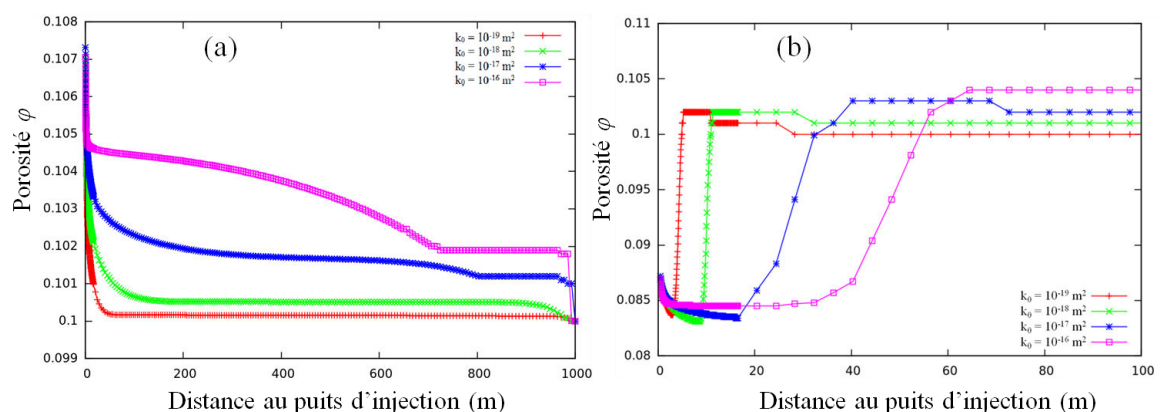


Figure 41. Effets de la perméabilité sur l'évolution de la porosité ϕ à $t = 100$ ans: en (a) sans Langmuir et en (b) avec Langmuir.

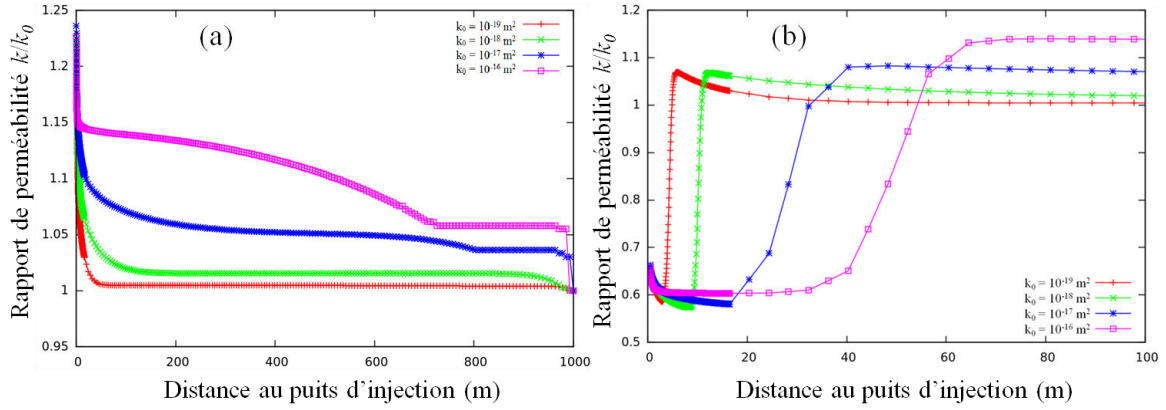


Figure 42. Effets de la perméabilité sur l'évolution du rapport de perméabilité k/k_0 à $t = 100$ ans: en (a) sans Langmuir et en (b) avec Langmuir.

4.4.3. Cas de contraintes initiales déviatoriques

Les résultats que nous avons présentés jusqu'ici ont été obtenus en conditions isotropes avec un état de contrainte totale de -20 MPa (compression négative) et en déformations planes. Dans ce paragraphe, nous avons testé un cas de calcul avec une condition de contraintes déviatoriques (contraintes anisotropes), mais toujours en déformations planes. Nous avons considéré pour cela (en coordonnées cartésiennes), une contrainte de -20 MPa dans la direction des x , -10 MPa dans la direction des y et une contrainte de -20 MPa dans la direction des z .

Le maillage, les conditions aux limites et les conditions d'injection (les phases de calcul) sont les mêmes que ce qui est décrit dans le paragraphe 3.3 de l'article.

Pour les paramètres de calcul, nous avons considéré une perméabilité intrinsèque initiale k_0 de 10^{-18} m^2 avec une porosité de 0,1 et un coefficient de Biot de 1. Les paramètres de Langmuir ε_L et β_L sont pris respectivement égaux à 0,023 et $4,4 \text{ MPa}^{-1}$. Le module de Young drainé E_0 étant pris égal à 750 MPa avec un coefficient de Poisson drainé ν_0 de 0,25. Les autres paramètres du calcul sont les mêmes que ceux donnés par le Tableau 1 de l'article. Le cas isotrope est aussi repris ici avec les mêmes paramètres pour la comparaison.

Nous présentons tout d'abord dans cette partie, les variations théoriques des contraintes radiales et orthoradiales en fonction du rayon extérieur r de la galerie pour un état de contrainte isotrope (Lamé) et pour un état de contrainte déviatorique (Kirsch). La méthode de Lamé étant un cas particulier de la méthode de Kirsch. Les expressions des contraintes radiales et orthoradiales sont données dans le cas déviatorique par :

$$\begin{aligned}\sigma_{rr}(r, \theta) &= \frac{\sigma_H + \sigma_V}{2} \left(1 - \frac{r_i^2}{r^2} \right) + \frac{r_i^2}{r^2} \sigma_i + \frac{\sigma_H - \sigma_V}{2} \left(1 - \frac{4r_i^2}{r^2} + \frac{3r_i^4}{r^4} \right) \cos(2\theta) \\ \sigma_{\theta\theta}(r, \theta) &= \frac{\sigma_H + \sigma_V}{2} \left(1 + \frac{r_i^2}{r^2} \right) - \frac{r_i^2}{r^2} \sigma_i - \frac{\sigma_H - \sigma_V}{2} \left(1 + \frac{3r_i^4}{r^4} \right) \cos(2\theta)\end{aligned}\quad (4-10)$$

Dans (4-10), r_i est le rayon de la galerie, θ l'angle par rapport à l'axe horizontal du plan cartésien, σ_H et σ_V respectivement les contraintes horizontales et verticales et σ_i la pression de soutènement. Travaillant en coordonnées cartésiennes, l'angle θ sera soit 0° (l'axe des x) soit 90° (l'axe des y). La Figure 43 montre les variations théoriques des contraintes radiales et

orthoradiales pour une pression de soutènement nulle et $r_i = 0,5$ m (en (a) Lamé, en (b) Kirsch pour $\theta = 0^\circ$ et en (c) Kirsch avec $\theta = 90^\circ$). Les mêmes variations sont présentées sur la Figure 44 pour une pression de soutènement de 7 MPa (notre pression d'injection). Pour la méthode de Lamé, les variations des contraintes sont la même pour les deux valeurs de θ . La contrainte radiale est nulle autour du puits pour une pression de soutènement nulle et 7 MPa pour une pression de soutènement de 7 MPa, que ce soit pour Lamé ou pour Kirsch.

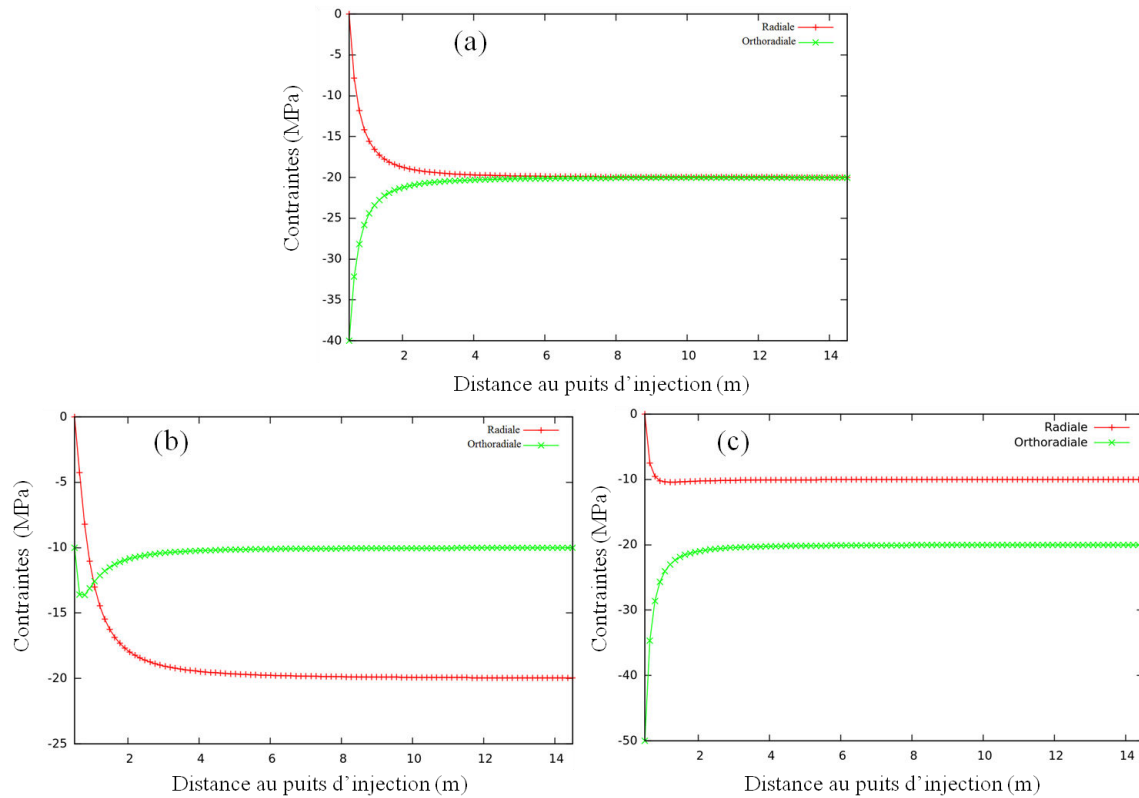


Figure 43. Profils théoriques des contraintes radiales et orthoradiales pour $\sigma_i = 0$: en (a) Lamé, en (b) Kirsch pour $\theta = 0^\circ$ et en (c) Kirsch pour $\theta = 90^\circ$.

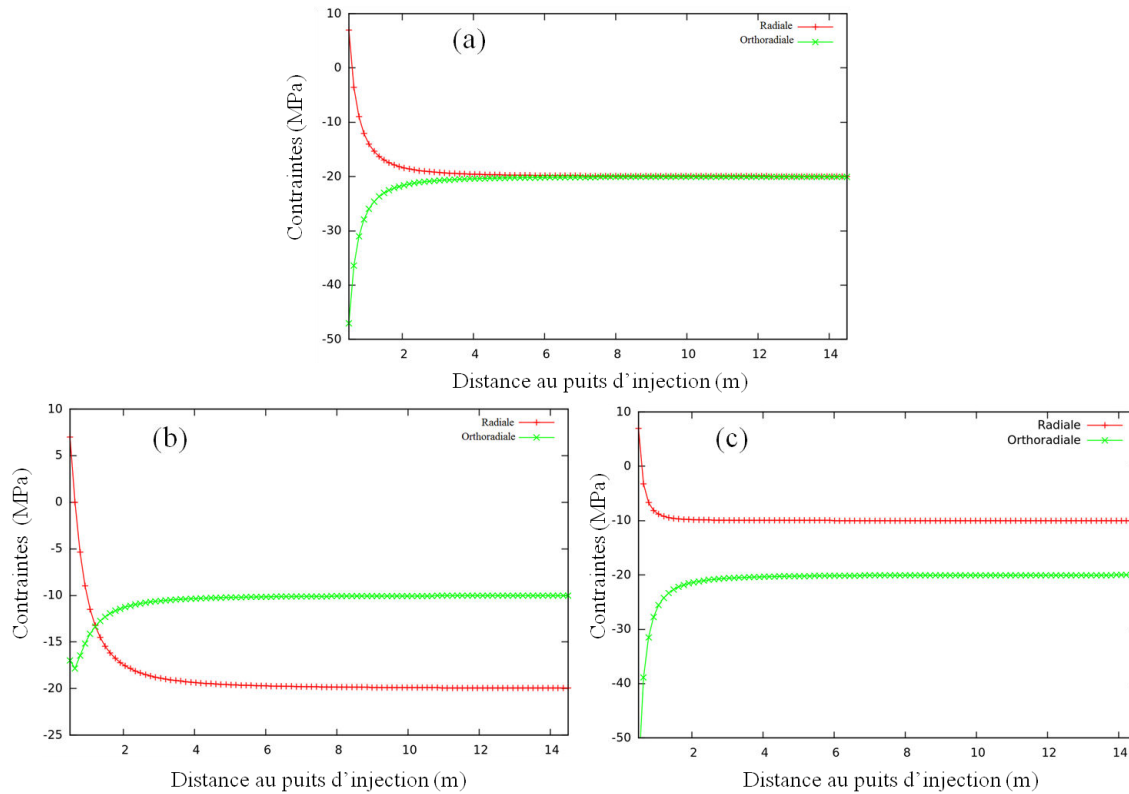


Figure 44. Profils théoriques des contraintes radiales et orthoradiales pour $\sigma_i = 7$ MPa : en (a) Lamé, en (b) Kirsch pour $\theta = 0^\circ$ et en (c) Kirsch pour $\theta = 90^\circ$.

Nous présentons sur la Figure 45 les profils des contraintes effectives après l'excavation de la galerie, suivant l'axe des x (a, c) et suivant l'axe des y (b, d). Les Figs. 45a et 45b sont obtenues pour un état de contrainte isotrope (Lamé) avec un état de contrainte initiale de -20 MPa et les Figs. 45c et 45d obtenues pour un état de contrainte déviatorique (-20 MPa suivant z , -20 MPa suivant x et -10 MPa suivant y). Après injection de gaz, la contrainte effective radiale est de 7 MPa (correspondant à la pression d'injection) autour du puits d'injection. Nous présentons sur la Figure 46 les profils de la propagation de la pression de gaz dans le massif rocheux pour les instants t de 10 et 100 ans, pour le cas isotrope (a) et déviatorique (b). Les Figs. 46c et 46d donnent une comparaison de propagation de la pression de gaz entre le cas isotrope et le cas déviatorique suivant l'axe x (Fig. 46c) et l'axe y (Fig. 46d). Les notations *iso* et *dev* signifient respectivement que l'on est en isotropie et en déviatorique. On n'observe quasiment pas de différence dans la propagation de la pression de gaz pour les deux cas de calcul (isotropie et déviatorique). Sur la Figure 47 sont présentés les profils des contraintes effectives suivant x (a, c) et suivant y (b, d) : en isotropie (a, b) et déviatorique (c, d) et pour les instants t de 10 et 100ans.

Quelle que soit la condition de contrainte initiale utilisée, la contrainte effective radiale est nulle autour du puits après l'excavation. Cependant, la contrainte effective orthoradiale est égale à deux fois sa valeur initiale (c'est-à-dire -40 MPa) dans le cas isotrope. Ce qui est en bon accord avec les résultats théoriques de Lamé. Dans le cas des contraintes déviatoriques, l'on obtient aussi les mêmes variations des contraintes dans nos modélisations suivant les directions : sur l'axe des x c'est-à-dire $\theta = 0^\circ$ (Figs. 45c et 47c d'une part pour le cas théorique de Kirsch et Figs. 43b et 44b d'autre part pour nos modélisations) et sur l'axe des y c'est-à-dire $\theta = 90^\circ$ (Figs. 43c et 44c d'une part pour le cas théorique de Kirsch, et Figs. 45d et 47d d'autre part pour nos modélisations). Les résultats de nos modélisations sont donc en bon accord avec les résultats théoriques de Kirsch.

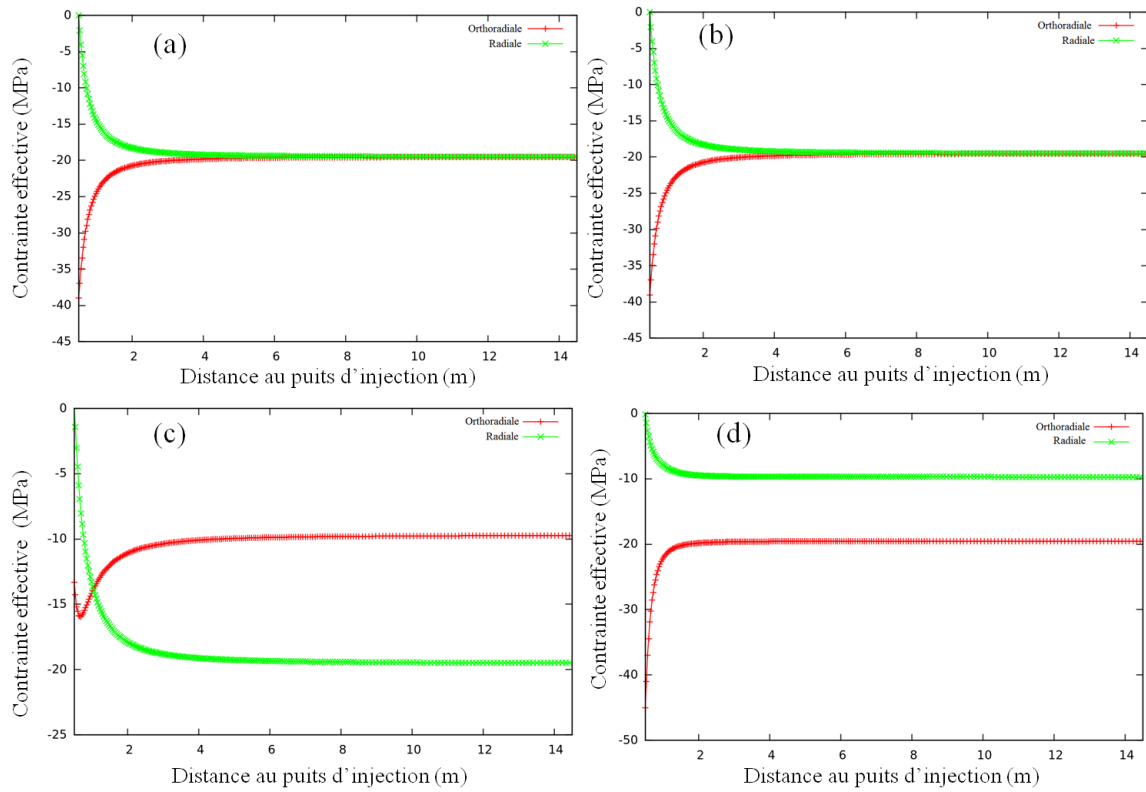


Figure 45. Profils des contraintes effectives après excavation suivant x (a, c) et suivant y (b, d) : en isotropie (a, b) et déviatorique (c, d).

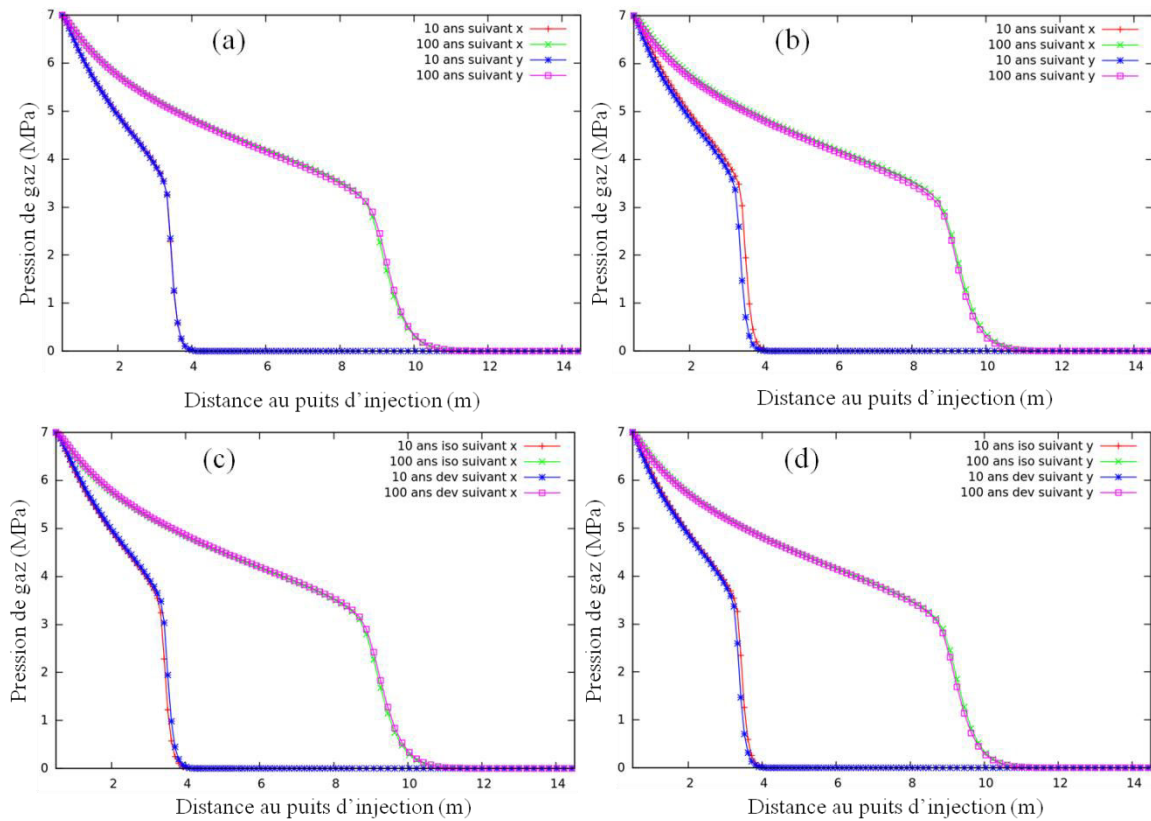


Figure 46. Variations de la pression de gaz pour les cas isotrope (a) et déviatorique (b), une comparaison entre le cas isotrope et déviatorique suivant la direction x (c) et y (d).

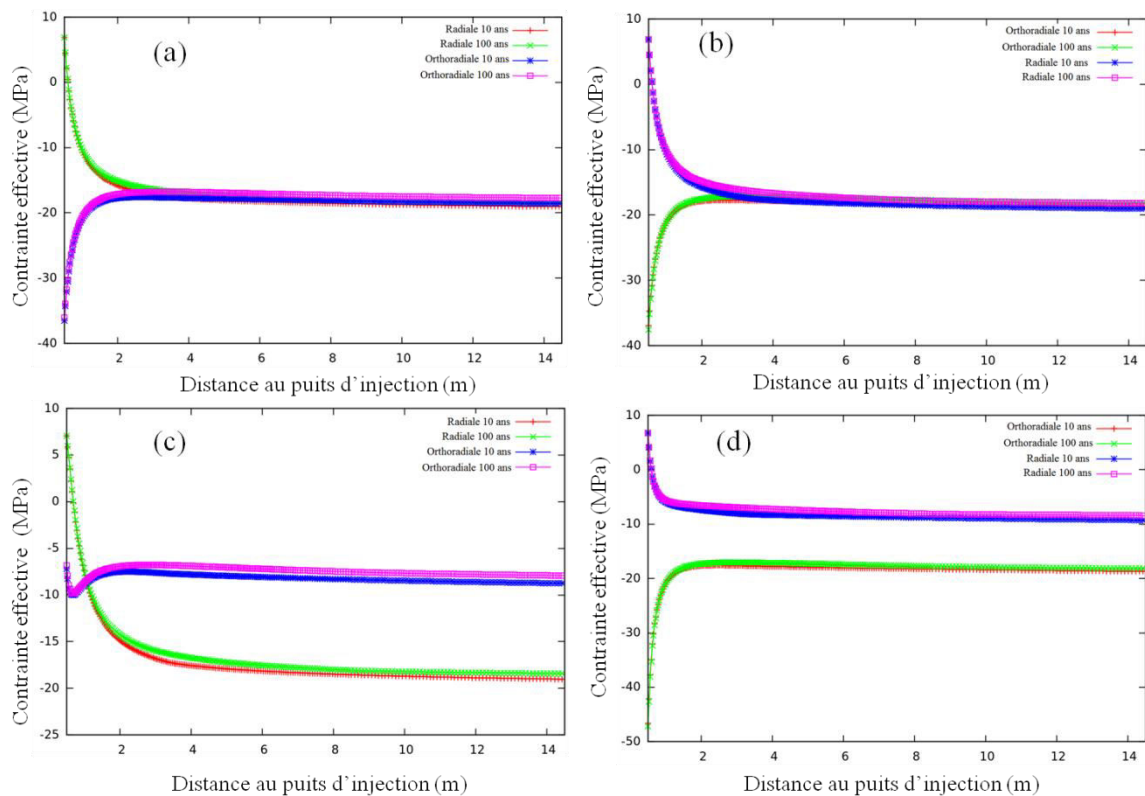


Figure 47. Variations des contraintes effectives suivant x (a, c) et suivant y (b, d) : en isotropie (a, b) et déviatorique (c, d).

Sur la Figure 48 sont présentées les variations de la porosité pour les instants t de 10 et 100 ans, pour le cas isotrope (a) et déviatorique (b). Les Figs. 48c et 48d donnent une comparaison entre le cas isotrope et le cas déviatorique suivant l'axe x (Fig. 48c) et l'axe y (Fig. 48d). Dans le cas isotrope, aucune différence de variation de la porosité n'est observée pour les deux directions (Fig. 48a). Mais dans le cas déviatorique, une différence notable peut être observée proche du puits d'injection : on observe une augmentation de la porosité proche du puits suivant l'axe des x et une diminution beaucoup plus importante (comparé au cas isotrope) suivant l'axe des y (Fig. 48b). La propagation de la pression étant la même (ou quasiment) dans toutes les directions quel que soit l'état de contrainte utilisé, cela serait dû aux variations des contraintes observées autour du puits (Figs. 47c et 47d).

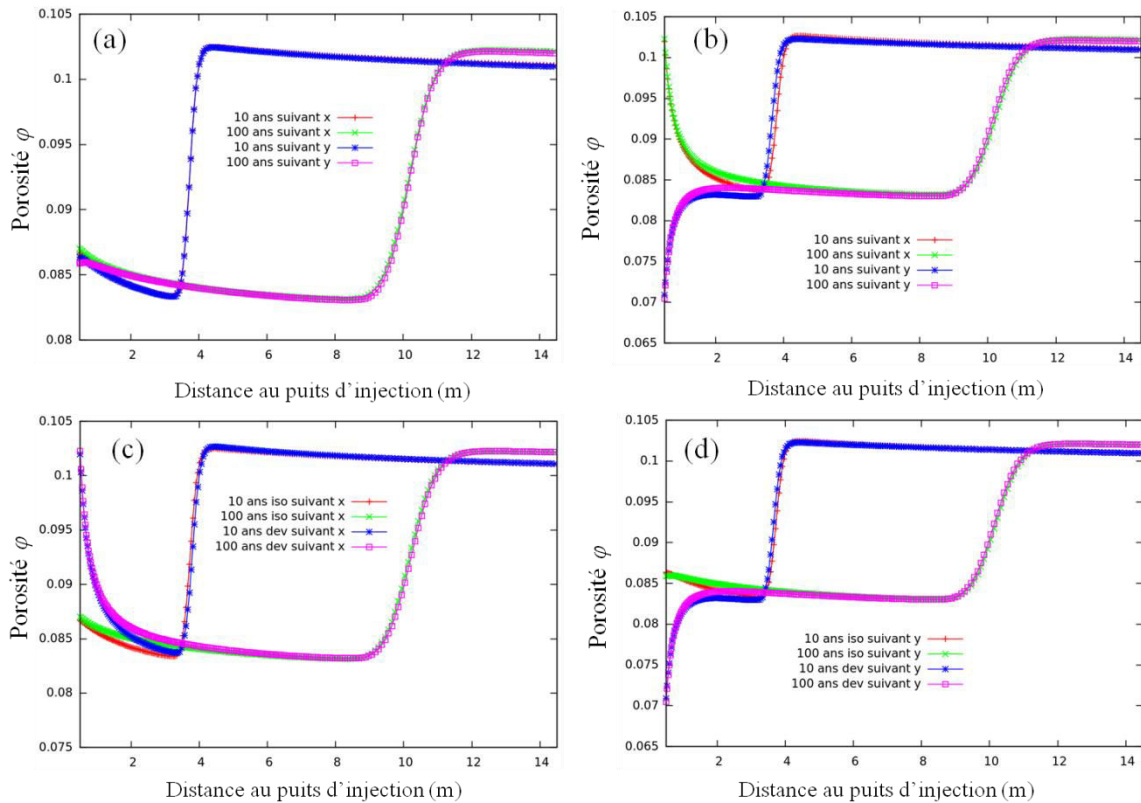


Figure 48. Évolution de la porosité pour les cas isotrope (a) et déviatorique (b), une comparaison entre le cas isotrope et déviatorique suivant la direction x (c) et y (d).

4.4.4. Cas de deux puits d'injection

Dans une perspective d'une injection de CO_2 suivie d'une récupération assistée du méthane CH_4 , dans ce paragraphe, nous considérons un massif de charbon avec deux puits d'injection et nous injectons simultanément du CO_2 dans les deux puits.

4.4.4.1. Maillage et conditions aux limites

On considère un massif de dimensions 300 m sur 200 m initialement saturé en eau de pression interstitielle égale à 0,1 MPa, et avec un état de contrainte totale initiale (isotrope) de -20 MPa. Nous creusons deux puits (chaque puits ayant un diamètre de 1 m) : le centre du premier puits a pour coordonnées $x = 100$ m, $y = 100$ m et celui du deuxième puits a pour coordonnées $x = 200$ m, $y = 100$ m. La profondeur du massif tout comme dans les cas précédents est de 1000 m.

Les mêmes phases de calculs sont considérées à savoir l'imposition de l'état initial avant creusement (déplacements et flux bloqués, pressions égales à leurs valeurs initiales sur les quatre (4) côté du massif ainsi que sur les deux parois), le creusement des deux (2) puits (déplacements laissés libres sur les deux parois) et l'injection (on applique au deuxième jour une pression de CO_2 égale à 7 MPa sur les deux parois des deux (2) puits d'injection). Les conditions aux limites sont résumées sur la Figure 49. La durée totale des simulations est toujours de 100 ans (1 mois = 30 jours).

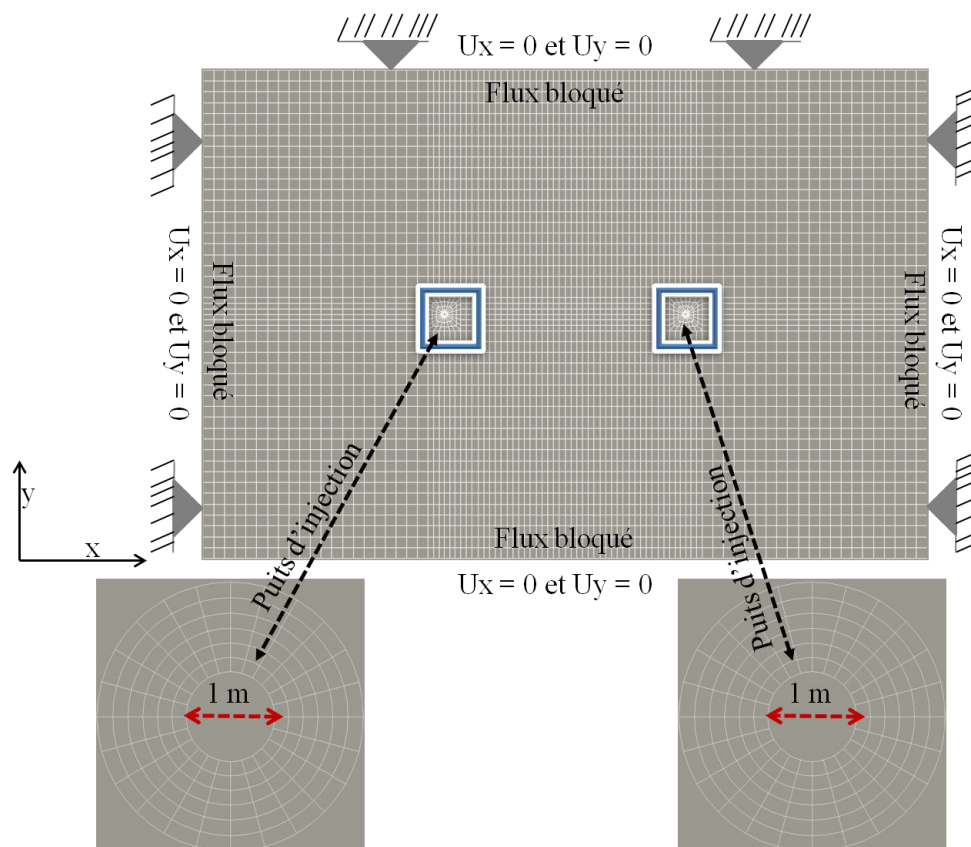


Figure 49. Géométrie du modèle 2D (déformation plane) pour deux (2) puits d'injection et conditions aux limites.

4.4.4.2. Résultats et commentaires

Pour ce calcul, nous avons considéré une perméabilité intrinsèque de 10^{-16} m^2 , un coefficient de Biot de 1, les paramètres de Langmuir ε_L et β_L respectivement égaux à 0,023 et $4,4 \text{ MPa}^{-1}$. Les autres paramètres sont les mêmes que ceux donnés par le Tableau 1 de l'article.

Sur la Figure 50 est présentée la propagation de la pression de CO_2 au cours du temps, pour les instants 1an, 5 ans, 10 ans et 100 ans. On observe comment cette pression de gaz se propage depuis les deux puits d'injection dans le massif, et se rejoignent au cours du temps. Cette propagation de la pression dans le massif, comme vu précédemment dans ce chapitre, va influencer sur les contraintes effectives du milieu. Les Figures 51 et 52 montrent respectivement la contrainte effective horizontale et la contrainte effective verticale dans le massif du charbon au cours du temps.

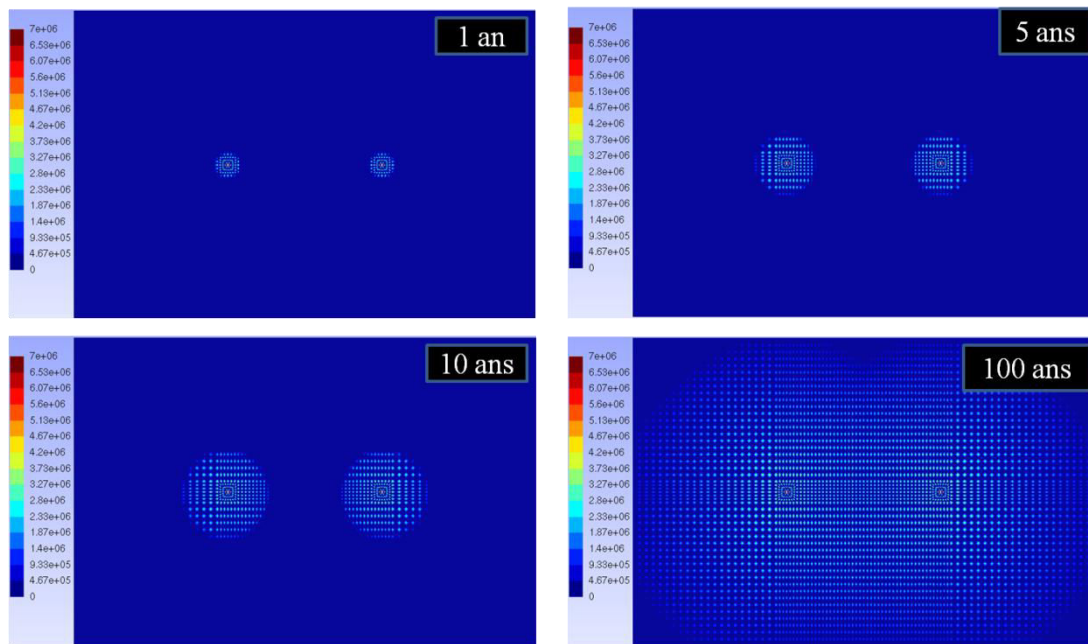


Figure 50. Propagation de la pression de gaz (Pa) au sein du massif au cours du temps.

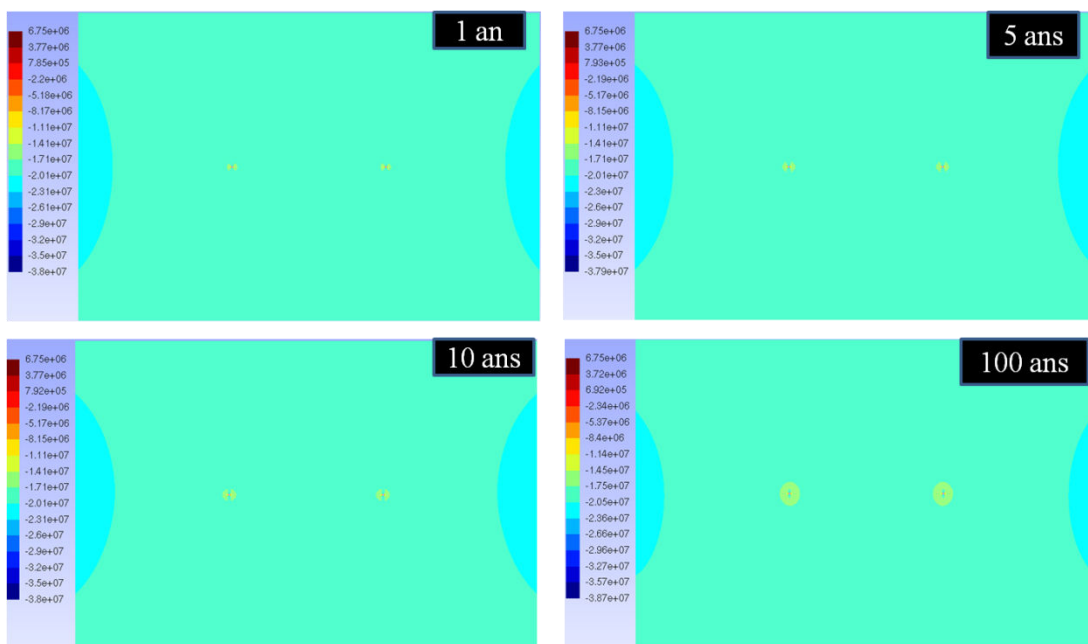


Figure 51. Variations de la contrainte effective horizontale (SIXX en Pa) au cours du temps.

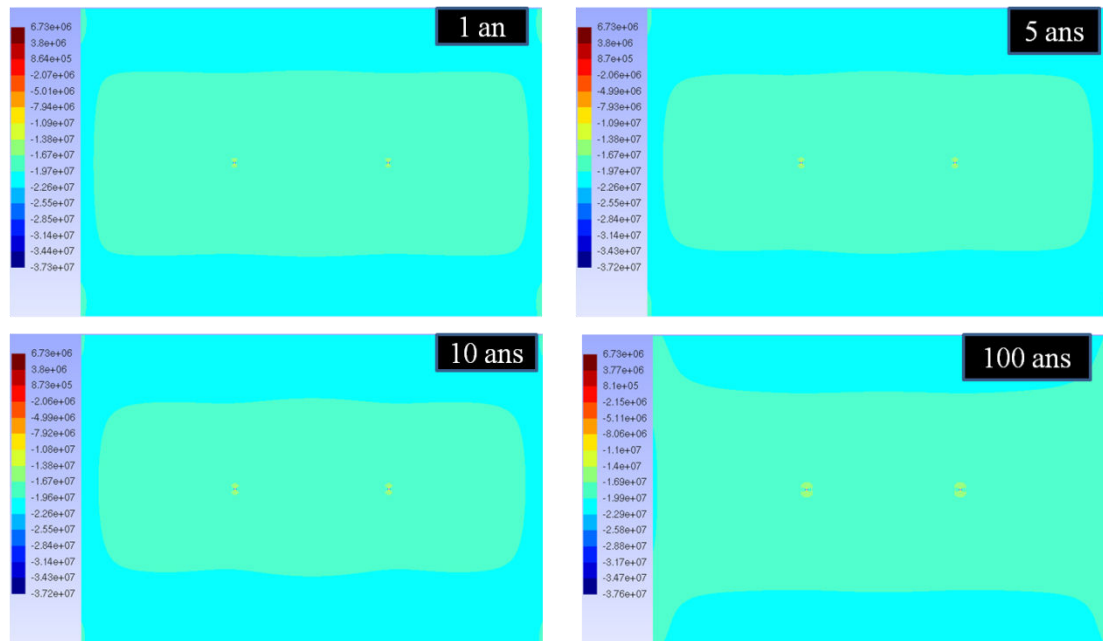


Figure 52. Variation de la contrainte effective verticale (SIYY en Pa) au cours du temps.

Etant donné que la porosité du milieu est liée aux variations de la pression et des contraintes, celle-ci voit sa valeur initiale diminuer dans notre cas du fait du gonflement du charbon. La Figure 53 montre la différence entre la valeur initiale ϕ_0 de la porosité et celle de l'instant ultérieur ϕ au cours du temps. Cette variation de la porosité suit évidemment la propagation de la pression de gaz.

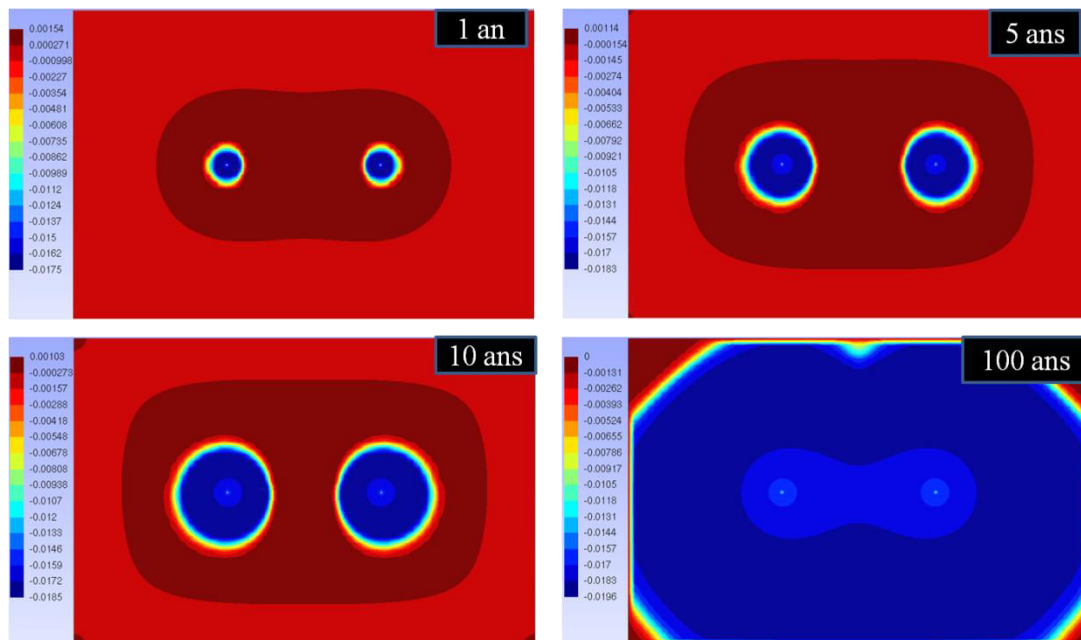


Figure 53. Variations de la porosité ($\phi - \phi_0$) au cours du temps.

L'objectif du calcul avec deux puits d'injection était de se préparer à un cas d'injection du CO_2 avec récupération assistée du méthane CH_4 . Dans ce cas, un des puits d'injection sera un puits de production. Le même maillage et conditions ont été utilisés pour faire un calcul en

n'injectant que dans un seul puits. Les isovaleurs obtenues sont données en annexes. Un autre maillage a été utilisé avec 4 puits d'injections et mêmes conditions que précédemment. Les isovaleurs pour ce cas aussi sont données en annexes.

4.4.5. Conclusions

Cette troisième partie nous montre que contrairement à ce qui a été observé dans le cas avec la prise en compte de la dissolution du CO_2 dans l'eau interstitielle (retardement de la propagation de la pression de gaz et donc la diminution de la porosité/perméabilité pour les valeurs élevées de la pression initiale de l'eau interstitielle), on n'observe quasiment pas d'influence dans le cas sans la prise en compte de la dissolution de CO_2 dans l'eau interstitielle, pour les différentes valeurs de la pression initiale de l'eau interstitielle, que se soit sur la propagation de la pression de gaz ou sur les propriétés pétro-physiques du charbon. Dans le cas sans prise en compte de la dissolution du CO_2 dans l'eau interstitielle, la compétitivité entre les deux pressions n'a quasiment pas lieu.

Cette partie montre aussi évidemment que le gaz se propage beaucoup plus vite dans le massif du charbon lorsque la perméabilité de celui-ci est élevée.

Contrairement au cas isotrope dans lequel aucune différence de variation de la porosité n'est observée pour les directions x et y , dans le cas déviatorique, une différence notable est observée proche du puits d'injection. La porosité a augmenté proche du puits suivant l'axe des x et est réduite significativement (comparé au cas isotrope) suivant l'axe des y . Cette différence serait due aux variations des contraintes observées autour du puits, étant donné que la propagation de la pression de gaz est quasiment la même dans toutes les directions quel que soit l'état de contrainte utilisé.

Le cas de calcul avec deux puits d'injection nous a permis d'introduire l'injection de CO_2 suivi d'une récupération du méthane CH_4 qui sera présentée dans le chapitre suivant.

4.5. Conclusions

Le stockage géologique du CO_2 dans des réservoirs de type veines de charbon non exploité est une des solutions envisagées pour réduire les émissions de gaz à effet de serre dans l'atmosphère. Cependant, l'injection de CO_2 peut perturber les propriétés pétro-physiques (porosité et perméabilité), mécaniques (déformation, résistance à la rupture). Dans le cas du charbon, l'injection de CO_2 se traduit également par des phénomènes de gonflement de la matrice liés au processus d'adsorption. L'objectif de ce travail de thèse était de traduire en termes de modèles phénoménologiques les comportements et les couplages chimio-poromécaniques des roches réservoir de type charbon.

Dans ce chapitre, nous nous sommes focalisés en particulier sur l'étude de l'injection de CO_2 dans le charbon. Pour cela, un modèle homogénéisé de porosité du charbon est développé avec la prise en compte du phénomène d'adsorption, connu pour être le principal mécanisme de production ou de séquestration de CO_2 dans de nombreux réservoir de charbon. Ce modèle nous a permis d'étudier le comportement poro-élastique du charbon pour une injection simple de CO_2 . Le processus d'adsorption est classiquement modélisé à l'aide de l'isotherme d'adsorption de Langmuir (pour un gaz). L'implantation de ce modèle dans le Code_Aster (code d'analyse de calcul de structures entièrement couplé THM, développé par Electricité De France - EDF) nous a permis de faire des simulations numériques de stockage de CO_2 dans le

charbon. Nous avons en particulier étudié l'influence des propriétés hydro-mécaniques du charbon (coefficient de Biot, module de Young/module d'incompressibilité), des paramètres d'adsorption de Langmuir et la pression initiale du liquide interstitiel dans le charbon, sur la réponse du charbon à l'injection du CO_2 . Des modélisations réalisées dans ce chapitre, nous pouvons tirer les conclusions suivantes :

- Le gaz se propage évidemment beaucoup plus vite dans le massif du charbon avec des perméabilités élevées.
- Dans le cas sans prise en compte de la sorption, l'augmentation de la pression de gaz augmente les valeurs des propriétés pétro-physiques (porosité, perméabilité) de la roche alors que dans le cas avec la prise en compte de la sorption via l'isotherme de sorption de Langmuir, l'augmentation de la pression de gaz les diminue. Cela traduit ainsi le mécanisme Hydro-Mécanique d'augmentation de la porosité/perméabilité (dans le cas sans sorption) et le mécanisme physico-chimique de gonflement matriciel et de réduction de porosité/perméabilité associée (dans le cas avec sorption). A l'échelle du réservoir donc, l'injectivité sera favorisée dans le cas sans la prise en compte de la sorption et limitée dans le cas contraire.
- La valeur du module de Young/module de compressibilité a une grande influence sur les résultats. L'augmentation de la porosité/perméabilité dans le cas sans sorption devient de plus en plus importante avec des faibles valeurs de module de Young. Ces faibles valeurs augmentent ainsi les effets positifs du couplage Hydro-Mécanique. Dans le cas avec sorption, la diminution de la porosité/perméabilité est inhibée par les faibles valeurs du module de Young/module de compressibilité. Ces faibles valeurs inhibent donc les effets négatifs dus à l'isotherme d'adsorption de Langmuir.
- Dans le cas analytique et numérique (sous Code_Aster) 1D, l'augmentation des valeurs des propriétés pétro-physiques devient de plus en plus faible avec des valeurs élevées du coefficient de Biot dans le cas sans la prise en compte de la sorption.
- Dans le cas des calculs 2D sous Code_Aster, les effets du coefficient de Biot sont contraires à ceux observés dans le cas analytique et 1D sous Code_Aster. L'augmentation des valeurs des propriétés pétro-physiques est de plus en plus grande avec des valeurs élevées du coefficient de Biot sans la prise en compte de la sorption. Cela est dû notamment à la prise en compte des variations des contraintes, montrant ainsi l'importance de cette prise en compte au cours d'une injection de gaz dans les charbons.
- Dans le cas avec la prise en compte de la sorption, la diminution des valeurs des paramètres pétro-physiques est favorisée par les valeurs élevées du coefficient de Biot que se soit en 1D (analytique et numérique) ou en 2D (numérique).
- Toujours dans le cas avec la prise en compte de la sorption, gérée par l'isotherme d'adsorption de Langmuir, la diminution des valeurs des paramètres pétro-physiques est favorisée par les valeurs élevées des paramètres de Langmuir. Notre étude a montré ainsi le rôle joué par ces paramètres lors de l'injection de CO_2 dans le charbon.
- La dissolution du CO_2 dans l'eau influence également la propagation de la pression de gaz, donc les propriétés pétro-physiques. Par conséquent, une modélisation adéquate de l'injection de CO_2 dans un charbon saturé d'eau doit tenir compte de cette dissolution du CO_2 dans l'eau interstitielle.
- En présence d'une forte pression initiale de l'eau interstitielle dans le charbon, la propagation de la pression de gaz est ralentie si l'on prend en compte la dissolution de CO_2 dans l'eau interstitielle, ce qui affecte l'évolution des propriétés pétro-physiques. Une forte pression initiale de l'eau interstitielle limite en particulier le déplacement de la roche lors de l'injection de CO_2 . Mais si la dissolution de CO_2 dans l'eau interstitielle n'est pas prise en compte, on n'observe quasiment pas d'influence avec différentes valeurs de la

pression initiale de l'eau interstitielle. La compétitivité entre les deux pressions n'a quasiment donc pas lieu.

- Dans le cas déviatorique, contrairement au cas isotrope dans lequel aucune différence de variation de la porosité n'est observée pour les directions x et y , une différence notable est observée proche du puits d'injection. La porosité a augmenté proche du puits suivant l'axe des x et est réduite significativement (comparé au cas isotrope) suivant l'axe des y . Cette différence serait due aux variations des contraintes observées autour du puits, étant donné que la propagation de la pression de gaz est quasiment la même dans toutes les directions quelque soit l'état de contrainte utilisé.
- Le cas de calcul avec deux puits d'injection nous a permis d'introduire le cas d'une injection suivie d'une récupération du méthane CH_4 qui sera présentée dans le chapitre suivant.
- Tous les résultats obtenus ici montrent l'importance du phénomène de sorption. Sa prise en compte permettra de mieux contrôler les variations des propriétés pétro-physiques de la roche.

Notre modèle, comme celui de *Wu et al. (2010a)*, peut simuler l'influence du coefficient de Biot lors de l'injection de CO_2 dans le charbon malgré le fait qu'il s'appuie sur une méthode différente. Il peut également être utilisé pour simuler l'effet des paramètres mécaniques lors de l'injection. Bien que l'isotherme de Langmuir soit utilisée par la plupart des auteurs dans leur modélisation, on connaissait peu l'impact de ses paramètres sur la réponse du charbon pour l'injection de CO_2 . Avec notre modèle, notre étude explique ici le rôle joué par ceux-ci lors de l'injection de CO_2 dans le charbon. Cependant, une bonne connaissance de tous les paramètres étudiés ici (le coefficient de Biot, les paramètres de Langmuir, le module de Young/module de compressibilité) est néanmoins nécessaire, notamment pour la modélisation *in-situ*. La pertinence de notre modèle vient du fait que nos simulations numériques sont réalisées avec un code d'analyse Thermo-Hydro-Mécanique entièrement couplé pour le calcul des structures qui permettent de prendre en compte tous les phénomènes couplés Thermo-Hydro-Mécanique et physico-chimiques (c'est-à-dire le mécanisme d'adsorption) impliqués dans le processus d'injection de CO_2 dans le charbon, contrairement à d'autres études précédentes.

4.6. Références bibliographiques

Blaisonneau A., André L., 2009. “*Influence du comportement mécanique de la roche hôte lors de l'injection de CO_2 supercritique*”. Projet ANR GéoCarbone-Injectivité. Rapport final BRGM, 64 p.

Code_Aster 2012. Document R7.01.11 – “*Modèle de comportement THM*”. http://www.code-aster.org/V2/doc/v11/fr/man_r/r7/r7.01.11.pdf.

Connell, L. D., M. Lu, and Z. Pan, 2010b. “*An Analytical Coal Permeability Model for Tri-axial Strain and Stress Conditions*”. *Int. J. Coal Geology* 84 (2) (November 1): 103–114. doi:10.1016/j.coal.2010.08.011.

Coussy, O, 1995. “*Mechanics of Porous Continua*”. Chichester, Wiley.

Cui, X., and Bustin, R. M., 2005. “*Volumetric Strain Associated with Methane Desorption and Its Impact on Coalbed Gas Production from Deep Coal Seams*”. *AAPG Bull* 2005; 89:1181-202.

Giraud A., 2001. “*Modélisation des couplages THM dans les milieux poreux saturés et partiellement saturés*”. Mémoire de HDR, Institut National Polytechnique de Lorraine:179p.

- Graupner B. J., D. Li, S. Bauer, 2011.** “*The coupled simulator ECLIPSE-OpenGeoSys for the simulation of CO₂ storage in saline formations*”. Geohydromodelling group, Institute of geosciences, University of Kiel, Kudewing-Meyn-Straße 10, 24118 Kiel, Germany. Energy Procedia 4, 3794-3800.
- Liu, J., Elsworth, D. and Brady, B.H., 1999.** “*Linking Stress-dependent Effective Porosity and Hydraulic Conductivity Fields to RMR*”. International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences 36 (5): 581–596. doi:10.1016/S0148-9062(99)00029-7.
- McKee, C.R., Bumb, A.C. and R.A. Koenig, 1987.** “*Stress-Dependent Permeability and Porosity of Coal*”. Proc., Coalbed Methane Symposium, Tuscaloosa, Alabama (November 1987) 183.
- Palmer, I., and Mansoori, J., 1998.** “*How Permeability Depends on Stress and Pore Pressure in Coalbeds: A New Model*”. In: Paper SPE 52607, SPE Reservoir Evaluation & Engineering (December): 539–544.
- Saliya, K., D. Grgic, R. Giot, and A. Giraud, 2013.** “*THM Modeling of the CO₂ Injection in Coal: Influence of Biot’s Coefficient and Langmuir’s Adsorption Parameters*”. Poromechanics V: Proceedings of the Fifth Biot Conference on Poromechanics, pp. 648-657. American Society of Civil Engineers. doi: 10.1061/9780784412992.077.
- Wu Y., J. Liu, D. Elsworth, Z. Chen, L. Connell, and Z. Pan, 2010a.** “*Dual Poroelastic Response of a Coal Seam to CO₂ Injection*”. International Journal of Greenhouse Gas Control 4 (4): 668–678. doi:10.1016/j.ijggc.2010.02.004.

Modélisation de l'injection de CO_2 dans un charbon saturé en méthane CH_4 (Isotherme de Langmuir généralisé)

5.1. Introduction

La séquestration du CO_2 dans les gisements pétroliers (CO_2 -EOR) est une technologie mature et bien comprise des chercheurs par rapport à la technique de la récupération assistée du méthane des gisements houillers (ECBM, i.e. Enhanced Coalbed Methane), qui en est encore à ses débuts. L'injection de CO_2 dans des veines de charbon a été menée sur quelques sites pilotes à travers le monde : l'unité Allison dans le bassin de San Juan en Amérique du Nord étant le premier, suivi par le site de la Vallée Fenn Big au Canada, le site RECOPOL (maintenant MOVECBM) en Pologne, et le site Yubari au Japon. Quelques pilotes sont actuellement en cours aux Etats-Unis et en Asie, mais ceux-ci sont dans leurs phases initiales. Une analyse détaillée des résultats obtenus à ce jour sur les sites pilotes indique clairement que les divers phénomènes en jeu, en particulier la perméabilité et l'injectivité, l'injection continue du CO_2 , sont mal comprises.

L'injection du CO_2 dans des veines de charbon inexploitable fournit non seulement une solution pour le stockage à long terme du CO_2 , mais il fournit également l'avantage supplémentaire d'améliorer la récupération du méthane de gisements houillers. L'ECBM est définie comme un processus qui consiste à injecter un gaz ou un mélange de gaz dans une veine de charbon dans le but d'améliorer la désorption du méthane de houille (CBM i.e. Coalbed Methane), augmentant ainsi la récupération du méthane CH_4 dans le charbon. La technique de CO_2 -ECBM en particulier, consiste à l'injection du CO_2 dans les veines de charbons, où il sera préférentiellement adsorbé, déplaçant ainsi le gaz du méthane CH_4 d'origine naturelle (Arri *et al.* 1992). L'injection de CO_2 peut donc permettre d'améliorer le taux de production de gaz dans les charbons. Le méthane CH_4 pourrait être effectivement expulsé du charbon broyé par l'écoulement d'un flux de CO_2 à température ambiante (Every *et Dell'Osso* 1976). Cependant, il est également bien admis que l'écoulement de gaz dans les charbons varie de façon significative lorsque le gaz s'écoulant s'adsorbe/se désorbe sur le charbon en raison des variations induites dans la microstructure du charbon. Ce phénomène est communément appelé "retrait/gonflement" de la matrice du charbon. Dans une opération de CBM typique, la perméabilité du charbon augmente considérablement avec la désorption du méthane qui induit une diminution de la pression de gaz, donc entraînant le retrait de la matrice et l'ouverture des fractures naturelles (cleat). Avec l'adsorption du CO_2 , la matrice du

charbon va subir un gonflement entraînant la fermeture des fractures (cleat), conduisant à une réduction de la perméabilité de deux ordres de grandeur ou plus (*Shi and Durucan 2004 ; Cui et al. 2007*). Dans une opération CO_2 -ECBM, la désorption du méthane et l'adsorption du CO_2 conduisent à une augmentation globale du volume de gaz adsorbé et donc un gonflement de la matrice, ce qui entraîne la fermeture des fractures (cleat) et la réduction de la porosité/perméabilité du charbon.

Comprendre et quantifier les interactions gaz-charbon est un domaine de recherche important. Les prévisions relatives à la stabilité à long terme du méthane piégé exigent la connaissance de la manière dont le gaz est maintenu en place et ce qui pourrait provoquer sa libération. Pour *Saghafi et al. (Saghafi et al. 2007)*, le charbon *in situ* contient du gaz dans la phase adsorbée sur les surfaces des micropores et dans la phase libre comprimé à l'intérieur des macropores. De leur côté, *Bustin et Clarkson* estiment que le méthane des gisements houillers existe sous différents états : (1) sous forme de molécules adsorbées à l'intérieur des micropores, (2) en tant que gaz piégé dans la matrice de porosité, (3) sous forme de gaz libre, et (4) en tant que soluté dans l'eau à l'intérieur des fractures du charbon (*Bustin and Clarkson 1998*). Parmi ceux-ci, l'adsorption (un processus physico-chimique complexe qui consiste à une condensation de gaz sur les surfaces libres) dans les micropores compte pour 95 à 98% du gaz dans la veine de charbon (*White et al. 2005*). L'adsorption est donc la principale méthode d'occupation de gaz pour les veines de charbon (*White et al. 2005 ; Saghafi et al. 2007*). Cependant, l'adsorption aurait un effet plus prononcé sur la capacité de stockage du CO_2 dans des veines de charbon que les autres mécanismes de stockages tels que l'occupation de gaz libre dans l'espace poreux ou la dissolution, surtout à basse pression.

Rappelons que pour le charbon, la plupart de son espace est rempli par le méthane au fil du temps sous forme adsorbée en raison de son affinité pour le charbon. Cependant, d'autres gaz ayant beaucoup plus d'affinité pour les charbons pourraient le déplacer. C'est le cas du CO_2 qui est adsorbé préférentiellement. Le méthane peut donc être déplacé par d'autres adsorbats comme le CO_2 . Cela permet le stockage du CO_2 (injecté dans du charbon) et la production du méthane, qui est une source d'importante d'énergie. Les recettes du méthane produit peuvent d'ailleurs compenser environ 50% des coûts associés à la capture et au stockage du CO_2 (*Dave et al. 1990 ; Gale and Freund 2001 ; Massarotto et al. 2006*). Selon *Krooss et al. (2002)*, une molécule de méthane permet le stockage d'environ deux molécules de CO_2 . Cela est dû à la plus grande affinité du charbon pour le CO_2 que pour le méthane. Pour *Hall et al. (1994)*, ce rapport d'échange serait encore plus élevé dans des conditions de pressions correspondantes à celles du CO_2 très dense.

Afin de comprendre la migration de gaz dans le réservoir, les modèles d'adsorption de gaz sont nécessaires. Différents modèles ont été étudiés pour décrire l'adsorption de gaz pur et de gaz mixte dans le charbon. C'est le cas de *Pan et Connell (2009)* qui ont présenté des travaux de simulation en utilisant plusieurs approches pour représenter l'adsorption de gaz : le modèle d'adsorption de Langmuir généralisé (ELM i.e. Extended Langmuir Model), le modèle d'adsorption idéale de solution (IAS i.e. Ideal Adsorption Solution) et l'équation d'état bidimensionnelle (2D EOS, i.e. Two-Dimensional Equation Of State). Ceux-ci ont conclu que l'ampleur de la différence entre les modèles est entre autre dépendante du gonflement du charbon et des conditions d'exploitation comme la pression d'injection. C'est le cas aussi d'autres modèles d'adsorption étudiés pour l'adsorption de gaz mixte sur les charbons aux conditions du réservoir (*DeGance 1992 ; Zhou et al. 1994 ; Clarkson and Bustin 2000 ; Fitzgerald et al. 2005*). Puisque le modèle de Langmuir généralisé n'est pas toujours correct du point de vu thermodynamique et sous réserve d'erreurs importantes pour l'adsorption mixte de gaz (*Do 1998*), le modèle IAS a été mis en œuvre dans plusieurs simulateurs (exemple de SIMED II). Cependant, le modèle IAS pour une adsorption de gaz mixte requiert

un modèle d'adsorption pour un gaz pur. Ainsi, l'imprécision du modèle d'adsorption de gaz pur se propage au dépend du calcul d'adsorption de gaz mixte et donc les prédictions du modèle IAS dépendent fortement du choix du modèle d'adsorption de gaz pur (*Clarkson and Bustin 2000*).

Bien que ces études ont montré que les modèles d'adsorption, tels que 2D EOS et l'IAS ont une plus grande précision dans la prédiction de l'adsorption mixte de gaz que le modèle de Langmuir généralisé, la plupart des simulateurs de réservoirs (*Arri and Yee 1992 ; Fitzgerald et al. 2005 ; Pan and Connell 2007 ; Pan and Connell 2009*) utilisés pour la séquestration de CO_2 dans le charbon utilisent le modèle de Langmuir et Langmuir généralisé pour une adsorption de gaz pur et de gaz mixte respectivement, à cause de leur simplicité. Les simulateurs de réservoir à charbon existants sont basés sur des descriptions similaires des processus physiques, tels que les modèles de Langmuir et de Langmuir généralisé pour une adsorption de gaz pur et de gaz mixte (*Law et al. 2002*).

Dans le chapitre 4, la présence d'un seul gaz dans le massif du charbon a été considérée, donc l'isotherme de Langmuir pour un seul gaz a été utilisée. Mais dans le cas de plusieurs gaz, l'isotherme de Langmuir utilisée au chapitre 4 ne sera plus adaptée. Il va falloir faire appel à une autre isotherme : l'isotherme de Langmuir généralisée. Dans ce chapitre, nous donnons un rappel de cette isotherme de Langmuir généralisée que nous utiliserons ainsi que le font la plupart des simulateurs des réservoirs. Nous supposons un charbon saturé en eau et en méthane (généralement sous forme adsorbée) et nous injecterons du CO_2 . Nous utiliserons donc l'isotherme de Langmuir dans le cas particulier de deux gaz (CO_2 et CH_4) pour établir une nouvelle loi de porosité eulérienne. Quelques résultats théoriques seront présentés. Le nouveau modèle de porosité sera aussi implémenté dans le Code_Aster pour nos simulations numériques. Uniquement quelques résultats 1D sous Code_Aster seront donnés étant donné les limites de ce code pour la prise en compte des variations simultanées des pressions des deux gaz (CO_2 et CH_4). Les résultats 1D ne prendront donc pas en compte la diminution de la pression du CH_4 suite à sa désorption. Un code de transport réactif, HYTEC (code couplé chimie-transport, développé par Mines ParisTech) est utilisé par la suite pour nous permettre de gérer ces variations simultanées des pressions du CO_2 et du CH_4 . Quelques résultats de calculs sous HYTEC seul seront donnés, et par la suite une description de la technique de couplage entre les deux codes (Code_Aster – HYTEC) sera donnée afin de simuler l'injection de CO_2 et la récupération assistée du méthane CH_4 .

Ce travail de couplage entre Code_Aster et HYTEC pour l'étude d'une injection du CO_2 dans le charbon avec une récupération assistée du méthane CH_4 , est un projet en collaboration avec l'Ecole des Mines ParisTech de Fontainebleau (développeur du code HYTEC).

5.2. Modélisations sous Code_Aster avec l'isotherme de Langmuir généralisée

5.2.1. Isotherme de Langmuir généralisée

Historiquement, les modèles simples d'isotherme d'adsorption ont été utilisés pour représenter le comportement d'adsorption de gaz purs et de mélanges gazeux dans les charbons. Celui de Langmuir généralisé est utilisé presque exclusivement dans les études dans la littérature (*Arri and Yee 1992 ; Pan and Connell 2009*), bien que le modèle IAS a également été utilisé (*Myers and Prausnitz 1965 ; Stevenson et al. 1991 ; Pan and Connell 2009*). Ces deux modèles fonctionnent bien pour une adsorption de solutions idéales, mais ne sont pas capables de traiter les non-idéalités dans la phase adsorbée avec précision. Dans notre

approche, nous supposons que le CO_2 et le méthane CH_4 sont des gaz parfaits et leur mélange un gaz parfait. Cela nous permet donc d'utiliser le modèle de Langmuir généralisé pour nos simulations numériques. Pour les mélanges gazeux, l'isotherme d'adsorption de Langmuir est donnée pour un constituant i par (Arri and Yee 1992) :

$$\theta_i = \frac{w_i}{L_i} = \frac{B_i P_g y_i}{1 + \sum_{j=1}^N B_j P_g y_j} \quad (5-1)$$

Dans l'équation (5-1) :

- w_i est la quantité de la composante i adsorbée
- L_i et B_i sont les constantes de Langmuir pour la composante i
- P_g la pression totale de gaz dans la matrice
- y_i la fraction de mole de la composante i dans la phase gazeuse
- N le nombre de composantes de gaz dans le mélange gazeux

Les valeurs de L_i et B_i étant déterminées à partir du gaz pur, la relation donnée par l'équation (5-1) permettra donc de prédire uniquement l'adsorption d'un mélange gazeux pur.

L'isotherme d'adsorption combinée Langmuir-Freundlick (proposé par Sips en 1948), fait intervenir un paramètre η représentant l'hétérogénéité du matériau. Elle est donnée pour un mélange gazeux par :

$$\theta_i = \frac{w_i}{L_i} = \frac{(B_i P_g y_i)^{\eta_i}}{1 + \sum_{j=1}^N (B_j P_g y_j)^{\eta_j}} \quad (5-2)$$

L'isotherme de Langmuir généralisé a été utilisée par certains auteurs sous forme de quantité absolue du gaz adsorbé n_a (Fitzgerald et al. 2005 ; Pan and Connell 2007) :

$$n_{i,a} = \frac{L_i B_i P_g y_i}{1 + \sum_{j=1}^N B_j P_g y_j} \quad (5-3)$$

Où $n_{i,a}$ est la quantité absolue de la composante i adsorbée, L_i et B_i les constantes de Langmuir pour la composante i . Cette formulation peut être aussi écrite sous forme de volume adsorbé V_a (De Silva et al. 2012 ; Pan and Connell 2009) :

$$V_{i,a} = \frac{V_{L,i} B_{L,i} P_g y_i}{1 + \sum_{j=1}^N B_{L,j} P_g y_j} \quad (5-4)$$

$V_{i,a}$ est le volume de gaz i adsorbé par unité de masse du charbon, $V_{L,i}$ est le volume de Langmuir du gaz i et $B_{L,i}$ (ou $1/P_{L,i}$) l'inverse de la pression de Langmuir du gaz i .

Par analogie avec les équations 9 à 12 de l'article (chapitre 4), nous pouvons aussi réécrire l'équation de Langmuir généralisé sous forme de déformation volumique ε_V , donnée pour une composante i par :

$$\varepsilon_{i,V} = \frac{\varepsilon_{L,i} \beta_{L,i} P_g y_i}{1 + \sum_{j=1}^N \beta_{L,j} P_g y_j} \quad (5-5)$$

Où $\varepsilon_{i,V}$ est la déformation volumique de sorption due à la composante i , $\varepsilon_{L,i}$ (déformation volumique de Langmuir) et $\beta_{L,i}$ les paramètres de Langmuir de la composante i . Pour un seul gaz (c'est-à-dire $N = 1$), y_i sera égal aussi à 1 et on aura donc :

$$\varepsilon_V = \frac{\varepsilon_L \beta_L P_g}{1 + \beta_L P_g} \quad (5-6)$$

On retrouve bien l'isotherme d'adsorption de Langmuir pour un seul gaz dans sa formulation de déformation volumique de sorption.

Nous utiliserons donc l'équation (5-5) dans le paragraphe suivant pour établir une loi de porosité prenant en compte l'adsorption du CO_2 et la désorption du CH_4 .

➤ Calcul des fractions de moles des différentes composantes du mélange gazeux

La pression partielle P_i du $i^{\text{ème}}$ composante gazeuse est reliée à la pression totale P par la relation d'un mélange de gaz parfaits :

$$P_i = P_g y_i \quad (5-7)$$

Les fractions de moles y_i des différentes composantes en phase gazeuse sont telles que :

$$\sum_{i=1}^N y_i = 1 \quad (5-8)$$

Par rapport aux équations (5-7) et (5-8), la pression totale de gaz est égale à la somme de toutes les pressions partielles :

$$P_g = \sum_{i=1}^N P_i = \sum_{i=1}^N P_g y_i \quad (5-9)$$

On obtient alors la fraction de mole y_i du gaz i donnée par :

$$y_i = \frac{P_i}{P_g} = \frac{n_i}{n} \quad (5-10)$$

Où n_i est le nombre de moles du gaz i dans le mélange gazeux et n le nombre total de moles du mélange gazeux.

5.2.2. Loi d'évolution de la porosité Eulérienne

Dans cette partie, nous supposons que le massif du charbon est initialement saturé en méthane CH_4 et nous injectons du CO_2 pour la récupération du premier gaz (CH_4). Nous sommes donc en présence de deux gaz lors de l'injection. Dans l'équation (5-5), i sera donc soit le CO_2 soit le CH_4 , et N sera égal à 2. Ce qui simplifie donc cette dernière équation. En omettant l'indice L des paramètres de Langmuir, la déformation volumique de sorption sera donc donnée par :

- Pour le CO_2

$$\varepsilon_{CO_2,V} = \frac{\varepsilon_{CO_2} \beta_{CO_2} P_g y_{CO_2}}{1 + \beta_{CO_2} P_g y_{CO_2} + \beta_{CH_4} P_g y_{CH_4}} \quad (5-11)$$

- Pour le CH_4

$$\varepsilon_{CH_4,V} = \frac{\varepsilon_{CH_4} \beta_{CH_4} P_g y_{CH_4}}{1 + \beta_{CO_2} P_g y_{CO_2} + \beta_{CH_4} P_g y_{CH_4}} \quad (5-12)$$

Pour établir notre nouveau modèle, nous nous basons toujours sur l'équation (2-25) du chapitre 2 (*Code_Aster Document R7.01.11 ; Coussy 1995 ; Giraud 2001*) :

$$d\varphi = (b - \varphi) \left(d\varepsilon_v - 3\alpha_0 dT + \frac{1}{K_s} dP_g - \frac{S_l}{K_s} dP_c \right) \quad (5-13)$$

Nous procédons aussi de la même façon que dans le cas du premier modèle (injection simple du CO_2 , voir chapitre 4) afin de prendre en compte le phénomène de sorption. La seule différence ici est que nous sommes en présence de deux gaz dont l'un sera adsorbé, le CO_2 et l'autre désorbé, le méthane CH_4 . En suivant toujours l'approche de Palmer et Mansoori (*Palmer and Mansoori 1998*), on introduit dans l'équation (5-13) la sorption suivant une approche analogue à la variation de déformation volumique par variation d'unité de température ou de pression :

- D'une part pour l'adsorption du CO_2

$$d\varepsilon_{CO_2,V} = - \frac{d}{dP_g} \left(\frac{\varepsilon_{CO_2} \beta_{CO_2} P_g y_{CO_2}}{1 + \beta_{CO_2} P_g y_{CO_2} + \beta_{CH_4} P_g y_{CH_4}} \right) dP_g \quad (5-14)$$

- Et d'autre part pour la désorption du méthane CH_4

$$d\varepsilon_{CH_4,V} = \frac{d}{dP_g} \left(\frac{\varepsilon_{CH_4} \beta_{CH_4} P_g y_{CH_4}}{1 + \beta_{CO_2} P_g y_{CO_2} + \beta_{CH_4} P_g y_{CH_4}} \right) dP_g \quad (5-15)$$

Soit donc au total :

$$d\varepsilon_v = \frac{d}{dP_g} \left(\frac{(\varepsilon_{CH_4} \beta_{CH_4} y_{CH_4} - \varepsilon_{CO_2} \beta_{CO_2} y_{CO_2}) P_g}{1 + (\beta_{CO_2} y_{CO_2} + \beta_{CH_4} y_{CH_4}) P_g} \right) dP_g \quad (5-16)$$

Avec :

$$\begin{cases} y_{CO_2} = \frac{P_{CO_2}}{P_g} \\ y_{CO_2} + y_{CH_4} = 1 \\ P_g = P_{CO_2} + P_{CH_4} \end{cases} \quad (5-17)$$

Où P_{CO_2} et P_{CH_4} sont respectivement la pression partielle du CO_2 et du méthane CH_4 , P_g la pression totale du gaz dans le massif. L'introduction de l'équation (5-16) dans (5-13) donne alors :

$$d\varphi = (b - \varphi) \left(d\varepsilon_v - 3\alpha_0 dT + \left(\frac{1}{K_s} + \frac{d}{dP_g} \left(\frac{(\varepsilon_{CH_4} \beta_{CH_4} y_{CH_4} - \varepsilon_{CO_2} \beta_{CO_2} y_{CO_2}) P_g}{1 + (\beta_{CO_2} y_{CO_2} + \beta_{CH_4} y_{CH_4}) P_g} \right) \right) dP_g - \frac{S_l}{K_s} dP_c \right) \quad (5-18)$$

L'équation (5-18) prend ainsi en compte les phénomènes d'adsorption du CO_2 et de désorption du CH_4 . Celle-ci sera aussi implémentée dans le Code_Aster (EDF) pour effectuer des simulations numériques. Pour prendre en compte les variations de la perméabilité avec la porosité, nous utiliserons toujours l'équation (3-20) du chapitre 3 (*McKee et al. 1987 ; Liu et al. 1999 ; Cui and Bustin 2005*) :

$$\frac{k}{k_0} = \left(\frac{\varphi}{\varphi_0} \right)^3 \quad (5-19)$$

5.2.3. Calculs théoriques

Comme dans le chapitre 4, cette partie se consacre à l'évolution théorique de la porosité et de la perméabilité du charbon avec l'augmentation de la pression partielle du CO_2 . En supposant donc qu'il n'y a aucune diffusion ni d'échange de masse fluide, la loi de la porosité (5-18) devient :

$$d\varphi = (b - \varphi) \left(\frac{1}{K_s} + \frac{d}{dP_g} \left(\frac{(\varepsilon_{CH_4} \beta_{CH_4} y_{CH_4} - \varepsilon_{CO_2} \beta_{CO_2} y_{CO_2}) P_g}{1 + (\beta_{CO_2} y_{CO_2} + \beta_{CH_4} y_{CH_4}) P_g} \right) \right) dP_g \quad (5-20)$$

Soit donc :

$$\varphi^+ = b - (b - \varphi^-) \exp \left(\frac{\frac{P_g^+ - P_g^-}{K_s} - \frac{(\varepsilon_{CH_4} \beta_{CH_4} y_{CH_4}^+ - \varepsilon_{CO_2} \beta_{CO_2} y_{CO_2}^+) P_g^+}{1 + (\beta_{CO_2} y_{CO_2}^+ + \beta_{CH_4} y_{CH_4}^+) P_g^+}}{\frac{(\varepsilon_{CH_4} \beta_{CH_4} y_{CH_4}^- - \varepsilon_{CO_2} \beta_{CO_2} y_{CO_2}^-) P_g^-}{1 + (\beta_{CO_2} y_{CO_2}^- + \beta_{CH_4} y_{CH_4}^-) P_g^-}} \right) \quad (5-21)$$

Les signes (+) et (-) désignant respectivement les instants actuels et précédents, avec les identités suivantes :

$$\begin{cases} y_{CO_2}^+ = \frac{P_{CO_2}^+}{P_g^+}, y_{CO_2}^- = \frac{P_{CO_2}^-}{P_g^-}, y_{CH_4}^+ = \frac{P_{CH_4}^+}{P_g^+}, y_{CH_4}^- = \frac{P_{CH_4}^-}{P_g^-} \\ y_{CO_2}^+ + y_{CH_4}^+ = 1, y_{CO_2}^- + y_{CH_4}^- = 1 \\ P_g^+ = P_{CO_2}^+ + P_{CH_4}^+, P_g^- = P_{CO_2}^- + P_{CH_4}^- \end{cases} \quad (5-22)$$

Du point de vu physique, la récupération du CH_4 des veines de charbon implique la diminution de sa pression. Dans le cadre d'une récupération améliorée par injection du CO_2 , la pression du méthane diminuera donc au profit de celle du CO_2 . Nous avons supposé dans ce cas théorique, comme cela sera aussi le cas avec nos simulations numériques 1D avec le Code_Aster, que la pression du méthane ne diminue pas au cours de l'injection du CO_2 . Cependant, étant donné que les fractions de mole sont liées à la pression totale de gaz et que la pression partielle du CO_2 P_{CO_2} varie, celles-ci vont varier simultanément. On a supposé une pression initiale de CH_4 de 3 MPa dans le réservoir du charbon. A chaque variation de la pression partielle P_{CO_2} du CO_2 , les fractions de moles seront données par $y_{CH_4} = 3/(3 + P_{CO_2})$ et $y_{CO_2} = P_{CO_2}/(3 + P_{CO_2})$.

La Figure 54a donne les variations des fractions de moles en fonction des variations de la pression partielle du CO_2 , sans diminution de la pression de CH_4 . Cette figure nous montre une diminution de la fraction de mole du CH_4 au profit de celle du CO_2 , due à l'augmentation de la pression partielle de CO_2 . Les deux fractions de mole sont égales pour une pression partielle de CO_2 égale à celle du CH_4 c'est-à-dire 3 MPa. Mais dans le cas où la diminution de la pression du CH_4 (suite à sa désorption) est prise en compte, cette égalité entre les fractions de moles pourrait avoir lieu pour des pressions partielles inférieures à 3 MPa. En supposant par exemple que tout le méthane sera désorbé pour une pression de CO_2 de 7 MPa (i.e., $P_{CH_4} = 0$ pour $P_{CO_2} = 7$ MPa), cette égalité des fractions de moles de CO_2 et de CH_4 a lieu autour de 2 MPa (Figure 54b).

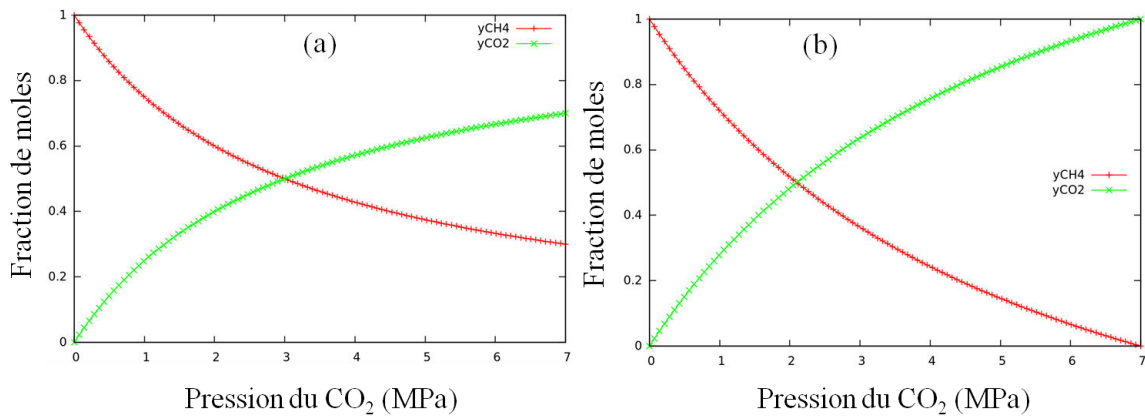


Figure 54. L'évolution des fractions de moles de CO_2 et de CH_4 en fonction de la pression partielle du CO_2 : sans diminution de P_{CH_4} (a) et avec diminution de P_{CH_4} (b).

Les valeurs des paramètres de Langmuir utilisées ici sont en partie celles mentionnées dans le Tableau 3 du chapitre 3. Ce sont les valeurs utilisées par Harpalani et Mitra pour les charbons

du bassin Illinois et du bassin de San Juan (*Harpalani and Mitra 2010*), et celles utilisées par Robertson et Christiansen pour les charbons Subbituminous et High-volatile bituminous (*Robertson et Christiansen 2007*). Ces valeurs sont résumées dans le Tableau 9. On va donc considérer quatre types de charbons différents par leurs paramètres de sorption de Langmuir (nous supposons que les autres propriétés sont les mêmes).

Tableau 9. Les paramètres de Langmuir utilisés dans le cas CO_2 - CH_4 .

Auteurs (sources)	Type charbon	Gaz	ε_L (%)	β_L (MPa ⁻¹)
<i>Harpalani and Mitra 2010</i>	Bassin Illinois	CO_2	2,838	0,4902
		CH_4	1,005	0,2487
	Bassin San Juan	CO_2	1,650	0,4902
		CH_4	1,075	0,2410
<i>Robertson and Christiansen 2007</i>	Subbituminous	CO_2	3,527	0,2612
		CH_4	0,931	0,1637
	High-volatile bituminous	CO_2	1,559	0,2612
		CH_4	0,765	0,1637

En utilisant les équations (5-11) et (5-12), les déformations volumiques de gonflement (pour le CO_2) et de retrait (pour le CH_4) dues uniquement à l'augmentation de la pression de CO_2 (sans diminution de la pression de CH_4) sont données respectivement sur la Figure 55a et 55b, pour les quatre types de charbons (avec une convention de gonflement positif et de rétraction négative). Elle nous montre une diminution des déformations de retrait (pour le CH_4) quelque soit le type de charbon. Par contre pour le CO_2 , on observe une augmentation des déformations volumiques (du gonflement) avec l'augmentation de la pression de CO_2 . Ces variations s'expliquent d'une part par une adsorption massive du CO_2 (représenté ici surtout par les valeurs du paramètre de Langmuir ε_L , Tableau 9) et d'autre part par une diminution de la fraction de mole de CH_4 (i.e., désorption) au profit de celle de CO_2 (Figure 54). En supposant tout comme précédemment que tout le méthane sera désorbé pour une pression de CO_2 de 7 MPa (i.e., $P_{CH_4} = 0$ pour $P_{CO_2} = 7$ MPa), nous présentons sur les Figures 55c et 55d les mêmes variations de déformations (ceci suppose que la pression du méthane varie de 3 MPa à 0). Comparativement aux Figures 55a et 55b, la déformation volumique de gonflement (due au CO_2) est plus importante et celle du retrait (due au CH_4) plus petite par rapport au cas sans variation de la pression de CH_4 . En se référant à l'équation (5-16), la déformation volumique totale de la roche due aux deux gaz (CO_2 et CH_4) est donnée par l'équation (5-23) dont les variations en fonction de la pression partielle du CO_2 sont représentées sur la Figure 56 (en (a) sans variation de la pression de CH_4 et en (b) avec une pression de CH_4 variant de 3 MPa à 0). Cette figure nous montre une variation positive de la déformation volumique due simultanément à l'adsorption du CO_2 et la désorption du CH_4 , avec ou sans la prise en compte de la variation de la pression de CH_4 . Ceci s'explique par le fait que le gonflement matriciel dû à l'adsorption du CO_2 est très supérieur à la rétraction/contraction due à la désorption du CH_4 . On peut remarquer aussi que cette déformation est un peu plus élevée avec la variation de la pression de CH_4 , montrant l'importance de cette diminution de la pression de CH_4 (due à sa désorption) sur la déformation volumique de la roche due à la pression totale de gaz.

$$\varepsilon_v = \frac{(\varepsilon_{CH_4} \beta_{CH_4} y_{CH_4} - \varepsilon_{CO_2} \beta_{CO_2} y_{CO_2}) P_g}{1 + (\beta_{CO_2} y_{CO_2} + \beta_{CH_4} y_{CH_4}) P_g} \quad (5-23)$$

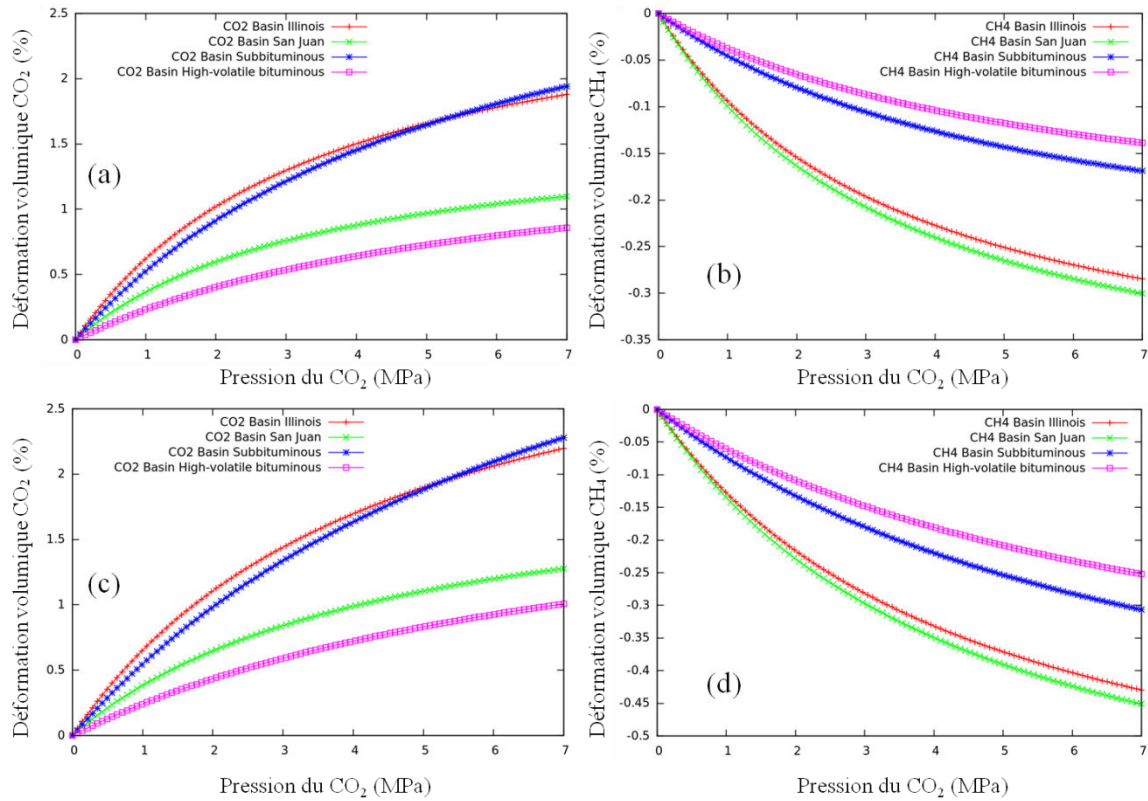


Figure 55. Profils des déformations volumiques : (a, c) pour le CO_2 , (b, d) pour le CH_4 , (a, b) sans diminution de P_{CH_4} et (c, d) avec diminution de P_{CH_4} (b).

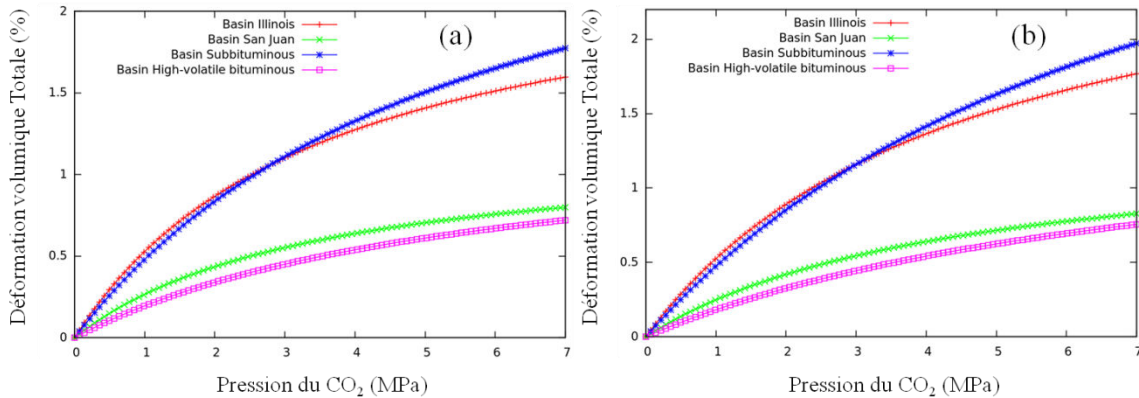


Figure 56. Profils des déformations volumiques dues simultanément aux deux gaz avec les différents types de charbon : (a) sans diminution de P_{CH_4} et (b) avec diminution de P_{CH_4} .

Afin de voir les variations théoriques de la porosité et de la perméabilité pour différents types de charbon, nous considérons pour chaque charbon, un module d'incompressibilité drainé K_0 de 1000 MPa (ce qui correspond à un module de Young drainé E_0 de 1500 MPa, avec un coefficient de Poisson drainé ν_0 de 0,25) et un coefficient de Biot b de 0,9 (pour ne pas rester sur un charbon à matrice incompressible). Une même porosité initiale φ_0 est aussi utilisée ($\varphi_0 = 0,1$) pour les quatre types de charbon. Nous présentons sur la Figure 57 l'évolution de la porosité (a, c) et du rapport de perméabilité (b, d) en fonction de la pression du CO_2 , (a, b) sans variation de la pression de CH_4 et en (c, d) avec la pression de CH_4 variant de 3 MPa à 0.

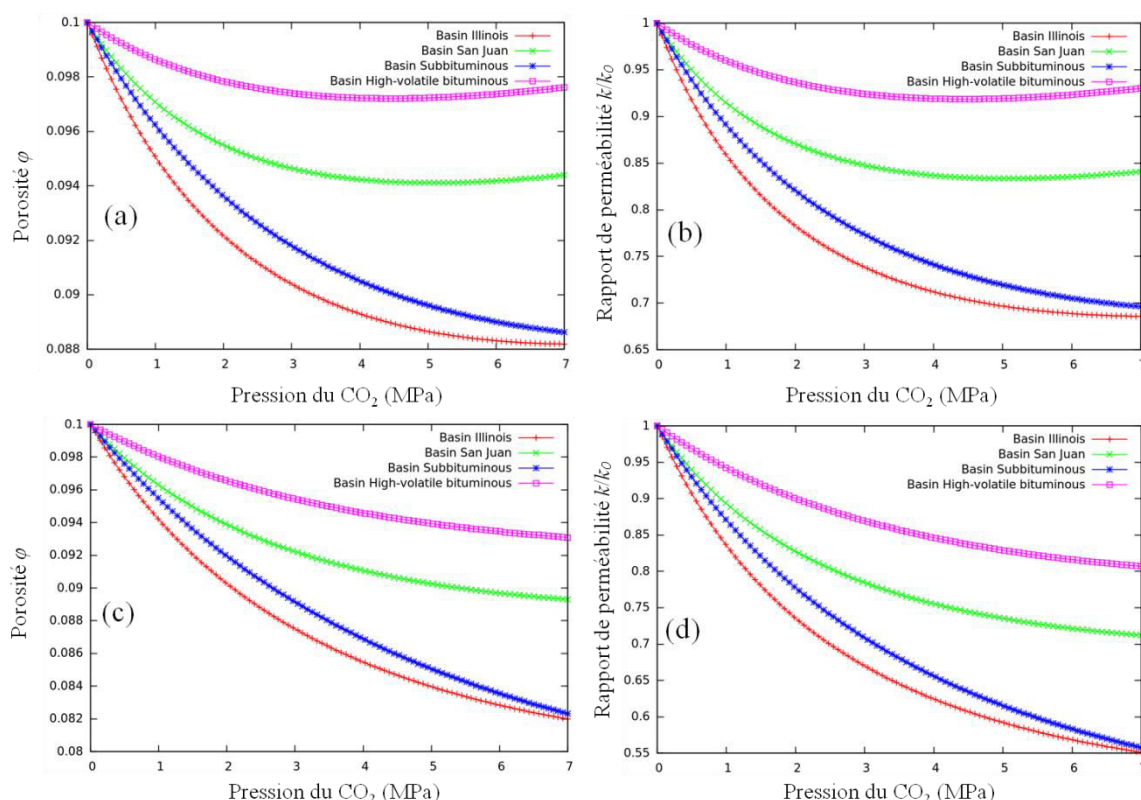


Figure 57. L'évolution de la porosité ϕ (a, c) et du rapport de perméabilité k/k_0 (b, d) : (a, b) sans diminution de P_{CH_4} et (c, d) avec diminution de P_{CH_4} (b).

Ces figures nous montrent une diminution de la porosité/perméabilité due à l'augmentation de la pression partielle de CO_2 , que ce soit dans le cas sans la variation de la pression de méthane initiale (Figs. 57a, 57b) ou dans le cas où cette dernière est supposée être nulle pour une pression de CO_2 de 7 MPa (Figs. 57c, 57d). Ceci est dû aux déformations volumiques de sorption engendrées par l'augmentation de la pression de CO_2 (Fig. 56). La matrice du charbon se gonfle donc avec l'augmentation de la pression de CO_2 . Ce gonflement bouche ainsi les pores de la matrice du charbon, ce qui entraîne une diminution de sa porosité et donc de sa perméabilité. Cependant, une diminution plus importante est observée lorsqu'on suppose que notre pression de CH_4 varie (Figs. 57c, 57d). Dans ce dernier cas, les déformations du retrait dues à la désorption de CH_4 s'affaiblissent au fur et à mesure que la pression de CO_2 augmente, au profit de celles du gonflement dues à l'adsorption de CO_2 . Les résultats d'une diminution de la porosité étaient prévisibles, car en se référant par exemple à Krooss (*Krooss et al. 2002*), une molécule de méthane permet le stockage d'environ deux molécules de CO_2 . Dans notre cas, ce sont les paramètres de Langmuir, particulièrement le paramètre ε_L (qui est deux fois plus grand pour le CO_2 que pour le CH_4 , voir Tableau 91) qui nous ont permis de gérer cette affinité doublement plus grande du charbon pour le CO_2 que pour le CH_4 . On peut remarquer que la diminution de la porosité/perméabilité est favorisée par les valeurs élevées des paramètres de l'isotherme de Langmuir, comme nous l'avons montré dans le chapitre 4.

Avec notre modèle, les calculs théoriques présentés ici nous montrent qu'au cours d'un stockage de CO_2 avec une récupération assistée du méthane dans un massif de charbon, la matrice du charbon gonfle. Ceci est dû aux déformations de gonflement causées par

l'adsorption de CO_2 qui sont largement supérieures aux déformations de retrait causées par la désorption de méthane. Ce gonflement matriciel entraîne donc la diminution de la porosité/perméabilité du charbon. Ces calculs théoriques nous ont montré aussi l'importance de la prise en compte de la diminution de la pression de méthane suite à sa désorption. Et comme nous l'avons montré dans le chapitre 4, la diminution des valeurs des paramètres pétro-physiques (porosité, perméabilité) est favorisée par les valeurs élevées des paramètres de sorption de l'isotherme de Langmuir.

Dans le paragraphe qui suit, nous implémentons dans le Code_Aster le modèle de porosité établi pour en faire des simulations numériques 1D.

5.2.4. Calculs 1D sous Code_Aster

Compte tenu de l'importance de la prise en compte de la diminution de la pression de méthane suite à sa désorption, et compte tenu des limites du Code_Aster pour une variation simultanée de deux pressions de gaz, nous ne présentons qu'un cas test de calculs 1D sous Code_Aster.

Nous modélisons et simulons donc dans cette partie, l'injection de CO_2 dans un charbon initialement saturé en eau et en méthane (généralement sous forme adsorbé) dans une situation « quasi » 1D dans le Code_Aster, en utilisant la nouvelle loi d'évolution de la porosité eulérienne (5-18).

Comme nous l'avons fait dans le cas d'une injection simple du CO_2 dans le charbon (chapitre 4), nous avons aussi implémenté l'isotherme de Langmuir généralisé dans le Code_Aster de telle sorte qu'elle peut être utilisée de façon optionnelle. Conformément à l'équation (5-18), la porosité eulérienne est calculée par éléments finis comme suit :

$$\varphi^+ = b - (b - \varphi^-) \exp \left(\begin{aligned} & -(\varepsilon_v^+ - \varepsilon_v^-) + 3\alpha_0(T^+ - T^-) + \frac{S_l}{K_s}(P_c^+ - P_c^-) - \frac{P_g^+ - P_g^-}{K_s} \\ & - \frac{(\varepsilon_{CH_4}\beta_{CH_4}y_{CH_4}^+ - \varepsilon_{CO_2}\beta_{CO_2}y_{CO_2}^+)P_g^+}{1 + (\beta_{CO_2}y_{CO_2}^+ + \beta_{CH_4}y_{CH_4}^+)P_g^+} + \frac{(\varepsilon_{CH_4}\beta_{CH_4}y_{CH_4}^- - \varepsilon_{CO_2}\beta_{CO_2}y_{CO_2}^-)P_g^-}{1 + (\beta_{CO_2}y_{CO_2}^- + \beta_{CH_4}y_{CH_4}^-)P_g^-} \end{aligned} \right) \quad (5-24)$$

Les signes (+) et (-) désignant respectivement les instants actuels et précédents, avec les identités de l'équation (5-22). Cette implémentation nous permet aussi de faire une injection simple comme dans le chapitre 4 (il suffira donc de désactiver les paramètres de Langmuir pour le méthane). Le nouveau modèle établi peut aussi nous permettre de simuler une injection mixte de gaz comme par exemple un mélange gazeux de CO_2 et de CH_4 . Mais l'inconvénient avec Code_Aster est qu'il ne sait pas gérer les variations simultanées de plusieurs gaz comme mentionné ci-dessus. C'est pourquoi nous aurons besoin d'un autre code qui nous permettra de gérer les variations de plusieurs gaz (voir plus loin). Dans cette partie donc, nous ne prenons pas en compte la diminution de la pression du CH_4 suite à sa désorption.

Comme nous l'avons expliqué aussi dans le chapitre 4, le deuxième et le troisième terme dans la fonction exponentielle sont nuls, respectivement dans les conditions isothermes et pour un milieu saturé. Le troisième et le quatrième terme dans la fonction exponentielle aussi sont simultanément nuls pour un charbon de matrice incompressible (c'est-à-dire pour un coefficient de Biot égal à 1, donc $K_s \rightarrow \infty$). Les lois de diffusion de Fick (Eqs. (4-30), (4-31))

et de Darcy (Eqs. (4-28), (4-29)) sont utilisées pour décrire le transport de fluides, et la loi de Henry (Eqs. (4-32), (4-33)) pour décrire la dissolution du CO_2 dans l'eau interstitielle. On rappelle aussi que ces lois sont déjà implémentées dans Code_Aster, et que dans Code_Aster, les calculs mécaniques sont faits par interpolation quadratique tandis que les calculs hydrauliques sont faits par interpolation linéaire.

5.2.4.1. Description du modèle

Nous considérons, tout comme dans le chapitre 4, un domaine de dimensions $200\text{ m} \times 0,5\text{ m}$ auquel nous attribuons les propriétés du charbon. La représentation schématique du maillage est donnée par la Figure 58, avec des éléments triangulaires quadratiques. Ce choix du maillage triangulaire est fait pour des raisons qui seront évoquées dans les paragraphes 5.3 et 5.4 de ce chapitre. Le maillage comporte 1500 éléments triangulaires à interpolation quadratique à 6 nœuds, soit un total de 4503 nœuds.

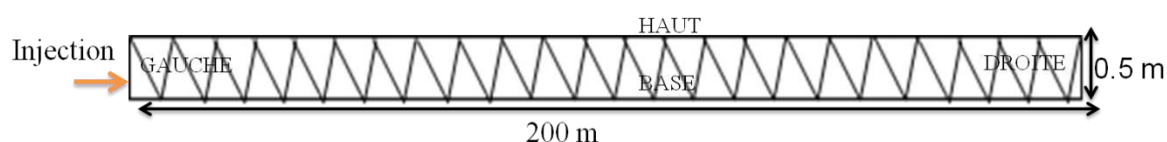


Figure 58. Maillage 1D pour une injection de CO_2 dans un charbon saturé en CH_4 et d'eau.

➤ Conditions aux limites

Voir paragraphe 4.1.3.2

➤ Paramètres du modèle

Dans ce modèle, nous considérons toujours une porosité initiale du charbon de 0,1 et une perméabilité intrinsèque de 10^{-16} m^2 . Le coefficient de Biot quant à lui est pris égal à 0,9 avec un module de Young de 1500 MPa et un coefficient de Poisson de 0,25. Ces principaux paramètres sont résumés dans le Tableau 10. On rappelle que K_l est le module de compressibilité du liquide. Pour les paramètres de Langmuir, nous utilisons les valeurs données par le Tableau 9.

Nous faisons comme dans le cas analytique quatre calculs avec les quatre différentes valeurs des paramètres de Langmuir correspondant à ceux du bassin Illinois et du bassin San Juan (*Harpalani and Mitra 2010*), et ceux du Subbituminous et du High-Volatile bituminous (*Robertson et Christiansen 2007*).

Tableau 10. Valeurs des paramètres du modèle numérique 1D.

Eau liquide	Masse volumique ($kg.m^{-3}$)	1000
	$1/K_l$	5.10^{-10}
	Viscosité ($kg.m^{-1}.s^{-1}$)	10^{-3}
Gaz (CO_2)	Masse molaire ($kg.mol^{-1}$)	0,044
	Viscosité ($kg.m^{-1}.s^{-1}$)	$1,372.10^{-5}$
Gaz dissous	Coefficient de Henry ($Pa.mol^{-1}.m^{-3}$)	3162
Paramètres homogénéisés	Perméabilité k (m^2)	10^{-16}
	Porosité	0.1
	Fick gaz ($m^2.s^{-1}$)	10^{-9}
	Fick liquide ($m^2.s^{-1}$)	10^{-11}
Paramètres de Van-Genuchten	N	1,49
	Pr (MPa)	15
	S_r	0
	S_l	0,99999
	S_{max}	0,999
Paramètres mécaniques	Module de Young E (GPa)	1,5
	Coefficient du Poisson ν	0,25
	Densité du charbon ($kg.m^{-3}$)	1100
	Coefficient de dilatation thermique α_0	10^{-5}
	Coefficient de Biot b	0.9
Etat initial	Pression d'eau (Pa)	3×10^6
	Pression de gaz (CH_4) (Pa)	3×10^6
	Température ($^{\circ}K$)	303

5.2.4.2. Résultats des calculs et discussions

La Figure 59 montre les variations de la propagation de la pression du CO_2 dans le domaine au cours du temps et la Figure 60 celles de la porosité (a, c) et du rapport de perméabilité (b, d). Ces courbes ont été obtenues avec l'utilisation des paramètres de Langmuir correspondants à ceux du bassin Illinois (voir Tableau 9). Les Figs. 60a et 60b correspondent aux profils de porosité et de perméabilité juste après le creusement (après 1 jour). Sur celles-ci, on peut voir une augmentation importante de la porosité/perméabilité due au creusement. Cependant, sur les Figs. 60c et 60d on voit une diminution de la porosité/perméabilité avec la pression de CO_2 , comme nous l'avons vu dans le cas théorique (Figure 57), même si cette diminution est moins grande par rapport au cas théorique. Cette différence est due à l'augmentation de la porosité/perméabilité après le creusement de la galerie, augmentation surtout observée près du puits.

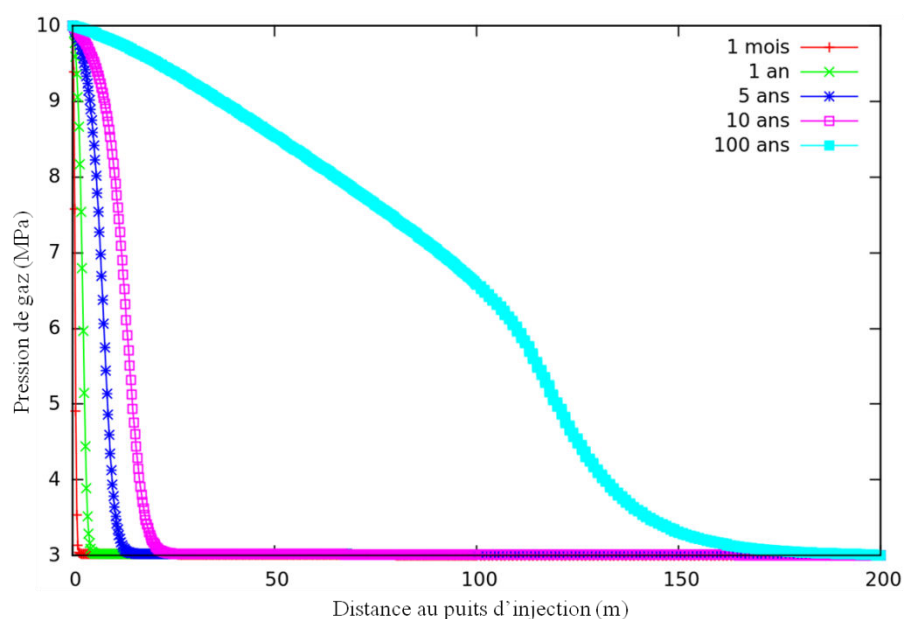


Figure 59. Propagations de la pression du CO_2 dans le domaine au cours du temps, avec les paramètres de Langmuir du bassin Illinois.

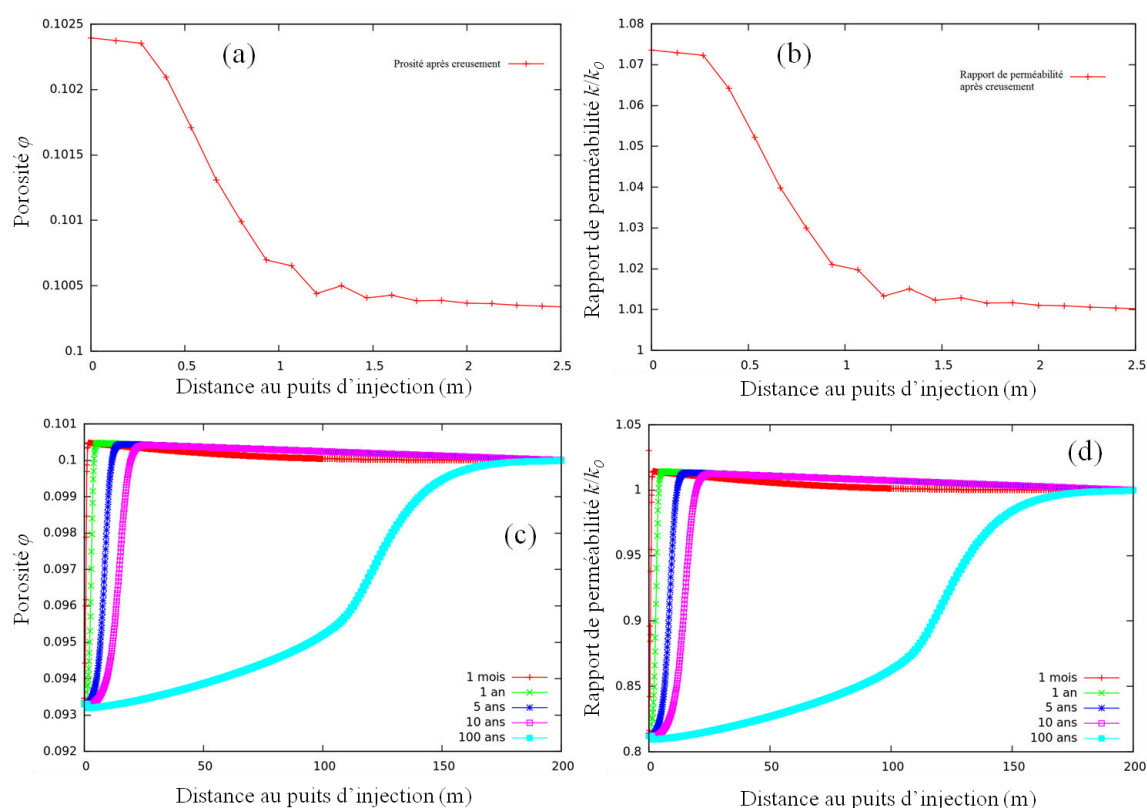


Figure 60. Variations de la porosité ϕ (a, c) et du rapport de perméabilité k/k_0 (b, d) au cours du temps, (a, b) juste après le creusement, avec les paramètres de Langmuir du bassin Illinois.

Après cette observation générale, une idée est d'utiliser les autres paramètres de Langmuir du Tableau 9 pour voir aussi leurs effets dans ce cas de deux gaz (CO_2-CH_4), sur les propriétés pétro-physiques du charbon (porosité, perméabilité).

Nous présentons sur la Figure 61 la propagation de la pression de CO_2 dans le domaine du charbon pour les quatre groupes de paramètres, pour les instants de simulation de 1 an, 5 ans, 10 ans et 100 ans. Même si la différence est très faible, les profils des pressions qui correspondent aux grandes valeurs de ε_L du CO_2 , ont un léger retard sur les autres. Il faut remarquer que les charbons du bassin Illinois et de San Juan ont les mêmes valeurs pour le paramètre de Langmuir β_L ($0,4902 \text{ MPa}^{-1}$ pour le CO_2 et $0,2487 \text{ MPa}^{-1}$ pour le CH_4) ainsi que les charbons Subbituminous et High-Volatile bituminous ($0,2612 \text{ MPa}^{-1}$ pour le CO_2 et $0,1637 \text{ MPa}^{-1}$ pour le CH_4) (Tableau 9). En regardant les variations de la porosité pour ces quatre groupes de paramètres (Figure 62), on remarque une grande diminution de la porosité pour les ε_L du CO_2 les plus élevés (3,527% pour Subbituminous, 2,838% pour le charbon du bassin Illinois, 1,650% pour le charbon du bassin San Juan et 1,559% pour le High-Volatile bituminous). Cela veut dire que les charbons avec une plus grande valeur de ε_L du CO_2 ont adsorbé beaucoup plus de CO_2 que les autres, donc gonflent beaucoup plus au cours du temps. Ce gonflement qui ferme les pores de la matrice du charbon va ainsi conduire à une diminution de la perméabilité du charbon. C'est ce qu'on observe sur la Figure 63 représentant les variations du rapport de perméabilité pour les quatre types de charbons. Cette diminution de la perméabilité va à son tour ralentir peu à peu la propagation de la pression de gaz dans le charbon. Ce qui explique les observations faites sur la Figure 61.

Comme nous l'avons annoncé dans l'introduction, dans une opération CO_2 -ECBM, la désorption du méthane et l'adsorption du CO_2 conduisent à une augmentation globale du volume de gaz adsorbé et donc à un gonflement de la matrice. Ce qui entraînera la fermeture des fractures (cleat) et la réduction de la perméabilité du charbon. Même si dans les résultats précédents la diminution de la pression de CH_4 n'est pas prise en compte, nous avons pu observer le phénomène de gonflement qui s'est traduit ici par une diminution de la porosité/perméabilité de la roche. Même si la pression de CH_4 est restée la même dans le charbon, nous avons néanmoins pris en compte la diminution de sa fraction de moles avec l'augmentation de la pression de CO_2 (donc de la pression totale de gaz).

Le cas 1D traité ici sous Code_Aster est semblable à une injection de CO_2 dans un massif de charbon dont la pression de gaz initial est non nulle, si les variations de la fraction de moles et de pression de CH_4 ne sont pas prises en compte. Notre objectif étant de simuler une injection de CO_2 avec récupération de CH_4 , et vu les limites de fonctionnalité de Code_Aster pour atteindre notre objectif, nous avons jugé bon ne pas faire le cas test 2D sous Code_Aster. Cependant, cette tentative très prometteuse du modèle 1D sous Code_Aster nous incite à trouver un code qui nous permettra de lier les calculs Thermo-Hydro-Mécaniques et chimiques avec prise en compte de la désorption du méthane (diminution de la pression du méthane).

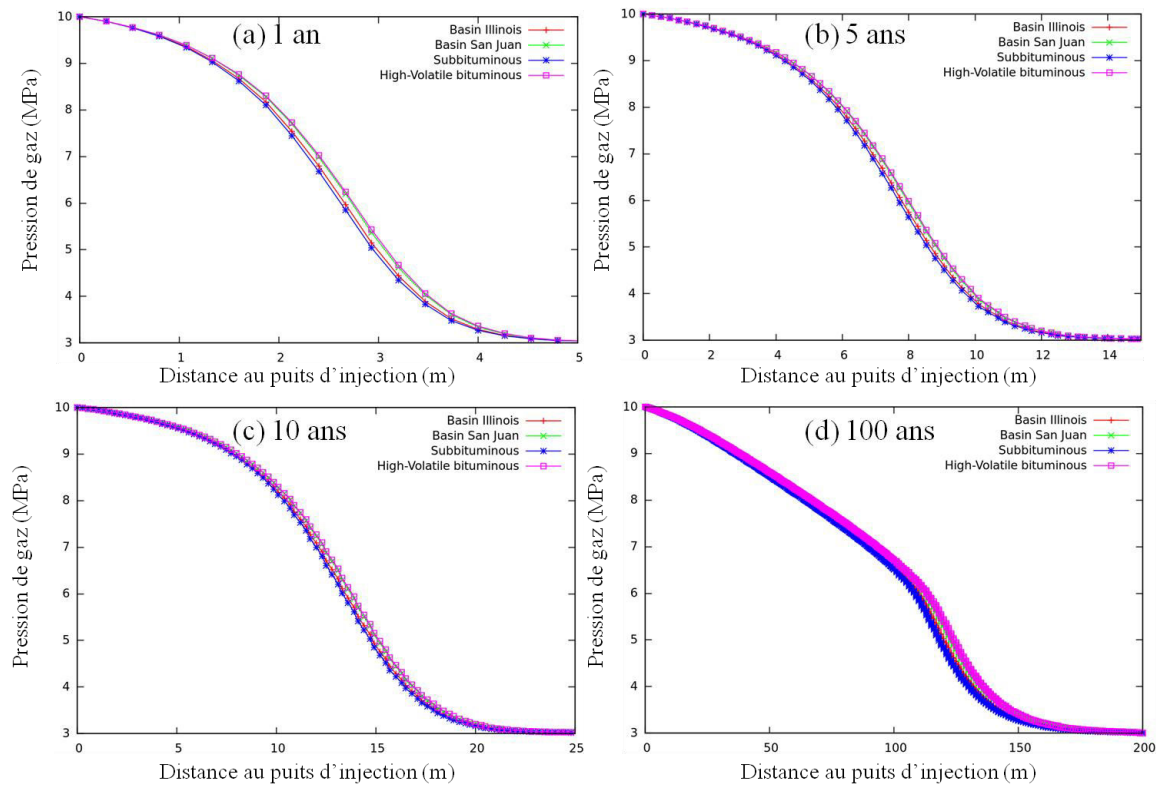


Figure 61. Propagation de la pression du CO₂ pour les quatre groupes de paramètres de Langmuir, aux instants $t = 1$ an, 5 ans, 10 ans et 100 ans.

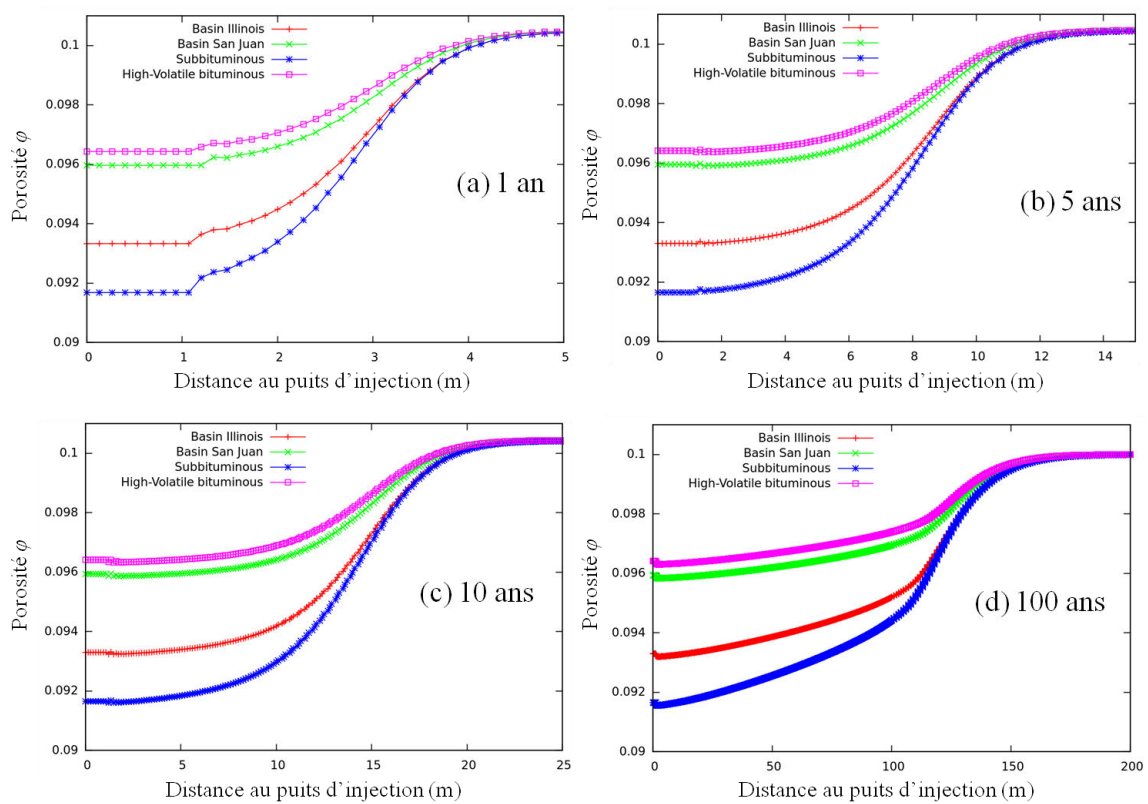


Figure 62. Variations de la porosité pour les quatre groupes de paramètres de Langmuir, aux instants $t = 1$ an, 5 ans, 10 ans et 100 ans.

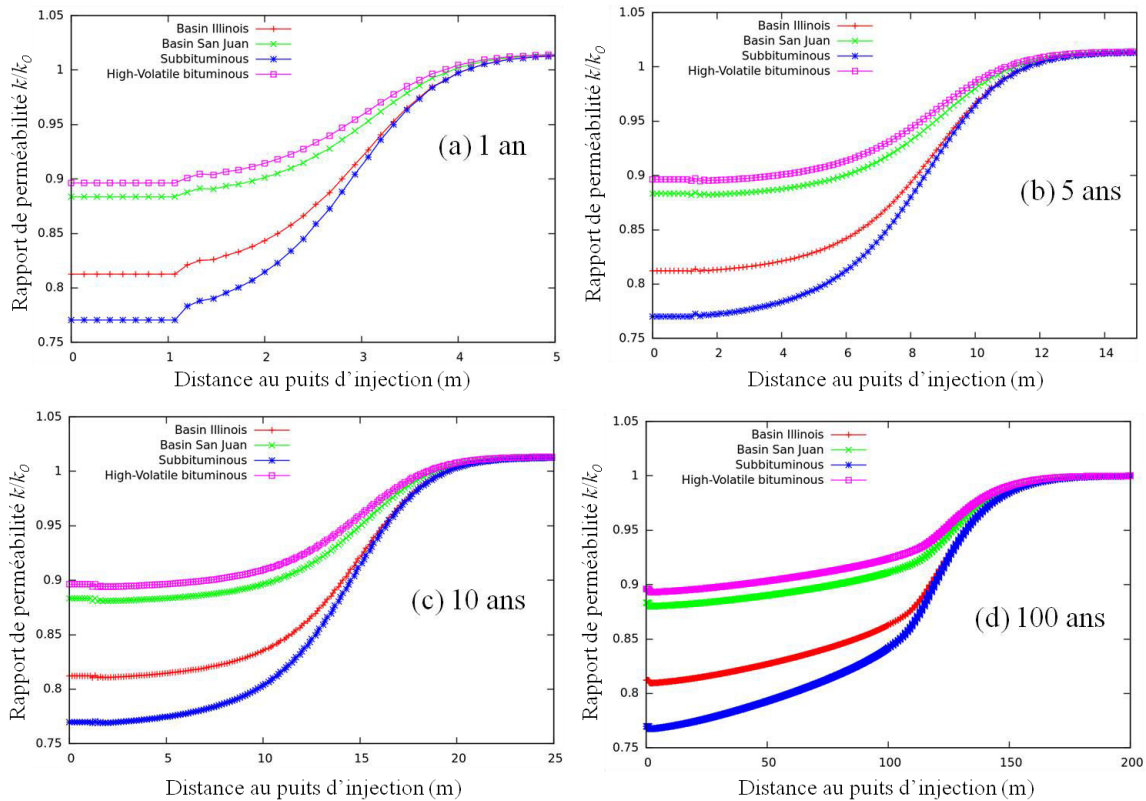


Figure 63. Variations du rapport de perméabilité k/k_0 pour les quatre groupes de paramètres de Langmuir, pour les instants $t = 1$ an, 5 ans, 10 ans et 100 ans.

5.3. Injection du CO₂ dans un massif saturé en eau et contenant du méthane CH₄ : Calculs sous HYTEC

5.3.1. Introduction

Dans cette partie du travail, nous utilisons un code de transport réactif, HYTEC (HYdrological Transport Coupled with Equilibrium Chemistry), développé par MINES ParisTech, pour simuler une injection de CO₂ dans un milieu (charbon) saturé en méthane CH₄ en vu de sa libération (désorption du méthane CH₄). Cela va nous permettra de suivre les variations de la quantité du CO₂ (qui va sans doute augmenter) dans le charbon ainsi que celle du méthane (qui va sans doute diminuer) au cours du temps. Une étude analogue a été faite par Le Gal au cours de sa thèse (*Le Gal 2012*), mais en utilisant l'eau (c'est-à-dire le lessivage du méthane par l'eau). Ce dernier avait tout d'abord montré qu'expérimentalement il était possible sous pression d'eau de libérer une quantité significative de méthane depuis le charbon. Ensuite, ses travaux de modélisation lui ont permis d'effectuer une approche à long terme de la migration du méthane libéré à travers d'anciennes structures minières et du milieu poreux environnant. Nous nous baserons sur certaines de ses hypothèses de modélisation pour en effectuer nos propres modélisations, qui ne seront plus réalisées avec l'eau mais avec le CO₂.

Dans un premier temps, nous donnerons une petite description du code HYTEC avec quelques unes des équations de transport ainsi que la base de données qu'il utilise. Dans un deuxième temps, nous décrirons le modèle de simulation 1D avec quelques résultats.

5.3.2. Description du code HYTEC avec transport réactif

5.3.2.1. Description

Le code couplé géochimie-transport HYTEC (HYdrological Transport Coupled with Equilibrium Chemistry), est l'un des codes des modèles couplés chimie - transport les plus reconnus et utilisés. C'est une plate-forme de simulation modulaire et évolutive développée par l'école des MINES ParisTech (*van der Lee et al. 2003*). Il est principalement composée de :

- Un module hydrodynamique (logiciel de transport et d'écoulement), **R2D2** (R TWO D-2 : Reactive Transport Waterflow On an odd Dim-2 grid), qui décrit l'écoulement de phases liquides et de transport d'éléments en milieu poreux fracturé, en 1,2 ou 3 dimensions.
- Un module de réaction (code de spéciation chimique), **CHESS** (CHEmical Equilibrium of Species and Surfaces), qui simule les réactions chimiques et microbiologiques au sein de chaque maille du modèle (*van der Lee 1998*). Les calculs chimiques font appel à une base de données thermodynamiques étendue qui permet d'effectuer les calculs à l'état d'équilibre. CHESS permet de décrire les réactions géochimiques au cours de l'écoulement du fluide considéré en milieu poreux. Il est possible de simuler la spéciation et la complexation d'espèces aqueuses, ainsi que les réactions à l'interface entre solide et solution : sorption, échange ionique, précipitation. La dissolution et/ou la précipitation peuvent être celles d'espèces mobiles ou immobiles. Pour ces deux types de réactions, CHESS prend en compte les réactions cinétiques (*van der Lee et al. 2003*). Les réactions de dissolution dans CHESS sont traitées comme les réactions chimiques.
- Un coupleur.

La Figure 64 montre la représentation schématique de HYTEC. Les deux modules (R2D2 et CHESS) peuvent être utilisés indépendamment de HYTEC.

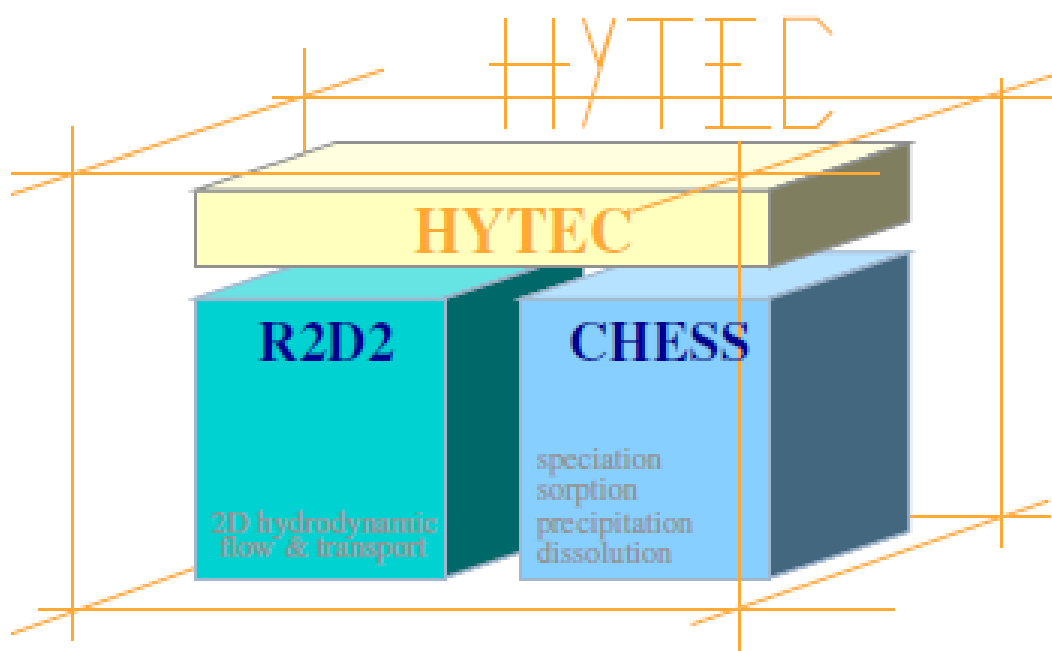


Figure 64. Schéma de HYTEC

Le code HYTEC utilise un schéma de discrétisation spatial en volumes finis adapté aux systèmes réactifs : ce schéma peut superposer exactement les lieux sur lesquels sont définies les concentrations des différentes espèces (en particulier les minéraux) et la porosité contrairement au schéma en éléments finis. Par défaut un maillage de type Voronoï est utilisé par R2D2 et permet de mailler des domaines irréguliers, éventuellement très complexe. Pour plus d'information sur HYTEC et son fonctionnement on peut se référer au site et aux rapports de l'école des mines de Fontainebleau (*van Der Lee 2005, 2007 ; De Windt et al. 2007, 2008 ; <http://pgt.geosciences.ensmp.fr/>*).

5.3.2.2. Equations de transport réactif

Les principales équations implémentées dans HYTEC sont celles hydrodynamiques (pour les milieux saturés et non saturés), des réactions chimiques (équilibre thermodynamique, contrôles cinétiques, décroissance et filiation radioactives) et celle de l'effet rétroactif de la chimie sur le transport. Nous ne donnerons ici que les équations hydrodynamiques, étant donné qu'il n'y a pas de réactions chimiques à prendre en compte dans le charbon, contrairement à d'autres roches poreuses comme les roches carbonatées. Les autres équations sont consultables par exemple dans le rapport de Laurent et al. (2007).

Pour un milieu poreux saturé, les équations d'écoulement (Darcy et écoulement transitoire) d'eau sont données par :

$$\vec{U} = -K(\omega) \vec{\text{grad}} h \quad (5-25)$$

$$S_s \frac{\partial h}{\partial t} = \text{div} \left(K(\omega) \vec{\text{grad}} h \right) \quad (5-26)$$

Où U est la vitesse de Darcy, K la perméabilité, h la charge hydraulique, S_s l'emménagement et ω la porosité.

Le transport d'éléments qui en d'écoule s'écrit comme suit :

$$\frac{\partial \omega c_i}{\partial t} + \frac{\partial \omega \bar{c}_i}{\partial t} = \text{div} \left(D(\omega) \vec{\text{grad}} c_i - c_i \vec{U} \right) \quad (5-27)$$

Où c_i et $\bar{c}_i$ représentent respectivement les concentrations mobiles en solution et les concentrations fixées, par sorption ou en tant que solide, des éléments chimiques (composantes de base). Le premier membre de cette équation (5-27) exprime donc la variation au cours du temps t de la concentration totale mobile de la composante de base i considérée. Le symbole D associe le coefficient de dispersion α et de diffusion effective D_e , soit $D = \alpha U + D_e$. Le second membre de l'équation regroupe les phénomènes de transport, à savoir le flux pour la diffusion hydrodynamique $D(\omega) \vec{\text{grad}} c_i$ et l'advection $c_i \vec{U}$. Un autre terme Q_s , indépendant de l'écoulement et représentant une source ou un puits, peut dans certains cas être ajouté (*van der Lee et Lagneau, 2004*).

Pour un milieu non saturé, les équations de l'écoulement s'obtiennent d'une manière similaire à celles en milieu saturé. L'équation de Darcy et de l'écoulement transitoire sont données dans ce cas respectivement par :

$$\vec{U} = -K(\theta)\nabla h \quad (5-28)$$

$$\text{div}(K(\theta)\nabla h) = \frac{\partial \theta}{\partial t} \quad (5-29)$$

Dans ces équations, θ est la teneur en eau définie comme le rapport du volume d'eau sur le volume de la roche.

Le transport d'éléments pour un milieu non saturé s'écrit comme suit :

$$D_e(\theta) = D_e \frac{\theta}{\omega} \quad (5-30)$$

Où D_e est le coefficient de diffusion effectif dans le milieu saturé, pondéré par la teneur en eau. La saturation S dans un milieu non saturé est définie comme la fraction mouillée de la porosité et est donnée par le rapport du volume d'eau sur le volume des pores.

Le module chimique de HYTEC repose sur un moteur de résolution de type Newton-Raphson. L'équilibre thermodynamique local est résolu selon la méthode des composantes de base s'appuyant sur les équations de bilan de masse (De Windt et al. 2005).

5.3.2.3. Base de données

La base de données thermodynamiques de CHESS (donc de HYTEC) provient de la base étendue du Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL) version 8.06. Elle contient actuellement 1651 espèces aqueuses, 93 gaz, 1122 minéraux, 118 couples rédox et 8 espèces colloïdales. Cependant, on distingue trois familles de bases de données : les bases d'Helgeson/Wolery (*chess.tdb*, *eq36.tdb* (Wolery 1992) et *tdbvit0.tdb*) pour les géochimistes purs, les bases MINTEQ/PHREEQC/WATEQ4F (*minteq.tdb*, *phreeqc.tdb* et *wateq4f.tdb*), bases de températures riche en molécules complexantes (in)organiques et les bases nucléaires, dédiées aux espèces radioactives (base du Nuclear Energy Agency-NEA (Grenthe et al. 1992), *nea.tdb*) (<http://chess.geosciences.enscm.fr/ressources/bases-de-donnees>). Cependant, il est possible dans HYTEC d'ajouter un élément ne faisant pas parti de la base. C'est le cas des espèces solides. Le mot-clef *define* devra donc être utilisé dans les fichiers d'entrée de HYTEC.

Pour plus de détails, l'on pourra consulter les documents techniques de référence de R2D2 (Lagneau 2003), de CHESS (van der Lee 1998; van der Lee et De Windt 2002) et de HYTEC (van der Lee et al. 2003; van der Lee et Lagneau 2004).

5.3.3. Calculs 1D sous HYTEC

Le modèle, comme mentionné ci-dessus, consiste en une injection d'une solution de CO₂ dans un charbon saturé en méthane. Cette simulation nous permettra de voir les variations à long terme de la quantité du CO₂ et du méthane dans la roche. Le méthane est de fait réparti entre deux phases : adsorbée et solubilisée. HYTEC ne pouvant pas nous permettre de faire une injection de CO₂ pur (CO₂ sec), ce cas de calcul n'est donc pas abordé ici. Dans les systèmes simulés, nous interdisons la formation de phase gazeuse. On note aussi que le module CHESS de HYTEC décrit les équilibres et les cinétiques d'adsorption chimique, pas l'adsorption physique comme celle du CO₂/CH₄ sur le charbon, fonction de la pression. Cependant, pour

les besoins de la simulation, la sorption du CO₂/CH₄ sur un charbon est assimilée à une réaction chimique entre les sites de sorption du charbon et le CO₂/CH₄.

5.3.3.1. Description et paramètres du modèle

Pour le calcul 1D, nous considérons un domaine quasi 1D, comme dans le cas du calcul dans Code_Aster, de 200 m sur 0,5 m. Le maillage comporte ici 750 éléments quadrangles linéaires. Contrairement au Code_Aster où les variables et inconnues s'appliquent aux nœuds des éléments, dans HYTEC, les inconnues et variables s'appliquent aux centres des volumes (Voronoi par défaut). Dans le cas d'un maillage triangulaire, certaines inconnues ou variables comme les vecteurs vitesses sont appliquées aux centres des arêtes du triangle. La version actuelle du mailleur du module R2D2 à notre disposition ne pouvant pas donner des mailles triangulaires (comme dans le cas Code_Aster) et ne pouvant pas utiliser les fichiers .MED (Modélisation et Echanges de Données), nous utilisons dans cette partie les mailles quadrangulaires. Nous donnons sur la Figure 65 un exemple de maillage de 100 m sur 0,5 m (pour ne pas montrer un maillage pas très visible sur les 200 m) avec la localisation des zones du charbon nommé ici 'zone Coal1', en vert au centre des éléments.

Pour les conditions aux limites, à gauche du maillage, '*boundary left-border*', nous injectons le CO₂ et sur les autres côtés, des conditions aux limites par défaut sont appliquées, '*default-boundary*', c'est-à-dire flux nul, gradient de transport nul, libre concentration etc.

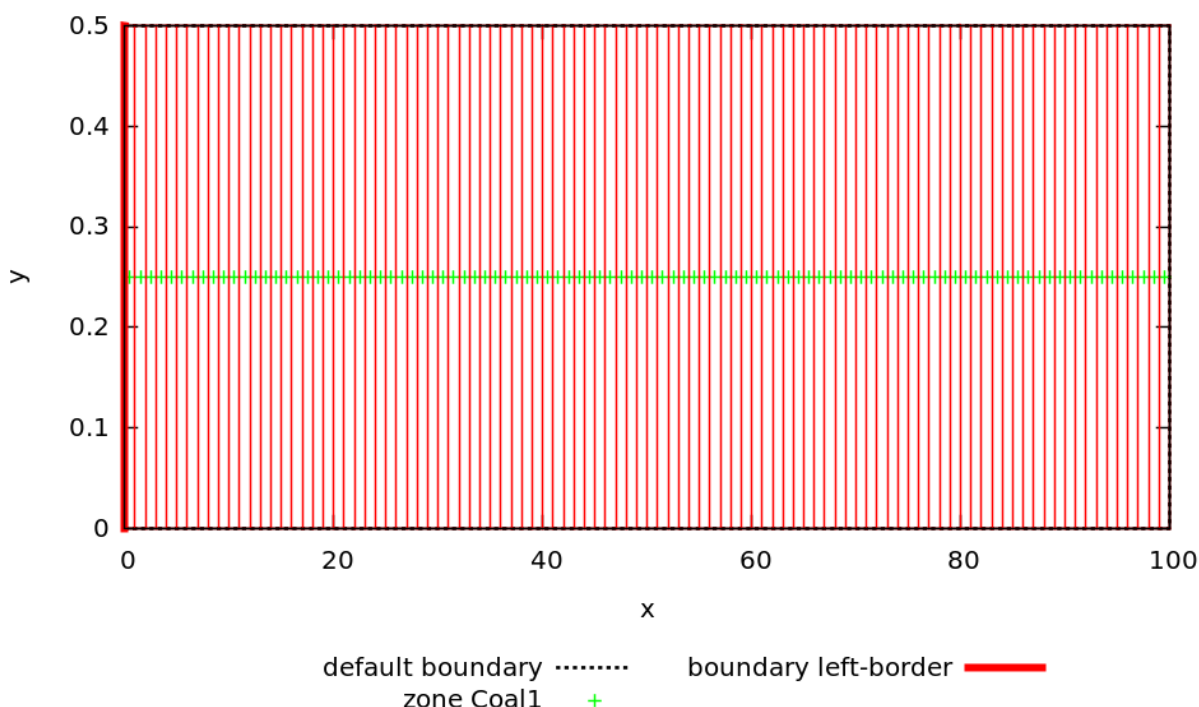


Figure 65. Exemple de maillage pour le modèle 1D avec HYTEC montrant la localisation des zones de charbon et les conditions aux limites.

Le charbon étant une espèce solide, il n'existe pas dans les bases de données de HYTEC mentionnée dans le paragraphe 5.3.2.3. Donc tout comme Le Gal (2012), nous le définissons dans notre modèle comme étant une espèce minérale, en considérant comme inconnue sa composition (c'est-à-dire que nous ne nous intéressons pas aux effets de la composition du

charbon dans nos simulations). Le charbon a pour nom 'Coal1' avec une masse volumique de 1100 kg.m⁻³ (la même que celle utilisée avec Code_Aster) et une surface spécifique de 140 m².g⁻¹ (Le Gal 2012). En considérant une porosité de 0,1, on a une concentration massique du charbon de 11 kg.l⁻¹. On définit les sites spécifiques de sorption nommés Coal1-0 pour les vides et Coal1-CH₄ pour les sites saturés en CH₄. Ces derniers étant le résultat de la réaction de l'adsorption du méthane aqueux CH₄(aq) sur les sites vides du charbon. Cette réaction d'adsorption se fait avec une constante de réaction $\log K$. La concentration en méthane dissous du charbon est fixée à 8,5 mmol.l⁻¹ (Le Gal 2012). Les sites de sorption du charbon sont définis avec une valeur de capacité d'échange de 4,57 $\mu\text{mol.m}^{-2}$, la même que celle déterminée par Le Gal (2012). Nous supposons qu'à chaque instant t , la concentration [CH₄(aq)] du méthane aqueux est égale à celle [Coal1-0] des vides, c'est-à-dire que l'on considère un site pour une molécule de CH₄.

Comme nous l'avons mentionné dans la description de HYTEC (5.3.2.1), CHESS traite les réactions de dissolution comme si c'était des réactions chimiques entre les sites de sorption et le gaz (CO₂, CH₄). Pour ces réactions, CHESS a besoin d'une constante de sorption pour chaque gaz. Ces constantes peuvent être calculées par exemple à partir de la fugacité fug de leur composant gazeux et de l'activité act de leur composant aqueux.

- Pour le CH₄, sa réaction de dissolution dans une solution aqueuse est CH₄(g) ↔ CH₄(aq), et la constante est donnée par :

$$\log K = \log \left(\frac{fug[CH_4(g)]}{act[CH_4(aq)]} \right) \quad (5-31)$$

La valeur utilisée dans notre modèle est celle déterminé expérimentalement par Le Gal durant sa thèse. Elle est de 2,45.

- Pour le dioxyde de carbone CO₂, sa réaction de dissolution dans une solution aqueuse est CO₂(g) ↔ CO₂(aq), et la constante est donnée par :

$$\log K = \log \left(\frac{fug[CO_2(g)]}{act[CO_2(aq)]} \right) \quad (5-32)$$

Mais dans ce dernier cas, parce que le CO₂ est exprimé en fonction de l'espèce chimique HCO₃⁻, c'est-à-dire CO₂(g) + H₂O ↔ HCO₃⁻ + H⁺, on aura :

$$\log K = \log \left(\frac{fug[CO_2(g)]}{act[HCO_3^-]act[H^+]} \right) \quad (5-33)$$

$$\log K = \log \left(\frac{fug[CO_2(g)]}{act[CO_2(aq)] \times act[CO_2(aq)] / act[HCO_3^-]act[H^+]} \right)$$

Dans la deuxième ligne de l'équation (5-33) on retrouve l'expression de la loi de Henry d'une part et la constante de dissociation du CO₂(aq) d'autre part, déjà renseigné dans la base de données de CHESS. Nous modifions donc cette dernière (c'est-à-dire $\log K$ de la réaction CO₂(g) - HCO₃⁻ (Eq. 5-33) qui est de 6,5 dans la base) par l'utilisation de la commande 'extend' de HYTEC, pour avoir celle qui nous intéresse (Eq. 5-32).

L'injection se fait avec une solution de CO₂(aq) de concentration 10⁻³ mol.l⁻¹ et d'une constante de sorption $\log K$ égal à 6,3. L'ensemble des paramètres utilisés est résumé dans le Tableau 11.

Tableau 11. Paramètres utilisés pour le calcul 1D avec HYTEC.

Paramètres	Valeurs	Unité
Propriétés du charbon		
Porosité	0,1	-
Masse volumique	1100	kg.m ⁻³
Surface spécifique	140	m ² .g ⁻¹
Capacité d'échange	4,57	μmol.m ⁻²
Contenu initial du charbon		
Concentration en CH ₄ (aq)	8,5×10 ⁻³	mol.l ⁻¹
LogK CH ₄ (aq)	2,45	-
Paramètres d'écoulement		
Perméabilité	10 ⁻¹²	m.s ⁻¹
Vitesse de Darcy	10 ⁻⁶	m.s ⁻¹
Coefficient de diffusion	10 ⁻¹⁰	m ² .s ⁻¹
Solution injectée		
Concentration CO ₂ (aq)	10 ⁻³	mol.l ⁻¹
LogK CO ₂ (aq)	6,3	-

5.3.3.2. Résultats et commentaires

Dans ce modèle, notre objectif est de voir comment varient les concentrations des sites vides (Coal1-0, donc où sera localisé le CO₂), des sites saturés en CH₄ (Coal1-CH₄) et du méthane aqueux CH₄(aq) dans le charbon au cours du temps. La Figure 66 montre ces différentes variations des concentrations (la concentration en Coal1-0 sur Fig. 66a, la concentration en Coal1-CH₄ sur Fig. 66b et la concentration de CH₄(aq) sur Fig. 66c) pour les instants de simulation de 1 an, 5 ans, 10 ans, 50 ans et 100 ans.

On note une augmentation de la concentration en Coal1-0 (Fig. 66a) lorsqu'on est proche du côté où l'on injecte la solution du CO₂ et une diminution de celle en Coal1-CH₄ (Fig. 66b) au cours du temps. Ces observations signifient que l'on est en train de désorber le méthane initialement contenu dans le charbon par une solution de CO₂. Ce qui diminuerait la concentration des sites saturés en méthane, Coal1-CH₄, au profit de celle des sites vides, Coal1-0. En pratique, dans notre étude ce CO₂ n'est pas réactif (il n'y a pas d'adsorption physique du CO₂ sur la matrice du charbon), c'est-à-dire que le module CHESS de HYTEC ne décrit pas son adsorption physique. Le CO₂ peut cependant se transformer en HCO₃⁻ en fonction du pH, mais n'intervient pas dans la réaction de surface sur le charbon. La concentration en CO₂(aq) reste donc constante au cours du temps. Contrairement à la concentration du CO₂ aqueux, la concentration du méthane aqueux CH₄(aq) va varier en fonction du temps. Celle-ci diminue (Fig. 66c) au cours du temps.

En résumé, on a observé une diminution des sites saturés en méthane Coal1-CH₄, une diminution de la concentration en méthane aqueux CH₄(aq) et une augmentation des sites vides Coal1-0 au cours du temps. L'injection du CO₂ pousse donc le méthane à se libérer du charbon au cours du temps, ce qui peut expliquer la diminution de sa concentration aqueuse dans le charbon, et augmente ainsi les sites vides Coal1-0, qui accueillent le CO₂ pour son piégeage.

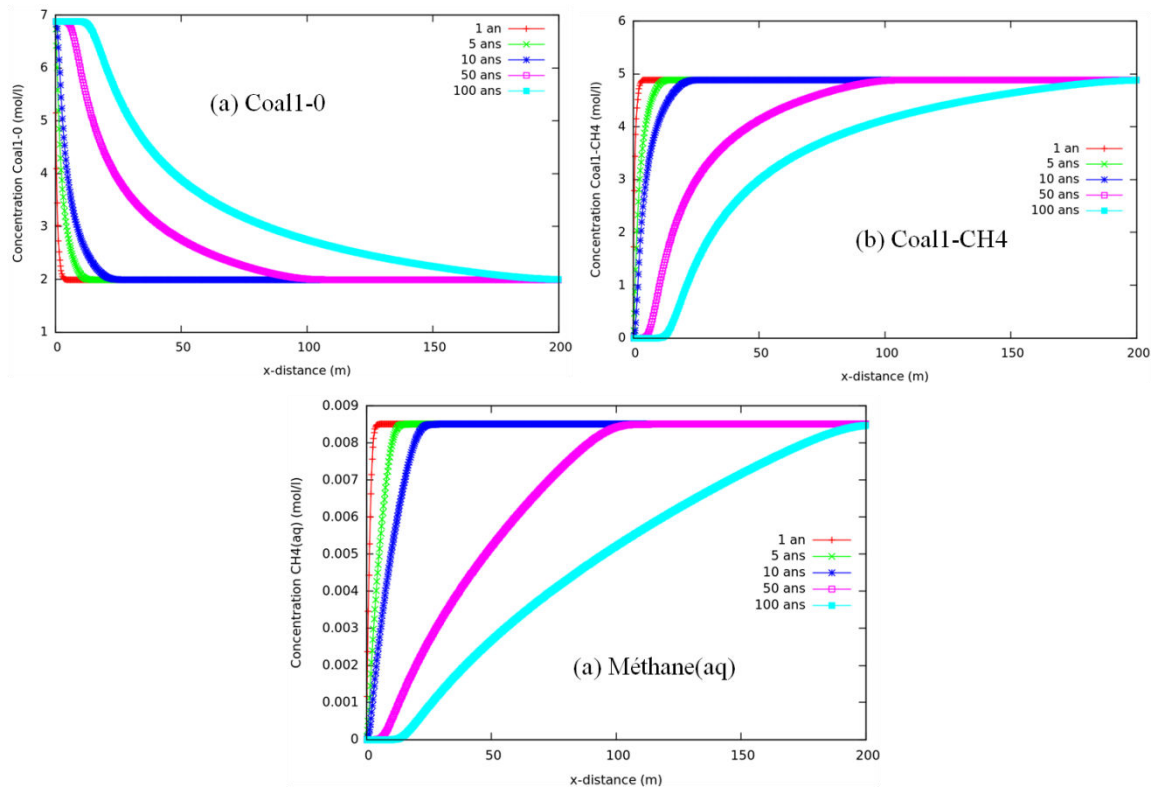


Figure 66. Les variations des concentrations en Coal1-0 (a), en Coal1-CH4 (b) en méthane aqueux (c) au cours du temps.

Après ces observations générales, nous avons fait 3 études paramétriques pour voir les effets de la porosité (5%, 10% et 20%), de la masse volumique du charbon (700 g.l^{-1} , 1100 g.l^{-1} et 1370 g.l^{-1}) et de la concentration initiale du méthane ($10^{-4} \text{ mol.l}^{-1}$, $8,5 \times 10^{-3} \text{ mol.l}^{-1}$ et $2 \times 10^{-2} \text{ mol.l}^{-1}$) sur les variations des différentes concentrations. Une quatrième étude paramétrique a été faite concernant les effets de la concentration en CO_2 de la solution d'injection ($10^{-2} \text{ mol.l}^{-1}$, $10^{-3} \text{ mol.l}^{-1}$ et $10^{-5} \text{ mol.l}^{-1}$). La quantité de CO_2 adsorbé et de CH_4 désorbé devrait dépendre de la concentration en CO_2 de la solution injectée. Mais dans cette dernière étude paramétrique, aucun effet n'a été observé, confirmant la non réactivité du CO_2 dans cette étude (il n'intervient pas dans la réaction de surface sur le charbon).

➤ Effets de la porosité (Poro) : avec une concentration massique variable

Avec le modèle, nous avons essayé d'étudier l'influence de la porosité du charbon sur les variations des concentrations. Pour ce fait, nous avons choisi trois différentes valeurs de celle-ci : 5%, 10% (celle utilisée précédemment et aussi avec Code_Aster) et 20%. Les valeurs des autres paramètres du Tableau 11 restent inchangées. Avec donc une même masse volumique (1100 g.l^{-1}), ces valeurs correspondent respectivement à une concentration massique de 22 kg.l^{-1} , 11 kg.l^{-1} et $5,5 \text{ kg.l}^{-1}$.

Remarque : relation entre porosité, masse volumique et concentration massique utilisée.

$$\frac{Masse}{1Litre} = \frac{Masse}{VolumeRoche} \times \frac{VolumeRoche}{1Litre} \quad \text{Avec} \quad \frac{VolumeRoche}{1litre} = \frac{1}{Porosit } \quad (5-34)$$

$$\frac{Masse}{1Litre} = \frac{Masse}{VolumeRoche} \times \frac{1}{Porosit }$$

On a donc concentration massique = masse volumique × l'inverse de la porosité.

Sur les Figures 67 et 68 sont représentés les effets de la porosité respectivement sur la concentration en Coal1-0 (vides) et en Coal1-CH₄ (saturé en méthane) pour différents temps de simulation. On constate que pour les charbons peu poreux, donc de concentration massique élevée, la concentration des vides Coal1-0 est beaucoup plus grande que pour les charbons plus poreux, mais varie de la même façon au cours du temps. En s'éloignant du côté d'injection du CO₂, celle-ci diminue (Fig. 67) au profit de la concentration des sites saturés en méthane Coal1-CH₄ (Fig. 68). Ceci peut être expliqué par la différence de concentration massique par unité de volume entre ces différentes valeurs de porosité pour pouvoir garder une même masse volumique. Les porosités élevées sont moins concentrées en masse que les porosités peu élevées. Le Gal (2012) au cours de sa thèse avait considéré deux porosités différentes pour le charbon (5% et 20%) avec une même masse volumique (1370 g.l⁻¹). Ce qui correspondait respectivement aux concentrations massiques de 27 et 7 kg par litre d'eau. Avec une même concentration du charbon en méthane CH₄ (0,0085 mol.l⁻¹), il lui a fallu 5000 et plus de 10000 fois de volume d'eau pour lessiver respectivement les 7 et 27 kg du même charbon dans un litre d'eau. Ce qui signifie qu'il y a beaucoup plus de sites pour un charbon de 27 kg que pour un charbon de 7 kg. Donc un besoin d'une quantité d'eau beaucoup plus grande pour lessiver 27 kg de charbon que pour lessiver 7 kg du même charbon. Nos simulations révèlent cette présence de nombreux sites pour les charbons peu poreux (concentration massique élevée) par rapport aux charbons plus poreux (concentration massique un peu plus faible).

Dans notre simulation cependant, ces différentes valeurs de porosité (donc de concentration massique) n'ont aucune influence sur la concentration en méthane aqueux CH₄(aq). Ceci s'explique par le fait que cette étude n'est qu'une simple variation de volume de la roche.

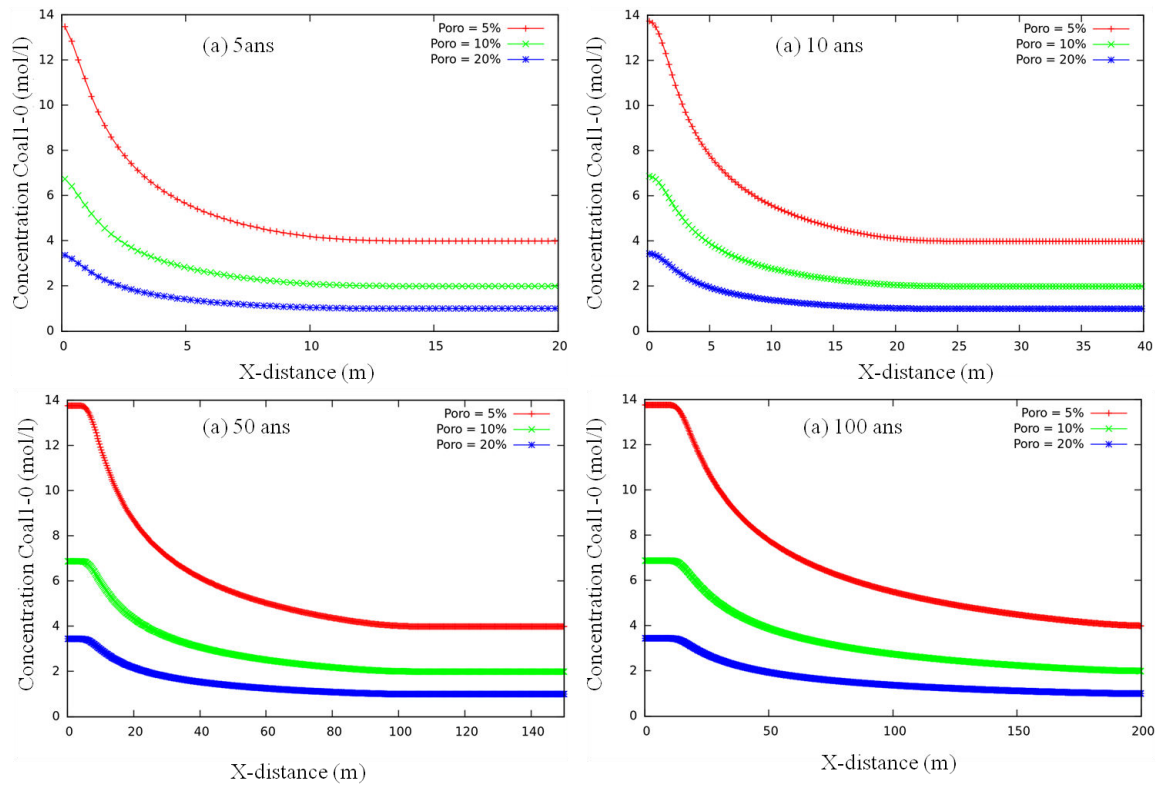


Figure 67. Effets de la porosité sur la concentration en Coal1-0 pour différents instants de simulation : avec une concentration massique variable.

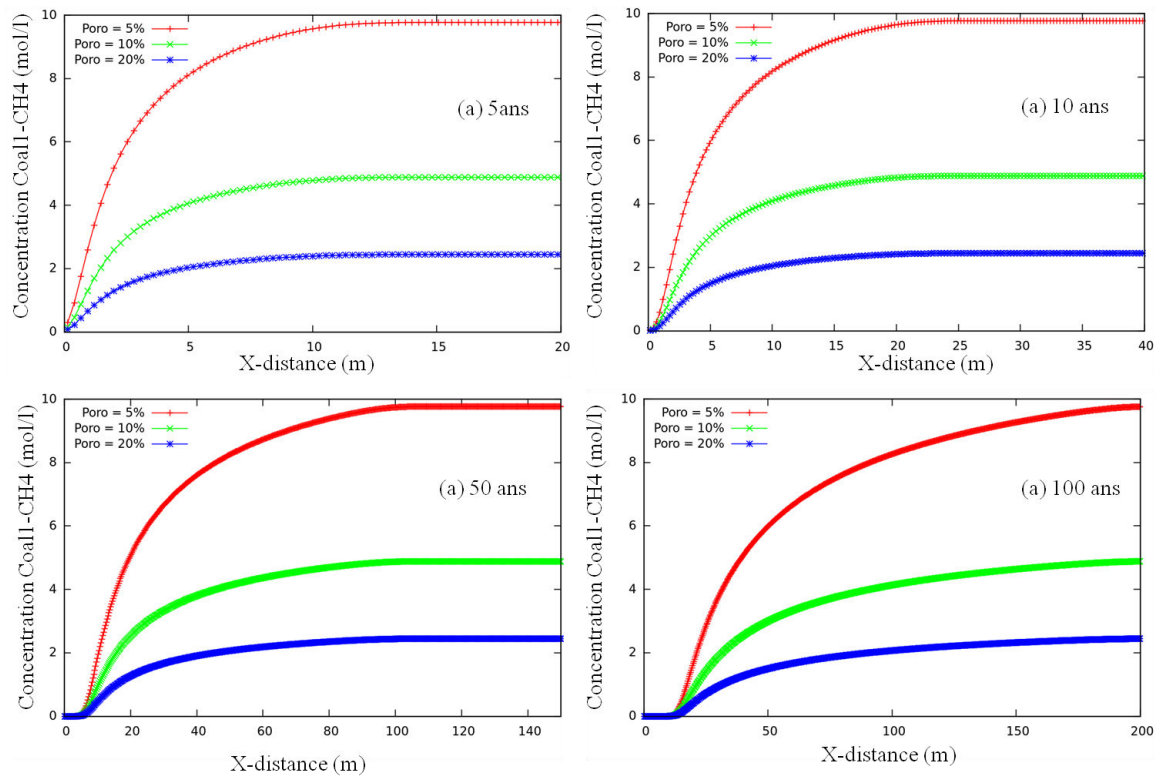


Figure 68. Effets de la porosité sur la concentration en Coal1-CH₄ pour différents instants de simulation : avec une concentration massique variable.

➤ Effets de la masse volumique (MV)

Cette partie fait une étude un peu inverse de celle concernant les effets de la porosité. En effet, dans ce paragraphe, on fixe la valeur de la porosité à 10% et on fait varier la masse volumique du charbon (donc variation de la concentration massique). Trois valeurs sont utilisées : 700 g.l⁻¹, 1100 g.l⁻¹ (celle utilisée précédemment et dans les calculs avec Code_Aster) et 1370 g.l⁻¹ (celle utilisée par Le Gal (2012) au cours de sa thèse). Ces valeurs correspondent respectivement aux concentrations massiques de (Eq. (5-34)) 7 kg.l⁻¹, 11 kg.l⁻¹ et de 13,7 kg.l⁻¹. Les valeurs des autres paramètres du Tableau 11 restent aussi inchangées. Les Figures 69, 70 et 71 montrent respectivement les variations des concentrations en Coal1-0, en Coal1-CH₄ et en méthane aqueux pour les trois différentes valeurs de la masse volumique du charbon.

On observe presque les mêmes effets comme dans le cas concernant la porosité : plus la concentration massique est grande, plus on a de sites spécifiques de sorption (c'est-à-dire augmentation des concentrations en Coal1-0 et Coal1-CH₄ du charbon). Mais contrairement au cas de la porosité, les variations de masse volumique du charbon ne restent pas sans effets sur la concentration en méthane aqueux. Plus la masse volumique (donc la concentration massique) du charbon est grande, plus la désorption du méthane est lente (Fig. 71). Cette influence de la masse volumique sur la concentration en méthane aqueux nous conduit à nous poser des questions sur les effets exacts de la porosité étudiés précédemment. Est-ce vraiment la variation de la porosité qui n'influence pas la concentration en méthane aqueux ou la concentration massique (on a varié simultanément la porosité et la concentration massique pour garder une même masse volumique) ?

Cette question nous conduit à faire une autre étude paramétrique de la porosité, en fixant cette fois une même concentration massique (au lieu d'une même masse volumique).

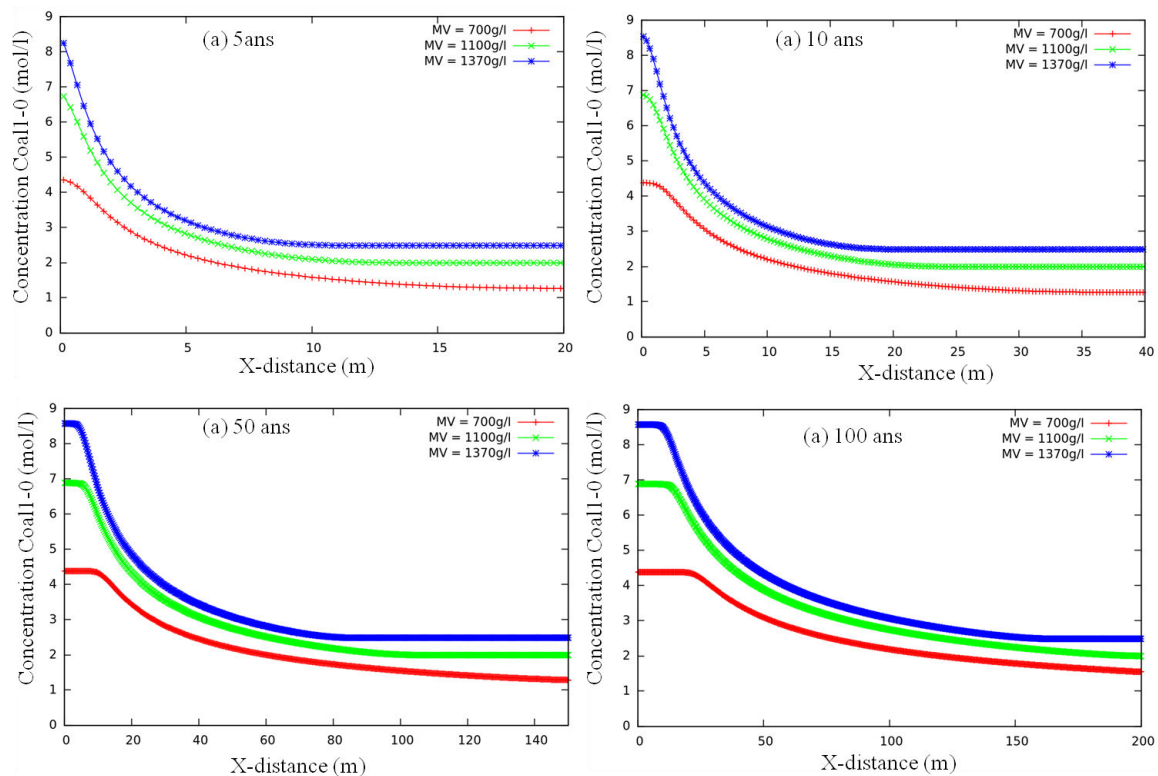


Figure 69. Effets de la masse volumique (MV) sur la concentration en Coal1-0 pour différents instants de simulation.

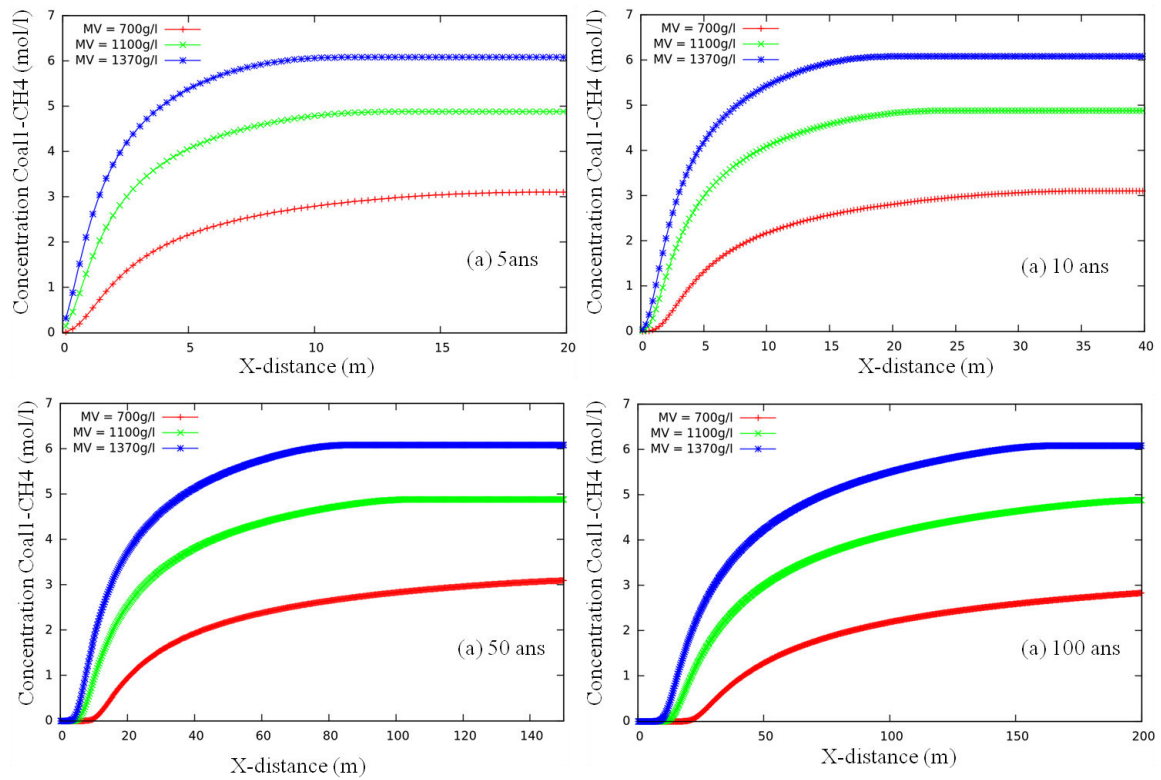


Figure 70. Effets de la masse volumique (MV) sur la concentration en Coal1-CH₄ pour différents instants de simulation.

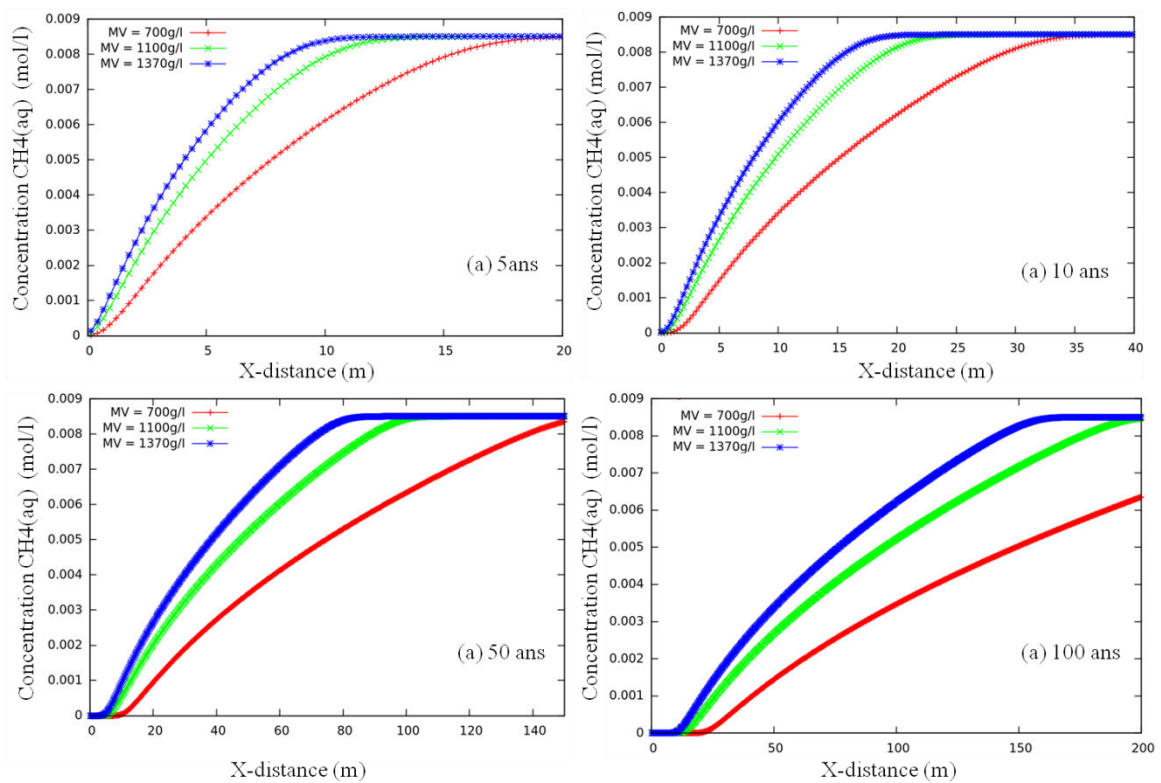


Figure 71. Effets de la masse volumique (MV) sur la concentration du méthane (aq) pour différents instants de simulation.

➤ Effets de la porosité (Poro) : avec une masse volumiques variable

Comme annoncé précédemment, nous faisons une autre étude de la porosité en fixant cette fois une concentration massique constante (la masse volumique devient alors variable). Nous considérons toujours les trois mêmes valeurs de porosité comme précédemment, c'est-à-dire 5%, 10% et 20%, avec une même concentration massique de 11 kg.l^{-1} . Ce qui correspond respectivement aux masses volumiques de (Eq. (5-34)) 550 g.l^{-1} , 1100 g.l^{-1} et 2200 g.l^{-1} . Sur les Figures 72, 73 et 74 sont présentées respectivement les variations de la concentration en Coal1-0, en Coal1-CH₄ et en méthane aqueux CH₄(aq). La Figure 72, montre que la concentration en Coal1-0 pour les trois types de porosité était la même avant l'injection de CO₂. Ce qui n'était pas le cas dans le premier calcul (plus grand pour les faibles porosités, Fig. 67). A l'injection donc dans cette deuxième étude paramétrique, la concentration initiale en Coal1-0 est donc la même pour toutes les porosités (autour de 7 mol.l^{-1} , Fig. 72). En observant la Figure 67, elle était de près de 14 mol.l^{-1} pour une porosité de 5%, autour de 7 mol.l^{-1} pour une porosité de 10% (correspondant à la concentration massique imposée dans ce deuxième cas de calcul) et moins de 4 mol.l^{-1} pour une porosité de 20%. Ce qui revient à dire que c'est la concentration massique qui détermine en quelque sorte les concentrations des sites spécifiques de sorption (Coal1-0 et Coal1-CH₄).

Précédemment, on a remarqué que plus la masse volumique du charbon était grande plus la désorption du méthane était lente (Fig. 71). Ici pour une porosité de 20%, la masse volumique est de 2200 g.l^{-1} . Ce qui explique la désorption lente du méthane pour cette porosité (Fig. 74).

Vu les variations du méthane aqueux dans cette deuxième étude paramétrique (avec une masse volumique variable et une concentration massique constante) et vu que dans le premier calcul (avec une masse volumique constante et une concentration massique variable) aucun effet n'a été observé sur la concentration en méthane aqueux, nous pouvons dire que c'est plutôt la masse volumique qui influence les variations de la concentration en méthane aqueux CH₄(aq) et non la porosité. Mais cependant, plus la concentration massique est grande plus il nécessitera du temps pour libérer les sites saturés en CH₄.

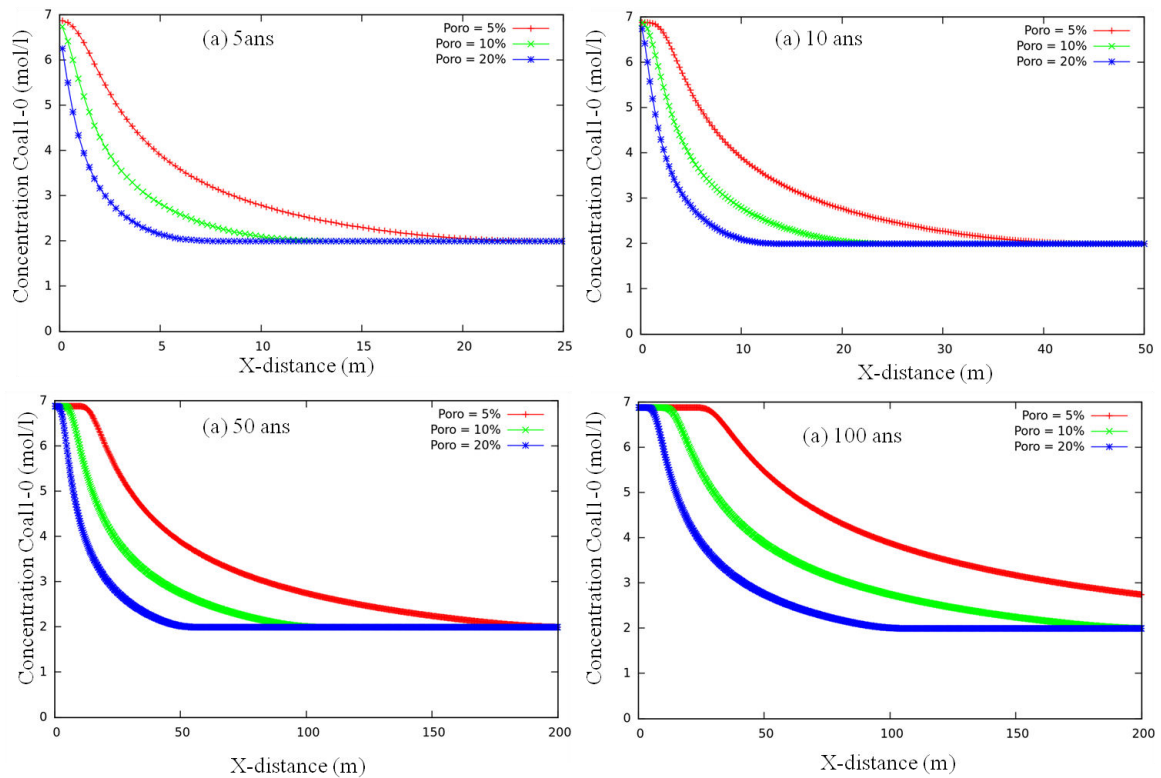


Figure 72. Effets de la porosité sur la concentration en Coal1-0 pour différents instants de simulation : avec une masse volumiques variable.

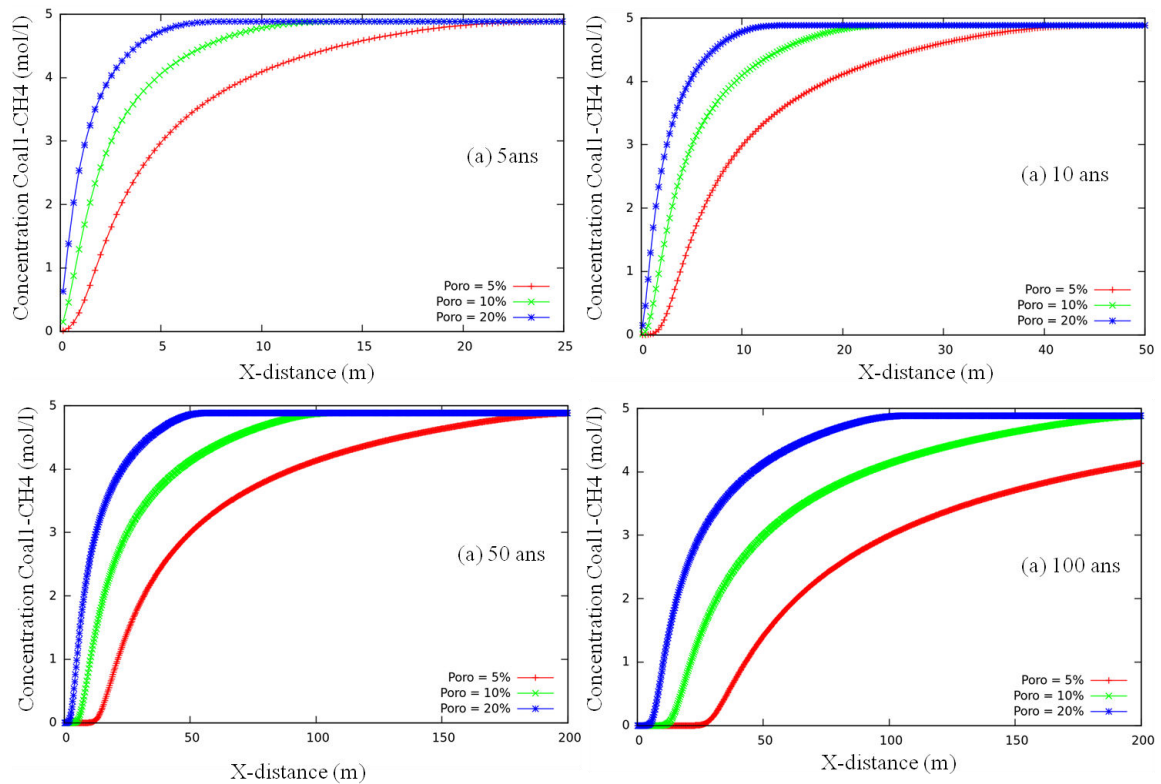


Figure 73. Effets de la porosité sur la concentration en Coal1-CH₄ pour différents instants de simulation : avec une masse volumiques variable.

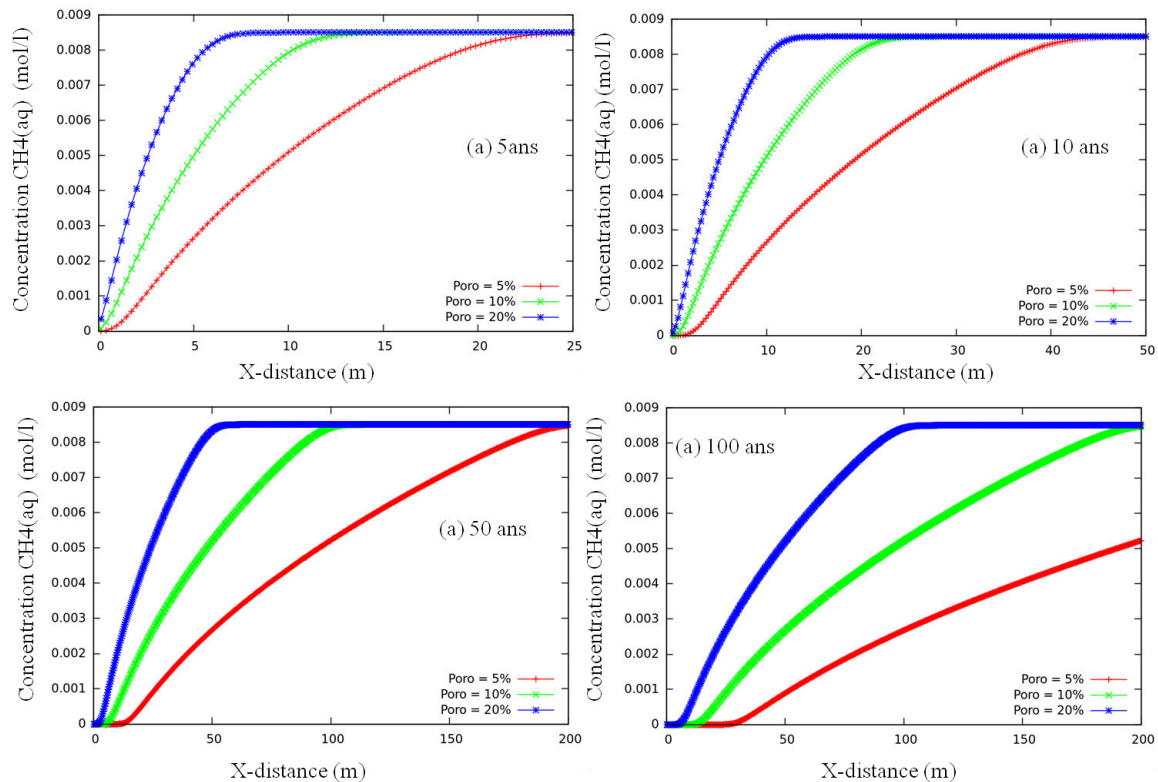


Figure 74. Effets de la porosité sur la concentration en CH₄(aq) pour différents instants de simulation : avec une masse volumique variable.

➤ Effets de la concentration initiale en méthane [CH₄]_i

On considère cette fois, trois différentes concentrations du méthane initial contenu dans le charbon : $10^{-4} \text{ mol.l}^{-1}$, $8,5 \times 10^{-3} \text{ mol.l}^{-1}$ et $2 \times 10^{-2} \text{ mol.l}^{-1}$. La porosité est fixée à 10%, la masse volumique à 1100 g.l^{-1} , soit donc une concentration massique de 11 kg.l^{-1} . Les autres valeurs des paramètres du Tableau 11 restent inchangées. Sur les Figures 75, 76 et 77 sont présentés respectivement, pour différents temps de simulations, la concentration en Coal1-0, la concentration en Coal1-CH₄ et la concentration en méthane aqueux CH₄(aq) : en (a) pour [CH₄]_i = $10^{-4} \text{ mol.l}^{-1}$, en (b) pour [CH₄]_i = $8,5 \times 10^{-3} \text{ mol.l}^{-1}$ et en (c) pour [CH₄]_i = $2 \times 10^{-2} \text{ mol.l}^{-1}$. En observant bien les Figures 75a, 76a et 77a, on peut dire qu'avec une faible concentration de méthane initial, les concentrations en Coal1-0, en Coal1-CH₄ et en méthane aqueux varient moins vite par rapport aux cas avec une concentration de méthane initial supérieure (Figs. 75b, 75c, 76b, 76c, 77b et 77c). Ceci s'explique par le fait que la quantité du méthane désorbée est dépendante de la concentration du méthane dans le massif : si le massif est moins concentré en méthane, la désorption de ce dernier sera lente et donc moins influent sur les variations des concentrations en Coal1-0 et en Coal1-CH₄.

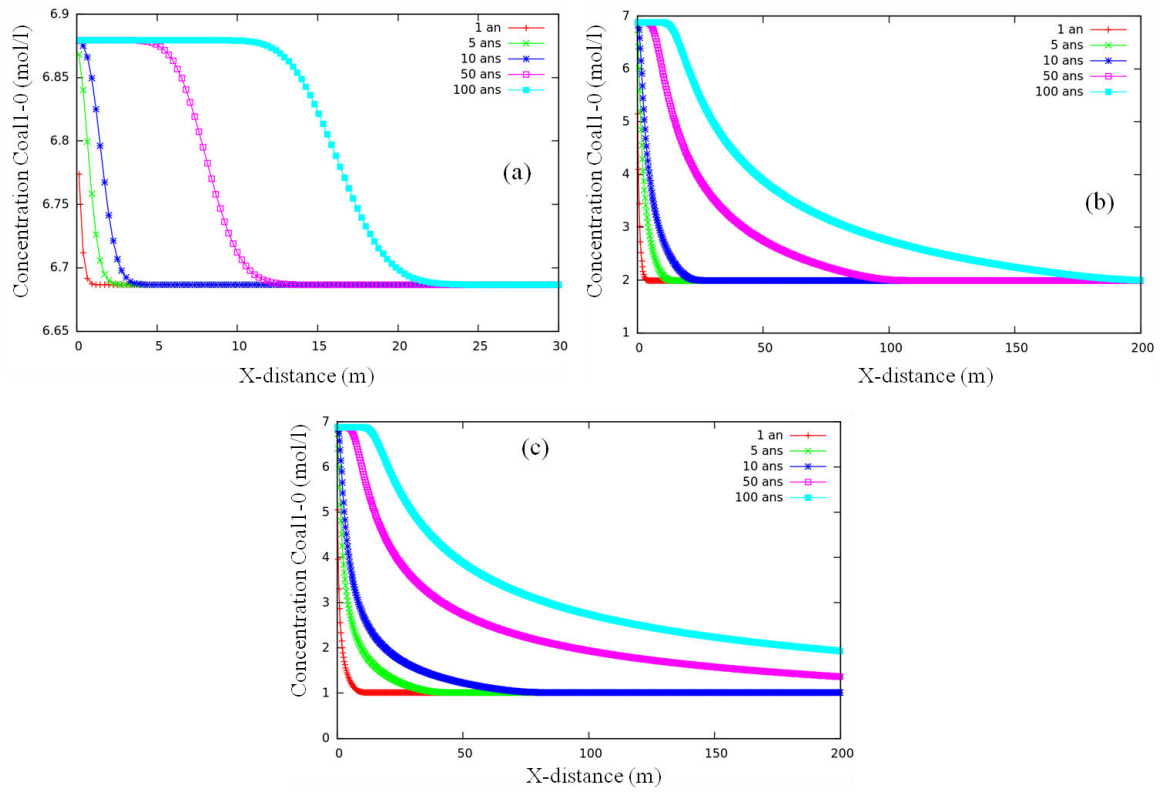


Figure 75. Effets des différentes concentrations du méthane sur la concentration en Coal1-0 : en (a) $[CH_4]_i = 10^{-4} \text{ mol.l}^{-1}$, (b) $[CH_4]_i = 8,5 \times 10^{-3} \text{ mol.l}^{-1}$ et en (c) $[CH_4]_i = 2 \times 10^{-2} \text{ mol.l}^{-1}$.

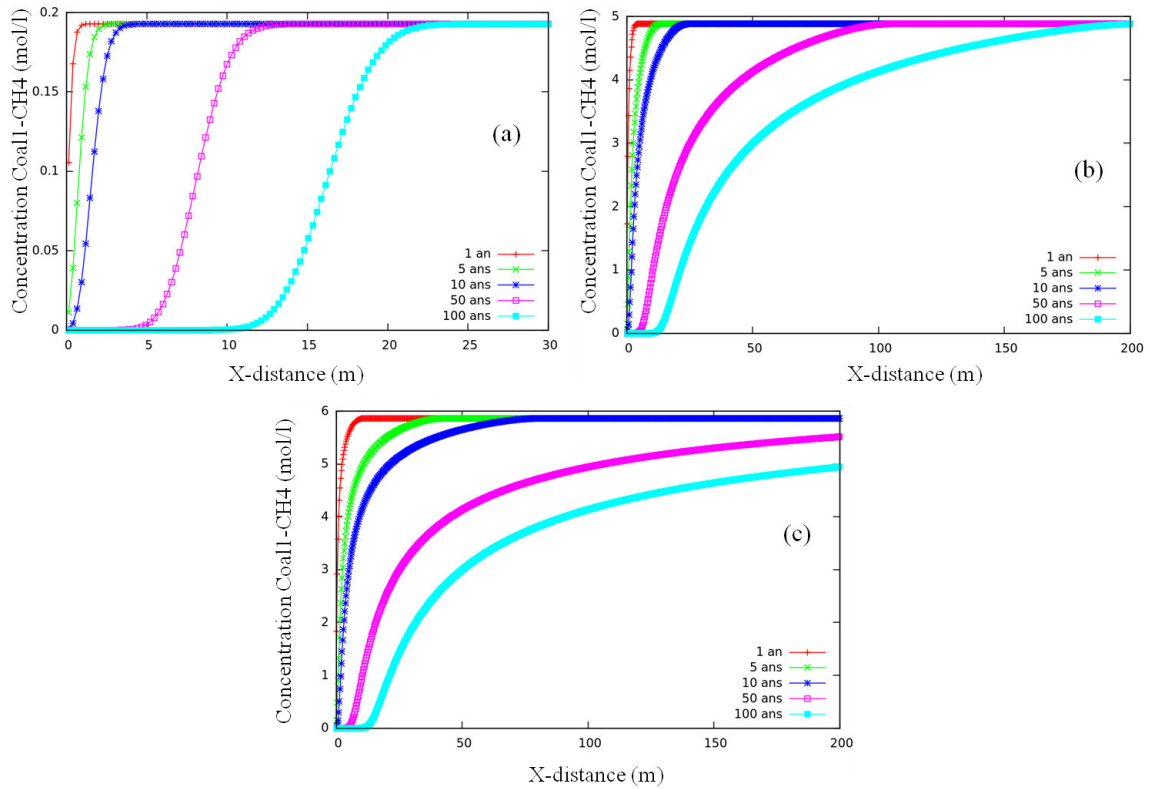


Figure 76. Effets des différentes concentrations du méthane sur la concentration en Coal1-CH4 : en (a) $[CH_4]_i = 10^{-4} \text{ mol.l}^{-1}$, (b) $[CH_4]_i = 8,5 \times 10^{-3} \text{ mol.l}^{-1}$, en (c) $[CH_4]_i = 2 \times 10^{-2} \text{ mol.l}^{-1}$.

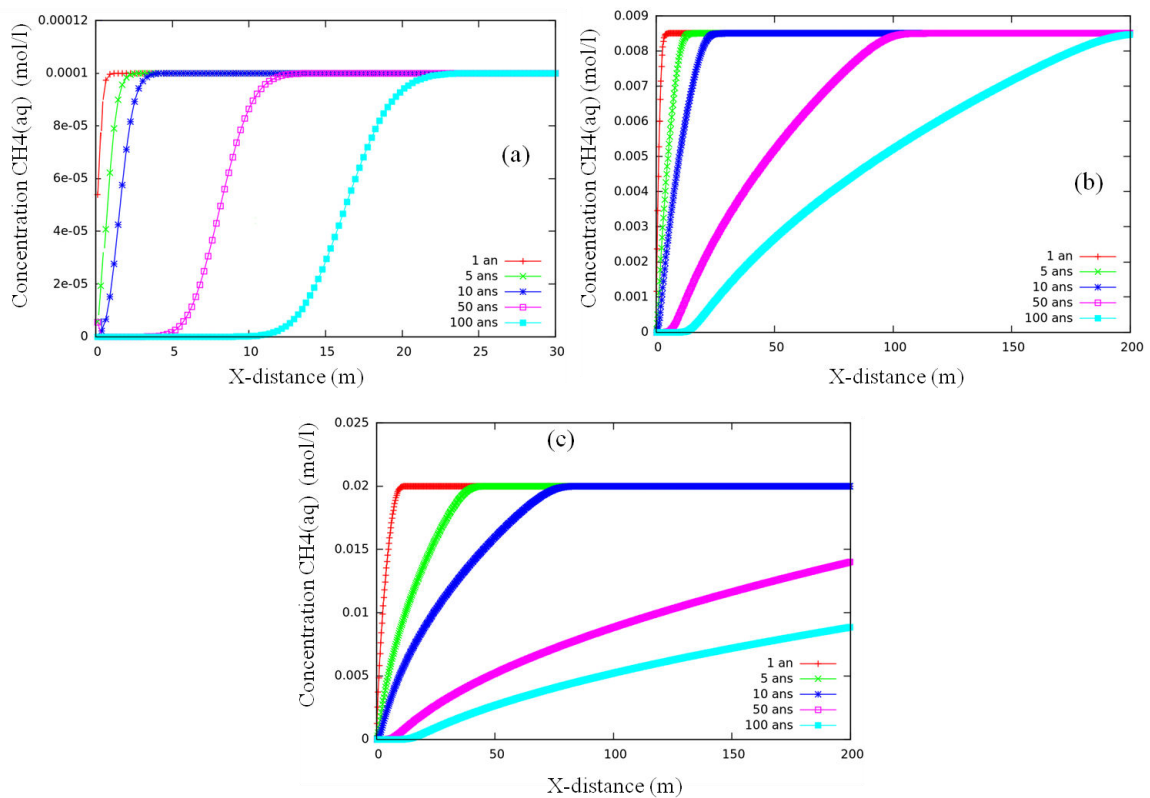


Figure 77. Effets des différentes concentrations du méthane sur la concentration en $CH_4(aq)$: en (a) $[CH_4]_i = 10^{-4} \text{ mol.l}^{-1}$, (b) $[CH_4]_i = 8,5 \times 10^{-3} \text{ mol.l}^{-1}$ et en (c) $[CH_4]_i = 2 \times 10^{-2} \text{ mol.l}^{-1}$.

5.4. Modèle couplé Code_Aster – HYTEC

5.4.1. Pourquoi utiliser HYTEC ?

Dans nos travaux de thèse, nous nous intéressons à deux problèmes :

- (1) Injection du CO_2 à différents états dans un massif initialement saturé en eau avec une géométrie du massif simple (un simple puits d'injection) 2D. Dans ce premier cas, les phénomènes à prendre en compte sont la loi de Darcy/Fick, la loi de Henry (pour la dissolution) et le phénomène d'adsorption du CO_2 par le charbon géré par l'isotherme de Langmuir.
- (2) Injection du CO_2 dans un massif saturé en eau et contenant du méthane CH_4 . Une partie du méthane sera donc dissoute dans l'eau et l'autre adsorbée dans la matrice du charbon. Nous sommes donc en présence de deux gaz lors de l'injection du CO_2 . Dans ce deuxième cas, les phénomènes à prendre en compte sont la loi de Darcy/Fick, la loi de Henry, le phénomène d'adsorption du CO_2 et de désorption du méthane CH_4 géré par l'isotherme de Langmuir généralisée, l'effet du remplacement du méthane CH_4 par le dioxyde de carbone CO_2 sur la roche poreuse et les réactions chimiques (seulement la dissolution des deux gaz).

Comme décrit précédemment, seul le premier problème peut être traité avec le Code_Aster (cas d'un seul gaz, qui a constitué le chapitre 4). Dans le second problème, où nous sommes en présence de deux gaz et dans lequel il faut prendre en compte les variations simultanées des pressions des deux gaz (augmentation de la pression du CO_2 suite à son adsorption et diminution du CH_4 suite à sa désorption), le Code_Aster n'est pas adapté. Ceci est bien expliqué dans le § 5.2. Donc pour ce dernier problème, nous avons besoin d'un code qui nous permettra de le résoudre : d'où l'appel de HYTEC qui lui ne traite pas les phénomènes mécaniques.

5.4.2. Description et méthodologie du modèle de couplage

Nous décrivons dans ce paragraphe la technique de couplage entre le code couplé Thermo-Hydro-Mécanique (Code_Aster) et le code couplé Chimie-Transport (HYTEC). Comme décrit dans le § 5.4.1, HYTEC pour nous aider à résoudre notre second problème (i.e. injection de CO_2 avec récupération du méthane), a besoin des champs de vitesses (vitesse d'eau, de gaz), de la porosité, de la saturation en eau et en gaz à chaque pas de temps. Il se chargera alors des réactions de dissolution, des échanges eau/surface (adsorption sur les surfaces), le calcul des pressions partielles ou des flux des deux gaz ainsi que le transport du gaz et de l'eau. Il fournira ensuite à Code_Aster le flux ou la pression partielle de chaque espèce gazeuse (CO_2 , CH_4) pour le calcul mécanique dans ce dernier. Le schéma de couplage est montré la Figure 78.

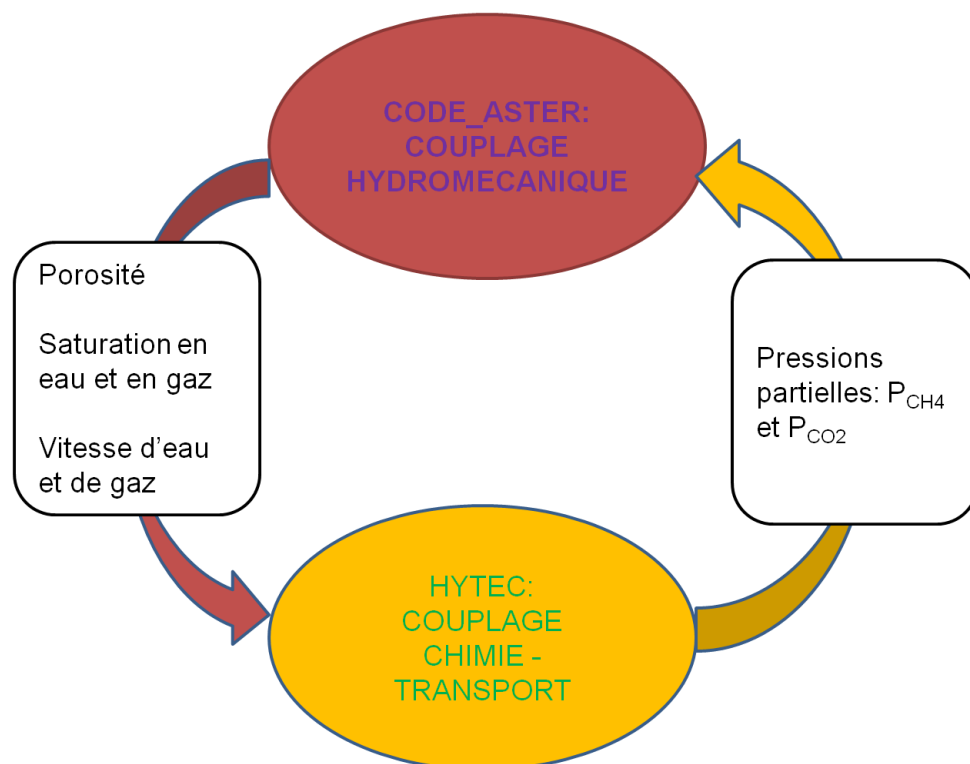


Figure 78. Schéma de couplage Code_Aster – HYTEC.

5.4.2.1. Calcul des vitesses sous Code_Aster

Nous partons de la définition des flux massiques dans Code_Aster (*Code_Aster Document R7.01.11*) :

$$\begin{cases} M_l = \rho_l (v_l - v_s) \phi S_l \\ M_{ad} = \rho_{ad} (v_{ad} - v_s) \phi S_l \\ M_{vp} = \rho_{vp} (v_{vp} - v_s) \phi (1 - S_l) \\ M_{as} = \rho_{as} (v_{as} - v_s) \phi (1 - S_l) \end{cases} \quad (5-34)$$

Dans l'équation (5-34), v_l , v_{ad} , v_{vp} , v_{as} et v_s sont respectivement la vitesse du liquide (eau), la vitesse du gaz dissous (air dissous), la vitesse de la vapeur d'eau, la vitesse du gaz sec (air sec) et la vitesse du squelette. En supposant négligeable la vitesse du squelette par rapport aux autres, l'équation (5-34) devient :

$$\begin{cases} M_l = \rho_l v_l \phi S_l \\ M_{ad} = \rho_{ad} v_{ad} \phi S_l \\ M_{vp} = \rho_{vp} v_{vp} \phi (1 - S_l) \\ M_{as} = \rho_{as} v_{as} \phi (1 - S_l) \end{cases} \quad (5-35)$$

A partir de l'équation (5-35), nous pouvons alors calculer les vitesses d'eau, du gaz sec, du gaz dissous et de la vapeur :

$$\begin{cases} v_l = \frac{M_l}{\rho_l \phi S_l} \\ v_{ad} = \frac{M_{ad}}{\rho_{ad} \phi S_l} \\ v_{as} = \frac{M_{as}}{\rho_{as} \phi (1 - S_l)} \\ v_{vp} = \frac{M_{vp}}{\rho_{vp} \phi (1 - S_l)} \end{cases} \quad (5-36)$$

Dans Code_Aster, on connaît, à chaque instant et en tout point, les composantes des vecteurs flux massiques (M_l , M_{ad} , M_{as} et M_{vp} contenues dans le vecteur des contraintes généralisées), ainsi que la porosité ϕ , la saturation en liquide S_l (et donc en gaz $1-S_l$) et la densité du liquide ρ_l (contenues dans le vecteur des variables internes). Donc il nous reste les densités de l'air dissous ρ_{ad} , de l'air sec ρ_{as} et de la vapeur d'eau ρ_{vp} à déterminer à chaque instant. Celles-ci sont calculées à partir de leur pression et de leur masse molaire via la loi des gaz parfaits.

$$\begin{cases} \rho_{ad} = \frac{M_{ad}^{ol} P_{ad}}{RT} = \frac{M_{as}^{ol} P_{ad}}{RT} \\ \rho_{as} = \frac{M_{as}^{ol} P_{as}}{RT} \\ \rho_{vp} = \frac{M_{vp}^{ol} P_{vp}}{RT} \end{cases} \quad (5-37)$$

La masse molaire de l'air dissous M_{ad}^{ol} est logiquement la même que celle de l'air sec M_{as}^{ol} qui est un paramètre d'entrée ainsi que la masse molaire de la vapeur d'eau M_{vp}^{ol} . La température T (considérée comme constante dans notre modèle) et la constante des gaz parfaits R sont aussi des paramètres d'entrée. Nous avons donc presque la vitesse de chaque constituant à chaque instant de simulation. Mais attention ! Pas en tous les points. En effet, le calcul hydraulique se faisant par interpolation linéaire dans Code_Aster, les pressions (respectivement les densités) de l'équation (5-37) ne sont relevées (respectivement calculées) qu'aux nœuds extrêmes seulement du maillage quadratique (reste donc les nœuds milieux). On profite pour rappeler que le calcul mécanique se fait par interpolation quadratique dans Code_Aster. Des résolutions techniques s'imposent donc.

Dans le paragraphe ci-après, nous décrivons la technique adoptée afin de résoudre ce problème dans Code_Aster pour finaliser le calcul des vitesses et aussi la communication entre les deux codes (Code_Aster, HYTEC).

5.4.2.2. Quelques précisions techniques

Dans tout ce qui précède, il y a quelque petits problèmes techniques à résoudre, surtout dans le Code_Aster, avant le couplage proprement dit. Il faut :

- (1) Calculer des vitesses en tous les nœuds du maillage quadratique ou seulement aux nœuds extrêmes dans Code_Aster.
- (2) Résoudre le problème de communication entre un code d'éléments finis (Code_Aster) et un code de volume finis (HYTEC).
- (3) Résoudre le problème de maillages quadratiques qu'utilise Code_Aster et de maillages linéaires qu'utilise HYTEC.
- (4) Résoudre le problème de l'endroit où il faut appliquer les variables : dans le Code_Aster, les variables sont appliquées (ou relevées) aux nœuds des éléments alors que dans HYTEC elles sont appliquées (relevées) aux centres des volumes ou aux centres des faces du Voronoï. Ce qui signifie que dans Code_Aster les champs sont calculés aux nœuds (extrêmes et milieux, sauf ceux hydrauliques qui sont calculé uniquement aux nœuds extrêmes) et dans HYTEC ils sont calculés (et donc seront appliqués) uniquement aux centres.

On a donc à résoudre quatre (4) problèmes techniques.

➤ Résolution des problèmes (1) et (3)

En regardant les problèmes (1) et (3), et étant donné que dans Code_Aster il y a possibilité de transformer un maillage quadratique en un maillage linéaire et vice versa, on a choisi de transformer le maillage quadratique d'entrée de Code_Aster en un maillage linéaire. La procédure est simple : on aura dans Code_Aster deux maillages (un maillage quadratique sur lequel Code_Aster fera ses calculs et un maillage linéaire, construit à partir du maillage quadratique, sur lequel on relèvera les variables). Code_Aster fait ses calculs avec le maillage quadratique. Une fois le calcul de Code_Aster terminé (c'est-à-dire à chaque fin de pas de calcul), on fait une projection des résultats obtenus avec le maillage quadratique sur le maillage linéaire. Cela nous permettra d'avoir tous les résultats (mécaniques et hydrauliques) aux nœuds extrêmes seulement (maillage linéaire). On peut alors facilement calculer les composantes des vecteurs vitesses de chaque constituant et pouvoir les envoyer à HYTEC qui n'utilise que des maillages linéaires. Pour les résultats de retour (c'est-à-dire de HYTEC vers Code_Aster), étant donné que ce sont les pressions partielles (composantes hydrauliques) et

que celles-ci ne sont appliquées (ou calculées) qu'aux nœuds extrêmes du maillage quadratique du Code_Aster, le problème ne se pose pas (Code_Aster les recevra facilement sur son maillage quadratique). Les problèmes (1) et (3) sont donc résolus. Il ne reste donc que les problèmes (2) et (4).

NB : La méthode de projection utilisée est la méthode classique de COLLOCATION du Code_Aster (*Code_Aster Document U4.72.05*), fortement conseillé d'ailleurs dans Code_Aster et bien adaptée pour une projection des champs aux nœuds. Pour plus de détails sur la projection et la méthode de COLLOCATION, on peut se référer par exemple au document U4.72.05 de Code_Aster.

➤ Résolution des problèmes (2) et (4)

Pour la résolution des problèmes (2) et (4), HYTEC utilisant par défaut un maillage de type Voronoï, l'idée proposée ici est d'utiliser la triangulation de Delaunay dans HYTEC et utiliser un maillage triangulaire dans Code_Aster. Ce qui justifie le choix du maillage triangulaire utilisé précédemment dans Code_Aster pour le test du modèle 1D de ce chapitre (§ 5.2.4.1). Dans HYTEC, on aura donc une superposition des triangles de la triangulation de Delaunay (qui correspondront au maillage triangulaire utilisé par Code_Aster) et du maillage de type Voronoï (qu'utilisera HYTEC). La Figure 79 donne le schéma des différents maillages pour le couplage Code_Aster – HYTEC, en (a) le maillage Voronoï (qu'utilisera HYTEC), en (b) le maillage triangulaire (qu'utilisera Code_Aster) et en (c) une superposition des deux maillages, Voronoï (en rouge) et triangulaire (en noir) qui correspondra à la triangulation de Delaunay. Les sommets du maillage de Voronoï sont les centres des cercles circonscrits des triangles de la triangulation de Delaunay et les arêtes du maillage de Voronoï sont sur les médiatrices des arêtes de la triangulation de Delaunay. Les sommets (nœuds) des triangles sont les centres des volumes de Voronoï.

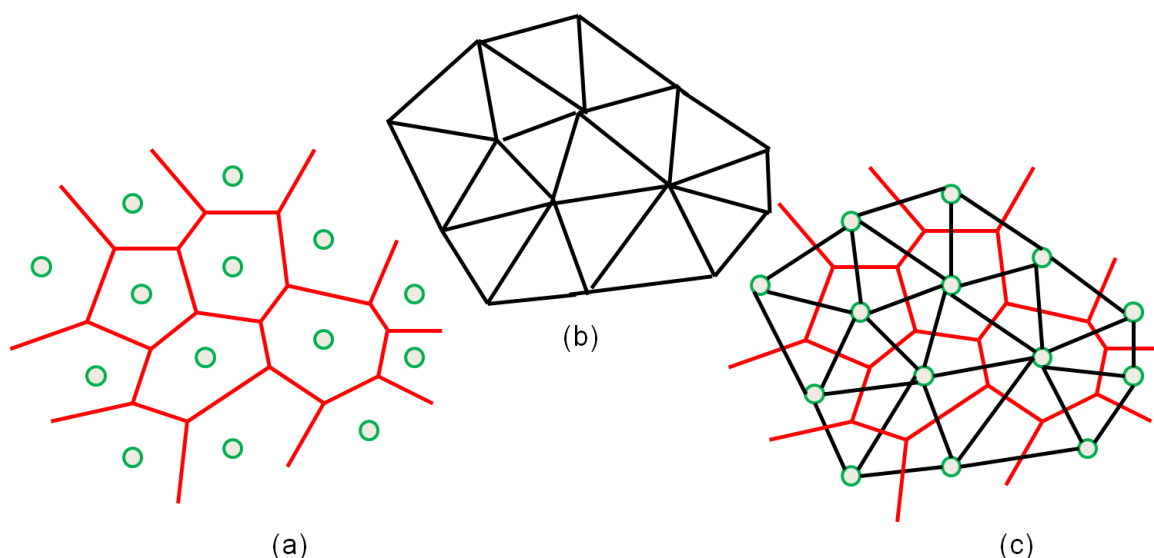


Figure 79. Schéma des différents maillages pour le couplage : en (a) maillage Voronoï, en (b) maillage triangulaire et en (c) un exemple de superposition du maillage de Voronoï (en rouge) et de sa triangulation de Delaunay (en noir).

Pour un maillage de type Voronoï dans HYTEC, la porosité et les saturations sont appliquées aux centres de Voronoï et les vecteurs vitesses aux centres des faces (arêtes) du Voronoï. De cette description du maillage, on aura :

De Code_Aster à HYTEC : la porosité φ (ou ω) et les saturations en eau S_l et en gaz S_g relevées (ou calculées) aux nœuds du maillage triangulaire de Code_Aster seront données aux centres de Voronoï (dont les éléments correspondent aux nœuds du triangle de Delaunay). Les vitesses (calculées aussi aux nœuds du maillage triangulaire de Code_Aster) seront quant à elles appliquées aux centres des faces de Voronoï, donc aux milieux des arêtes du triangle.

De HYTEC à Code_Aster : Les pressions partielles relevées (calculées) aux arêtes de Voronoï dans HYTEC, donc aux sommets (nœuds) des triangles de Delaunay sont envoyées à Code_Aster sur les nœuds du maillage triangulaire (quadratique, mais uniquement aux nœuds extrêmes).

Ceci résoudra donc les problèmes (2) et (4) et donc tous les problèmes techniques.

Comme dit en introduction de ce chapitre (§ 5.1), cette partie de la thèse concernant le couplage entre Code_Aster et HYTEC est réalisé en collaboration avec Mines ParisTech. Cette dernière, en tant que développeur du code couplé chimie-transport réactif, devra donc s'occuper de l'implémentation du module de maillages de triangulation de Delaunay et le module permettant l'utilisation des fichiers .MED (Modélisations et Echanges de Données, pour permettre la communication entre les deux codes) dans HYTEC. Ce qui devra permettre de finaliser le modèle et procéder à nos simulations de CO_2 -ECBM.

Cependant, le développement dans HYTEC (par Mines ParisTech) n'étant pas fini à temps pour nos modélisations, ce développement numérique HYTEC/ASTER n'a pas pu être mené à son terme. Ce qui nous oblige donc à reporter cette partie dans les perspectives de la thèse.

5.5. Conclusion

Dans ce chapitre, l'isotherme de Langmuir généralisée est rappelée et utilisée (tout comme la plupart des simulateurs des réservoirs) pour établir un modèle de porosité eulérienne pour le cas particulier de deux gaz (CO_2 , CH_4). Après l'implémentation du modèle dans le Code_Aster, nous avons présenté un cas test de simulation 1D sous Code_Aster. Dans ce cas test, les variations de la pression du méthane désorbé ne sont pas prises en compte (limites des fonctionnalités de Code_Aster). Nous avons pu néanmoins prendre en compte la diminution de la fraction de moles du méthane avec l'augmentation de la pression de CO_2 . Même si dans les résultats obtenus la diminution de la pression de CH_4 suite à sa désorption n'est pas prise en compte dans Code_Aster, à cause des limites de fonctionnalité de ce code, nous avons pu observer le phénomène de gonflement qui s'est traduit par une diminution de la porosité/perméabilité de la roche. Ce phénomène était prévisible car, dans la plupart des opérations CO_2 -ECBM, la désorption du méthane et l'adsorption du CO_2 conduisent à une augmentation globale du volume de gaz adsorbé et donc à un gonflement de la matrice. Cependant, la prise en compte des variations de la pression de méthane suite à sa désorption ayant un grand effet sur les résultats des variations de la porosité/perméabilité (comme montré les résultats théoriques avec notre modèle), le cas test 2D n'a pas été fait dans cette étude.

L'utilisation de HYTEC, un code de transport réactif développé par Mines ParisTech, nous a permis de faire un calcul d'injection d'une solution de CO_2 dans un massif de charbon initialement saturé en méthane. Le module CHESS de HYTEC ne décrivant pas adsorption physique de gaz (CO_2 , CH_4) sur le charbon et compte tenu des besoins de la simulation, la sorption est assimilée à une réaction chimique entre les sites de sorption du charbon et le CO_2/CH_4 . On a pu observer une diminution des sites saturés en méthane Coal1-CH₄, une diminution de la concentration en méthane aqueux et une augmentation des sites vides Coal1-0 au cours du temps. L'injection de la solution de CO_2 pousse donc le méthane à se libérer au

cours du temps, ce qui a augmenté les sites vides Coal1-0, qui accueillent le CO_2 pour son piégeage. Nous avons par la suite testé l'influence de la porosité, de la masse volumique et de la concentration massique du charbon, et de la concentration initiale du charbon en méthane CH_4 sur les variations des sites vides Coal1-0, des sites saturés en méthane Coal1- CH_4 et aussi sur la concentration du charbon en méthane aqueux $CH_4(aq)$. Ces études paramétriques ont révélé que la concentration massique détermine en quelque sorte les concentrations des sites spécifiques de sorption (Coal1-0 et Coal1- CH_4). Pour les charbons peu poreux avec une concentration massique élevée, on a la présence de nombreux sites par rapport aux charbons plus poreux avec des concentrations massiques plus faibles. Cependant, les différentes valeurs de porosité prises avec une même masse volumique (et donc une concentration massique variable) n'ont eu aucune influence sur la concentration en méthane aqueux $CH_4(aq)$ tandis que les différentes valeurs de porosité avec une même concentration massique (et donc une masse volumique variable) l'influencent. En augmentant la porosité avec une masse volumique variable, la désorption du méthane devient de plus en plus lente.

Les variations de la masse volumique du charbon (avec une même porosité dans notre étude) influent aussi sur les variations de la concentration en méthane aqueux $CH_4(aq)$. Les grandes valeurs de la masse volumique (concentration massique) du charbon ralentissent la désorption du méthane. D'où la nécessité d'une durée beaucoup plus longue pour libérer les sites saturés en CH_4 . Avec une faible concentration du méthane initial, les variations des sites vides Coal1-0 et saturés en méthane Coal1- CH_4 sont lentes par rapports à celles avec des concentrations en méthane initial supérieures.

Vu les limites du Code_Aster pour la gestion des variations simultanées de plusieurs gaz, le code couplé chimie-transport, HYTEC, est utilisé pour nous aider à résoudre ce problème. Ce qui a nécessité un couplage entre les deux codes. HYTEC se charge donc de calculer les pressions partielles de CO_2 et du CH_4 à chaque fin de pas de temps et de les envoyer à Code_Aster pour le calcul des fractions de moles de ces gaz et la résolution de l'équation de la porosité. Code_Aster étant un code d'éléments finis avec des maillages quadratiques et HYTEC un code de volumes finis avec des maillages linéaires, le choix de maillage triangulaire dans Code_Aster et celui Voronoï avec triangulation de Delaunay dans HYTEC est faite pour résoudre ce problème. Code_Aster devant utiliser une méthode de projection du maillage quadratique vers un autre maillage linéaire (construit à partir du maillage quadratique) pour les relevés des variables aux nœuds extrêmes seulement. Ce chapitre a détaillé la procédure et les techniques de ce couplage.

Cependant, le développement dans HYTEC (par Mines ParisTech) n'étant pas fini à temps pour nos modélisations, ce développement numérique HYTEC/ASTER n'a pas pu être mené à son terme. Ainsi, les simulations couplées HYTEC/ASTER d'injection du CO_2 dans le charbon avec une récupération assistée du méthane CH_4 , sont les premières perspectives de cette thèse.

5.6. Références bibliographiques

Arri L. E., Yee D., Morgan W.D., and Jeansonne, M.W., 1992. "Modelling Coalbed Methane Production with Binary Gas Sorption." Casper, WY, SPE Paper No 24363. Proceedings of the Rocky Mountain Regional Meeting of the Society of Petroleum Engineers. PP 459–472.

Bustin RM, Clarkson CR., 1998. "Geological controls on coalbed methane reservoir capacity and gas content". Int. J. Coal Geology; 38 (1-2):3–26.

- Clarkson, C.R., Bustin, R.M., 2000.** “Binary gas adsorption/desorption isotherms: Effect of moisture and coal composition upon carbon dioxide selectivity over methane”. *Int. J. Coal Geology* 42, 241–271.
- Code_Aster 2012.** Document R7.01.11 – “Modèle de comportement THHM”. http://www.code-aster.org/V2/doc/v11/fr/man_r/r7/r7.01.11.pdf.
- Code_Aster 2012.** Document U4.72.05 – “Opérateur PROJ_CHAMP”. http://www.code-aster.org/V2/doc/default/fr/man_u/u4/u4.72.05.pdf.
- Coussy, O., 1995.** “*Mechanics of porous continua*”. John Wiley Sons.
- Cui X, Bustin RM, Chikatamarla L., 2007.** “Adsorption-induced coal swelling and stress: implications for methane production and acid gas sequestration into coal seams”. *J Geophys Res*; 112(B10):B10202.
- Cui, X., and Bustin, R. M., 2005.** “Volumetric Strain Associated with Methane Desorption and Its Impact on Coalbed Gas Production from Deep Coal Seams”. *AAPG Bull* 2005; 89:1181-202.
- Dave, N., Duffy, G., Edwards, J., 1990.** “CO₂ mitigation from coal-fired power generation”. *Australian Coal Review* 8, 31–34.
- De Silva P.N.K., Ranjith P.G., Choi S.K., 2012.** “A study of methodologies for CO₂ storage capacity estimation of coal”. *Fuel* 91: 1–15.
- De Windt, L., van der Lee, J., Schmitt, J. M., 2005.** “Modélisation en géochimie des eaux”. Concepts et applications aux problèmes d’environnement. *Rev. Techn. Ing.* AF-6-530, 1–18.
- De Windt L., J. Van Der Lee, V. Lagneau, novembre 2007.** Rapport R-301107-DEWI, Ecole des mines de Paris, Fontainebleau, France.
- De Windt L., V. Lagneau et J. van der Lee, 2008.** “Formation à l’outil de transport réactif HYTEC Applications à la migration d’éléments chimiques dans les milieux poreux”. Rapport Technique R080512VL.
- DeGance, A.E., 1992.** “Multicomponent high-pressure adsorption equilibria on carbon substrates: theory and data”. *Fluid Phase Equilibria* 78, 99–137.
- Do, D.D., 1998.** “*Adsorption Analysis: Equilibria and Kinetics*”. Imperial College Press, London.
- Every RL and Dell’Osso LJ., 1976.** “Method for removing methane from coal. Patent file date”. Filed date 7 June 1976. Medium: X; 1977. p. 8.
- Fitzgerald, J.E., Pan, Z., Sudibandriyo, M., Robinson Jr., R.L., Gasem, K.A.M., 2005.** Adsorption of methane, nitrogen, carbon dioxide and their mixtures on wet Tiffany coal. *Fuel* 84, 2351–2363.
- Fitzgerald, J.E., Pan, Z., Sudibandriyo, M., Robinson, R.L., Jr., Gasem, K.A.M., Reeves, S., 2005.** “Adsorption of methane, nitrogen, carbon dioxide and their mixtures on wet Tiffany coal”. *Fuel* 84: 2351–2363.
- Fitzgerald, J.E., Pan, Z., Sudibandriyo, M., Robinson, R.L., Jr., Gasem, K.A.M., Reeves, S., 2005.** “Adsorption of methane, nitrogen, carbon dioxide and their mixtures on wet Tiffany coal”. *Fuel* 84, 2351–2363.
- Gale, J., Freund, P., 2001.** “Coal-bed methane enhancement with CO₂ sequestration potential”. *Environmental Geosciences* 8, 210–217.

- Giraud A., 2001.** “*Modélisation des couplages THM dans les milieux poreux saturés et partiellement saturés*”. Mémoire de HDR, Institut National Polytechnique de Lorraine:179p.
- Grenthe, I., J. Fuger, R. J. Konings, R. J. Lemire, A. B. Muller, C. Nguyen-Trung, et H. Wanner, 1992.** “*Chemical thermodynamics of uranium*”. Amsterdam (NL): North- Holland.
- Hall FE, Chunhe Z, Gasem KAM, Robinson RL, Jr. Oklahoma State U, Dan Yee, 1994.** “*Adsorption of pure methane, nitrogen, and carbon dioxide and their binary mixtures on wet Fruitland coal*”. Eastern regional conference & exhibition of the society of Petroleum Engineers, Charleston, WV, SPE.
- Harpalani S. and Mitra A., 2010.** “*Impact of CO₂ Injection on Flow Behavior of Coalbed Methane Reservoirs*”. Transp Porous Med 82, 141-156. DOI 10.1007/s11242-009-9475-1.
- Krooss, B.M, van Bergen F, Gensterblum Y, Siemons N, Pagnier H.J.M, and David P. 2002.** “*High-pressure Methane and Carbon Dioxide Adsorption on Dry and Moisture-equilibrated Pennsylvanian Coals.*” Int. J. Coal Geology 51 (2): 69–92. doi:10.1016/S0166-5162(02)00078-2.
- Lagneau V. et Corvisier J.:** *Module biphasique d’HYTEC – Transport, solubilité et couplage*, PGT, Fontainebleau, 10 novembre 2010.
- Lagneau, V., 2003.** “*R2D2 - Reactive transport and waterflow on an odd dimension 2 grid*”. Rapport Technique LHM/RD/03/05, Ecole des Mines de Paris, Fontainebleau (France).
- Law, D.H.-S., van der Meer, L.G.H., Gunter, W.D., 2002.** “*Numerical simulator comparison study for enhanced coalbed methane recovery processes, part I: pure carbon dioxide injection*”. Presented at the 2002 SPE Gas Technology Symposium, Calgary, Alberta, Canada, paper SPE 75669.
- Le Gal N., 2012.** “*Libération et migration du méthane depuis le charbon dans un contexte hydrogéologique post-minier. Développement d’un protocole expérimental et approche numérique*”. Thèse de l’école nationale supérieure des mines de Paris. Spécialité ‘hydrologie et hydrogéologie quantitatives’ (juin 2012).
- Le Gal N., Lagneau V., Charmoille A., 2012.** “*Experimental characterization of CH₄ release from coal at high hydrostatic pressure*”. Int. J. Coal Geology, doi: 10.1016/j.coal.2012.04.001.
- Liu, J., Elsworth, D. and Brady, B.H., 1999.** “*Linking Stress-dependent Effective Porosity and Hydraulic Conductivity Fields to RMR*”. International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences 36 (5): 581–596. Doi:10.1016/S0148-9062(99)00029-7.
- Massarotto, P., Golding, S.D., Rudolph, V., 2006.** “*Preliminary feasibility economics and risk of CO₂ geosequestration in coal seams of the Bowen Basin, Australia*”. Proceedings of the 8th International Conference of GHG Technologies, Trondheim, Norway.
- McKee, C.R., Bumb, A.C. and R.A. Koenig, 1987.** “*Stress-Dependent Permeability and Porosity of Coal*”. Proc., Coalbed Methane Symposium, Tuscaloosa, Alabama (November 1987) 183.
- Myers AL, Prausnitz JM, 1965.** “*Thermodynamics of mixed-gas adsorption*”. AIChE J, 11: 121–9.
- Palmer, I., and Mansoori, J., 1998.** “*How Permeability Depends on Stress and Pore Pressure in Coalbeds: A New Model*”. In: Paper SPE 52607, SPE Reservoir Evaluation & Engineering (December): 539–544.

- Pan Z, Connell LD, 2007.** “A theoretical model for gas adsorption-induced coal swelling”. *Int. J. Coal Geology*; 69(4): 243–252.
- Pan Z. and Connell L. D., 2009.** “Comparison of adsorption models in reservoir simulation of enhanced coalbed methane recovery and CO₂ sequestration in coal”. *International journal of greenhouse gas control* 3, 77 – 89.
- Robertson, E.P., Christiansen, R.L., 2007.** “Modeling laboratory permeability in coal using sorption-induced-strain data”. *SPE Reservoir Evaluation & Engineering* 10, 260–269.
- Saghafi A, Faiz M, Roberts D., 2007.** “CO₂ storage and gas diffusivity properties of coals from Sydney Basin, Australia”. *Int. J. Coal Geology*; 70 (1-3):240–54.
- Shi JQ, Durucan S., 2004.** “A numerical simulation study of the Allison unit CO₂ – ECBM pilot: the impact of matrix shrinkage and swelling on ECBM production and CO₂ injectivity”. In: *Proceedings of 7th international conference on greenhouse gas control technologies*.
- Sips R., 1948.** “On the Structure of a Catalyst Surface”. *J. Chem. Phys.* Volume 16, Issue 5, Pages 490-495. DOI: [10.1063/1.1746922](https://doi.org/10.1063/1.1746922).
- Stevenson MD, Pinczewski WV, Somers ML, Bagio SE, 1991.** “Adsorption/ desorption of multicomponent gas mixtures on coal at in-seam conditions”. *SPE paper 23026*, Perth, Western Australia; November 1991.
- van der Lee J., De Windt L., Lagneau V. et Goblet P., 2003.** “Module oriented modeling of reactive transport with HYTEC”, *Computers & Geosciences*, **29**, 265-275.
- van der Lee, J. et L. De Windt, 2002.** “CHESS Tutorial and Cookbook, Updated for Version 3.0”. *Rapport Technique LHM/RD/02/13*, Ecole des Mines de Paris, Fontainebleau (France).
- van der Lee, J., 1998.** “Thermodynamic and mathematical concepts of CHESS”. *Technical Report Nr. LHM/RD/98/39*, CIG, Ecole des Mines de Paris, Paris, France, 99 p.
- van der Lee, J., 2005.** “HYTEC Keyword Glossary for version 3.5”. *Rapport technique*, Ecole des Mines de Paris, Fontainebleau (France).
- van der Lee, J., 2007.** “Reactive transport modelling with HYTEC. Users guide and tutorials”. *Rapport technique*, Ecole des Mines de Paris, Fontainebleau (France).
- van der Lee, J., De Windt L., Lagneau V., and Goblet P., 2003.** “Module-oriented modeling of reactive transport with HYTEC”. *Comp. Geosc.* 29, 265–275.
- van der Lee, J., et Lagneau, V., 2004.** “Rigorous methods for reactive transport in unsaturated porous medium coupled with chemistry and variable porosity”. In C. Miller, M. Farthing, W. Gray, et G. Pinder (Eds.), *Computational Methods in Water Resources (CMWR XV)*, Volume 1, p. 861–868.
- White, CM, Smith, DH, Jones, KL, Goodman, AL, Jikich, SA, LaCount, RB and al., 2005.** “Sequestration of Carbon Dioxide in Coal with Enhanced Coalbed Methane Recovery—a Review.” *Energy Fuels* 19 (3): 659–724.
- Wolery, T., 1992.** “EQ3/6. A software package for geochemical modelling of aqueous systems: package overview and installation guide (version 7.0)”. *Rapport Technique UCRLMA-110662 PT I* ed., Lawrence Livermore National Laboratory, USA.
- Zhou, C., Hall, F., Gasem, K.A.M., Robinson Jr., R.L., 1994.** “Predicting gas adsorption using two-dimensional equations of state”. *I&EC Research* 33, 1280–1289.

Conclusions générales et perspectives

6.1. Conclusions générales

Le stockage géologique du CO_2 dans des réservoirs de type veines de charbon non exploité est une des solutions envisagées pour réduire les émissions de gaz à effet de serre dans l'atmosphère. Cependant, l'injection de CO_2 peut perturber les propriétés pétro-physiques (porosité et perméabilité), mécaniques (déformation, résistance à la rupture). Dans le cas du charbon, l'injection de CO_2 se traduit également par des phénomènes de gonflement de la matrice liés au processus d'adsorption. Ce travail de thèse avait pour objectifs l'étude de ces comportements et couplages chimio-poromécanique du charbon. Nous n'avons donc traité que la problématique physico-chimique (i.e., utilisation de l'isotherme de Langmuir) étant donné qu'il n'y aucune transformation minéralogique notable à prendre en compte dans le cas du charbon. A cause de la structure particulière du charbon, structure de roche à double porosité, les principaux objectifs étaient d'établir et d'implémenter dans Code_Aster deux modèles homogénéisés de porosité du charbon prenant en compte l'écoulement (conductivité hydraulique) et les phénomènes de sorption : un pour modéliser un stockage simple du CO_2 et l'autre pour modéliser un stockage du CO_2 avec récupération assistée du méthane CH_4 . Le charbon est aussi cependant une roche hétérogène avec un comportement anisotrope. Mais dans cette thèse, pour des raisons de simplicité des modèles, nous avons considéré le charbon comme étant un milieu homogène ayant un comportement isotrope du point de vue mécanique et hydraulique. Ce qui suppose que les fractures du charbon ont une distribution homogène (mais sans précision de taille dans nos modèles). Ceci nous a permis d'une part de lui appliquer la loi de comportement de Hooke, et d'autre part d'utiliser la perméabilité intrinsèque du milieu dans nos modélisations.

Dans l'étude bibliographique sur le stockage géologique du CO_2 dans le charbon, il est ressorti que lors de l'injection de gaz dans un gisement de charbon, l'augmentation de la pression interstitielle conduit à une diminution des contraintes effectives et à une ouverture des pores (donc augmentation de la porosité/perméabilité), alors que l'adsorption de gaz entraîne un gonflement de la matrice et une diminution de la porosité/perméabilité. Ce qui nous intéressait dans ce travail était de modéliser le gonflement du charbon par le biais de l'isotherme d'adsorption de Langmuir. Parmi les modèles de porosité/perméabilité présents dans la littérature spécialisée, nous nous sommes basés, pour établir nos modèles de porosité, sur l'approche de Palmer et Mansoori (*Palmer and Mansoori 1998*) pour la prise en compte du phénomène de sorption. Ceux-ci ayant émis l'idée de la nécessité de cette prise en compte dans les variations de la porosité/perméabilité et de sa dépendance à la pression de pore.

Initialement installé dans le Code_Aster, le modèle de porosité a pu donc être enrichi par la prise en compte du phénomène de sorption (adsorption, désorption), connu comme étant le principal mécanisme de stockage et de production de gaz dans la matrice du charbon. Ce phénomène est pris en compte par le modèle d'isotherme d'adsorption de Langmuir, une isotherme d'adsorption particulière basée sur un modèle où les surfaces sont considérées

comme homogènes, et dans lequel l'adsorption est locale, spécifique, et se fait sur un nombre fini de sites sous la forme d'une monocouche. La procédure était de passer par des résultats théoriques des modèles théoriques établis, et après implantation dans Code_Aster, de faire des simulations 1D pour vérifier l'implémentation et enfin des simulations 2D, en déformations planes. Un important travail de développement numérique dans le Code_Aster était donc nécessaire afin d'atteindre ces premiers objectifs de thèse.

L'implantation du premier modèle (pour un seul gaz) dans Code_Aster nous a permis de faire des simulations numériques de stockage de CO_2 dans un charbon dont la pression initiale de gaz était nulle (cf. chapitre 4). Des résultats théoriques et simulations numériques de ce premier modèle, on a pu observer et analyser l'importance du phénomène de sorption lors d'une injection de CO_2 dans le charbon. Ces observations et analyses se sont faites en comparant le cas avec la prise en compte de la sorption au cas sans prise en compte de la sorption. Dans le cas sans prise en compte de la sorption, l'augmentation de la pression de gaz a augmenté les valeurs des propriétés pétro-physiques, c'est-à-dire la porosité et la perméabilité de la roche. Cela correspond au mécanisme Hydro-Mécanique d'augmentation de la porosité. Dans le cas avec la prise en compte de la sorption, contrairement au cas précédent, l'augmentation de la pression de gaz a diminué les propriétés pétro-physiques de la roche. Cela correspond au mécanisme physico-chimique du gonflement matriciel et de réduction de porosité associé de la roche (charbon). La prise en compte du phénomène de sorption permettra donc de mieux contrôler en général le comportement de la roche, et en particulier les variations de ses propriétés pétro-physiques.

Suite à cette étude, une part importante de ce travail de thèse a été consacrée à l'étude de certains paramètres du premier modèle de porosité (pour un seul gaz). Nous avons en particulier étudié l'influence des propriétés hydro-mécaniques du charbon (coefficient de Biot, module de Young/module d'incompressibilité), des paramètres d'adsorption de Langmuir et la pression initiale du liquide interstitiel dans le charbon, sur la réponse du charbon à l'injection du CO_2 .

Concernant les études sur l'influence du module de Young/module de compressibilité, cela a permis de montrer que sa valeur a une grande influence sur les résultats, que cela soit dans les calculs théoriques ou numériques sous Code_Aster. Dans le cas sans la prise en compte de la sorption, l'augmentation de la porosité et de la perméabilité est favorisée par les faibles valeurs du module de Young/module de compressibilité. Les déformations mécaniques dues à l'injection de gaz sont elles de plus en plus grandes. Ces faibles valeurs du module de Young/module de compressibilité augmentent ainsi les effets positifs du couplage Hydro-Mécanique. Par contre dans le cas avec sorption (i.e., avec l'isotherme de Langmuir), ces paramètres inhibent la diminution de la porosité/perméabilité pour de faibles valeurs. Concernant le coefficient de Biot, sans prise en compte de la sorption, des valeurs élevées augmentent les propriétés pétro-physiques. Ceci a montré ainsi l'importance de la prise en compte des variations des contraintes effectives au cours d'une injection de gaz dans les charbons. Cependant, dans le cas avec la prise en compte de la sorption, que cela soit dans les cas théorique et numérique 1D sous Code_Aster ou dans le cas numérique 2D sous Code_Aster, les effets du coefficient de Biot étaient pratiquement les mêmes : la diminution des valeurs des paramètres pétro-physiques était favorisée par les valeurs élevées du coefficient de Biot.

Bien que l'isotherme de Langmuir soit utilisée par la plupart des auteurs dans leurs modélisations de stockage de CO_2 dans le charbon, on connaissait peu l'impact de ses paramètres sur la réponse du charbon à l'injection de CO_2 . Avec notre modèle, nous avons expliqué le rôle important joué par ceux-ci lors de l'injection de CO_2 dans le charbon. Ils déterminent (en particulier le paramètre ε_L) la quantité de gaz adsorbée/désorbée du charbon.

Dans le cas de plusieurs gaz, ils déterminent l'affinité entre le gaz et le charbon. L'augmentation de leurs valeurs augmente ainsi le gonflement du charbon et donc la diminution des valeurs des paramètres pétro-physiques.

Une bonne connaissance des paramètres des modèles (le coefficient de Biot, les paramètres de Langmuir, le module de Young et le module de compressibilité) est nécessaire, notamment pour la modélisation *in-situ*.

Nous nous sommes penchés ensuite sur les conditions d'injection : charbon initialement sec, charbon initialement saturé en eau, contraintes déviatoriques, deux puits d'injection etc. Les résultats obtenus ont montré qu'un charbon initialement sec gonfle plus vite qu'un charbon initialement saturé en eau à cause de la progression rapide du gaz dans le premier cas. Il est montré aussi que dans le cas d'un charbon initialement saturé en eau, en négligeant la dissolution du CO_2 dans l'eau interstitielle, les résultats sont comparables au cas d'un charbon initialement sec. Ce qui suggère donc qu'une modélisation adéquate de l'injection de CO_2 dans un charbon saturé d'eau doit tenir compte de cette dissolution du CO_2 dans l'eau interstitielle. Toujours dans le cas d'un charbon initialement saturé en eau, l'étude sur la pression initiale de l'eau interstitielle a montré qu'en présence d'une forte pression initiale, la propagation de la pression de gaz était ralentie avec la prise en compte de la dissolution de CO_2 dans l'eau interstitielle, et donc affecte l'évolution des propriétés pétro-physiques et limite en particulier le déplacement de la roche.

Un second modèle de porosité est établi afin de simuler une injection de CO_2 avec récupération assistée du méthane (chapitre 5). Dans ce chapitre, l'isotherme de Langmuir généralisée est rappelée et utilisée (tout comme la plupart des simulateurs des réservoirs) pour établir un modèle de porosité eulérienne pour le cas particulier de deux gaz (CO_2 , CH_4). Ce modèle généralisé fait apparaître de nouveaux paramètres : les fractions de moles et/ou les pressions partielles de chaque constituant gazeux. Après l'implantation du modèle dans Code_Aster, nous avons présenté un cas test de simulation 1D sous Code_Aster. Dans ce cas test, les variations de la pression du méthane désorbé ne sont pas prises en compte, à cause des limites de fonctionnalités de Code_Aster. Nous avons néanmoins pu prendre en compte la diminution de la fraction de moles du méthane avec l'augmentation de la pression de CO_2 . Même si dans les résultats obtenus la diminution de la pression de CH_4 suite à sa désorption n'est pas prise en compte dans Code_Aster, nous avons pu observer le phénomène de gonflement qui s'est traduit par une diminution de la porosité/perméabilité de la roche. Ce phénomène étant prévisible car, dans la plupart des opérations CO_2 -ECBM, la désorption du méthane et l'adsorption du CO_2 conduisent à une augmentation globale du volume de gaz adsorbé et donc à un gonflement de la matrice. Cependant, la prise en compte des variations de la pression de méthane suite à sa désorption ayant un grand effet sur les résultats des variations de la porosité/perméabilité, comme montré dans nos résultats théoriques avec notre modèle où l'on a supposé une pression de CH_4 nulle pour une pression de CO_2 de 7 MPa, le cas test 2D n'a pas été fait dans cette étude. Il faut donc faire appel à un autre code qui permettrait de gérer les variations simultanées des deux pressions de gaz : d'où l'appel du code couplé chimie-transport, HYTEC.

L'utilisation de HYTEC, un code de transport réactif développé par Mines ParisTech, nous a permis de faire un calcul 1D d'injection d'une solution de CO_2 dans un massif de charbon initialement saturé en méthane. Le module CHESS de HYTEC ne décrivant pas adsorption physique de gaz (CO_2 , CH_4) sur le charbon et compte tenu des besoins de la simulation, la sorption est assimilée à une réaction chimique entre les sites de sorption du charbon et le CO_2/CH_4 . Le CO_2 est resté inactif (i.e. il n'intervient pas dans la réaction de surface sur le charbon) dans ce calcul. On a pu observer une diminution des sites saturés en méthane, une diminution de la concentration en méthane aqueux et une augmentation des sites vides au

cours du temps dans le massif de charbon. L'injection de la solution de CO_2 a donc poussé le méthane à se libérer au cours du temps, ce qui a augmenté les sites vides, qui accueillent le CO_2 pour son piégeage. Le test de l'influence de la porosité, de la masse volumique, de la concentration massique du charbon et de la concentration initiale du charbon en méthane sur les résultats (des différentes concentrations) de simulations avec HYTEC a été fait. Ceci a révélé que la concentration massique détermine en quelque sorte les concentrations des sites spécifiques de sorption (sites vides et saturés en méthane). La porosité influence aussi bien les variations des concentrations des sites de sorption que la concentration en méthane aqueux. Ce test a permis aussi de voir qu'avec une faible concentration du méthane initial, les variations des sites vides et saturés en méthane sont lentes par rapports à celles avec des concentrations en méthane initial supérieures.

Vu les limites du Code_Aster pour la gestion des variations simultanées de pression de plusieurs gaz, le code couplé chimie-transport, HYTEC, est utilisé pour nous aider à résoudre ce problème. Ce qui a nécessité un couplage entre les deux codes. HYTEC se charge de calculer les pressions partielles de CO_2 et du CH_4 à chaque fin de pas de temps et de les envoyer à Code_Aster pour le calcul des fractions de moles de ces gaz et la résolution de l'équation de la porosité. Code_Aster étant un code d'éléments finis avec des maillages quadratiques et HYTEC un code de volumes finis avec des maillages linéaires, le choix de maillage triangulaire dans Code_Aster et celui Voronoï avec triangulation de Delaunay dans HYTEC est faite pour résoudre ce problème. Code_Aster devant utiliser une méthode de projection du maillage quadratique vers un autre maillage linéaire (construit à partir du maillage quadratique) pour les relevés des variables aux nœuds. La technique de couplage entre ces deux codes est bien détaillée dans ce manuscrit (chapitre 5). La procédure était aussi d'effectuer des simulations 1D et 2D avec le modèle couplé Code_Aster-HYTEC. Cependant, le développement dans HYTEC (par Mines ParisTech) n'ayant pas été fini à temps pour nos modélisations, ce développement numérique HYTEC/ASTER n'a pas pu être mené à son terme. Ainsi, les simulations couplées HYTEC/ASTER d'injection du CO_2 dans le charbon avec une récupération assistée du méthane, sont les premières perspectives de cette thèse.

6.2. Perspectives

La première et grande perspective de cette thèse est bien évidemment la poursuite du couplage entre le Code_Aster et HYTEC, une fois que tous les développements dans HYTEC seront finis. Cela permettra d'analyser le comportement du charbon suite au remplacement du méthane CH_4 (qui sera désorbé) par le dioxyde de carbone CO_2 (qui sera adsorbé). Ce couplage devrait permettre aussi de quantifier la quantité de méthane désorbée et celle du CO_2 adsorbée. Les résultats obtenus pourront être comparés avec le cas réel d'injection de CO_2 , par exemple ceux obtenus à partir des sites pilotes de RECOPOLE et CARBOLAB.

Comme première approche dans notre modèle et pour des raisons de simplicité, nous avons considéré le charbon comme un milieu isotrope et homogène du point de vue mécanique et hydraulique dans nos modélisations sous Code_Aster, ce qui n'est pas vraiment le cas dans la nature. Les prochaines études devront aussi se pencher sur des modélisations dans le cas hétérogène et anisotrope. On pourra envisager donc de modéliser le charbon différemment, par exemple dans un cadre toujours continu mais avec une homogénéisation des propriétés mécaniques et hydrauliques. Bref, des hypothèses d'hétérogénéité du gonflement du charbon dépendant de la distribution des vides comme les fractures pourrait être adoptées. Se pencher aussi sur des modélisations dans le cas discontinu, anisotrope, ainsi que sur des cas réels avec

des comportements mécaniques réalistes (autre qu'élastique). Le passage des modélisations 2D aux modélisations 3D pourra être envisagé également.

Dans les modélisations avec Code_Aster, la sorption de gaz sur le charbon est prise en compte par l'effet de la variation de la pression de gaz. Tout comme HYTEC simule la consommation de gaz par une réaction chimique entre les sites de sorption du charbon et les gaz, l'idée serait aussi de modéliser la consommation de gaz sur le charbon dans le Code_Aster en passant par la formulation de l'isotherme de Langmuir en termes de volume de gaz adsorbé. Cela reviendrait à utiliser l'équation (10) de notre article au lieu de l'équation (11) du même article (formulation en termes de déformation volumique). Un nouveau développement dans le Code_Aster serait alors nécessaire.

Références bibliographiques générales

A

Abhijit M., S. Harpalani, and S. Liu, 2012. “Laboratory Measurement and Modeling of Coal Permeability with Continued Methane Production: Part 1 – Laboratory Results”. *Fuel* 94: 110–116. doi:10.1016/j.fuel.2011.10.052.

Aboustit, B.L., Advani S.H., Lee J. K. and Sandhu, R.S., 1982. “Finite element evaluation of thermoelastic consolidation”. *Issues on rock mechanics*, 23 rd., sym. On rock mechanics (ASME). Etats-units, pp. 587-595.

Arri, L. E., Yee, D., Morgan, W.D. and Jeansonne, M.W., 1992. “Modelling Coalbed Methane Production with Binary Gas Sorption.” Casper, WY, SPE Paper No 24363. Proceedings of the Rocky Mountain Regional Meeting of the Society of Petroleum Engineers. PP 459–472.

B

Bae, J.-S., Bhatia, S.K., 2006. “High-pressure adsorption of methane and carbon dioxide on coal”. *Energy Fuels* 20, 2599–2607.

Bai, M., Elsworth, D., 2000. “Coupled processes in subsurface deformation”. ASCE Press, Flow and Transport. 336 pp.

Bastian J. Graupner, Dedong Li, Sebastian Bauer, 2011. “The coupled simulator ECLIPSE-OpenGeoSys for the simulation of CO₂ storage in saline formations”. Geohydromodelling group, Institute of geosciences, University of Kiel, Kudewing-Meyn-Straße 10, 24118 Kiel, Germany. *Energy Procedia* 4, 3794-3800.

Battistutta, E., van Hemert, P., Lutynski, M., Bruining, H., Wolf, K.-H., 2010. “Swelling and sorption experiments on methane, nitrogen and carbon dioxide on dry Selar Cornish coal”. *Int. J. Coal Geology* 84, 39–48.

Benson, S. M., Chandler W., Edmonds, J., Houghton, J., Levine, M., Bates, L., Chum, H., Dooley, J., Grether, D., Logan, J., Wiltsee, G., Wright, L., 1998. Assessment of Basic Research Needs for Greenhouse Gas Control Technologies.

Biot M. A., 1941. “General theory of three-dimensional consolidation”. *J. Appl. Phys.*, 12, pp. 155-164.

Biot M. A., 1956. “Thermo elasticity and irreversible thermodynamics”. *J. Appl. Phys.*, 27, pp. 240-353.

Bishop A.W., 1959. “The principle of effective stress”. *Teknisk Ukeblad I Samarbeide Med Teknikk*, Oslo, Norway, 106(39), 859–863.

Blaisonneau A., André L., 2009. “Influence du comportement mécanique de la roche hôte lors de l’injection de CO₂ supercritique”. *Projet ANR GéoCarbone-Injectivité. Rapport final BRGM*, 64 p.

Boedecker C. and Landwirtschaft J., 1859. Volume 7, p. 48.

Boutéca, M., Charlez, Ph. A., Coussy, O., Dormieux, L., Dangla, P., Fauchet, B., Giraud, A. et al., 1994. “*Ecole de Mécanique Des Milieux Poreux*”. Aussois: Sciences de la terre. Association Scientifique pour la Géologie et ses Applications.

Bragg, W.L. and Williams, E.G., 1934. “*The effect of thermal agitation on atomic arrangement in alloys*”. Proceeding of the royal Society of London. A. Volume 145. Pages 699-730. DOI: 10.1098/rspa.1934.0132.

Brunauer S., Emmett P.H., Teller E., 1938. “*Adsorption of gases in multimolecular layers*”. Journal of American Chemistry Society, Volume 60, Pages 309-319. DOI: 10.1021/ja01269a023.

Busch, A., Gensterblum, Y., Krooss, B.M., 2003. “*Methane and CO₂ sorption and desorption measurements on dry Argonne premium coals: pure components and mixtures*”. Int. J. Coal Geology 55, 205–224.

Busch, A., Gensterblum, Y., Krooss, B.M., 2007. “*High-pressure sorption of nitrogen, carbon dioxide, and their mixtures on argonne premium coals*”. Energy Fuels 21, 1640–1645.

Busch, A., Y. Gensterblum, B. M. Krooss, and N. Siemons, 2006. “*Investigation of High-pressure Selective Adsorption/desorption Behaviour of CO₂ and CH₄ on Coals: An Experimental Study*”. Int. J. Coal Geology 66 (1–2): 53–68. doi:10.1016/j.coal.2005.07.003.

Bustin RM, Clarkson CR., 1998. “*Geological controls on coalbed methane reservoir capacity and gas content*”. Int. J. Coal Geology; 38 (1-2):3–26.

C

Charrière, D., 2009. “*Caractérisation de l'adsorption du CO₂ sur du charbon — Application à la séquestration géologique de CO₂ en terrains houillers*”. Thèse de l'Université de Toulouse.

Charrière, D., Behra, P., 2010. “*Water sorption on coals*”. Journal of Colloid and Interface Science 344, 460–467.

Clarkson, C.R., and Bustin, R.M., 1999a. “*The Effect of Pore Structure and Gas Pressure Upon the Transport Properties of Coal: a Laboratory and Modeling Study. 1. Isotherms and Pore Volume Distributions*”. Fuel 78: 1333–1344.

Clarkson, C.R., and Bustin, R.M., 1999b. “*The Effect of Pore Structure and Gas Pressure Upon the Transport Properties of Coal. 2. Adsorption Rate Modeling*”. Fuel 78: 1345–1362.

Clarkson, C.R., Bustin, R.M., 2000. “*Binary gas adsorption/desorption isotherms: Effect of moisture and coal composition upon carbon dioxide selectivity over methane*”. Int. J. Coal Geology 42, 241–271.

Close, J.C., 1993. “*Natural fractures in coal. In: Law, B.E., Rice, D.D. (Eds.), Hydrocarbons From Coal. : AAPG Studies in Geology*”. American Association of Petroleum Geologists, Tulsa, Oklahoma. 38: 119–132.

Code_Aster 2012. Document R7.01.10 – “*Modélisation THHM : généralités et algorithmes*”. http://www.code-aster.org/V2/doc/v11/fr/man_r/r7/r7.01.10.pdf.

Code_Aster 2012. Document R7.01.11 – “*Modèle de comportement THHM*”. http://www.code-aster.org/V2/doc/v11/fr/man_r/r7/r7.01.11.pdf.

Code_Aster 2012. Document U4.72.05 – “Opérateur PROJ_CHAMP”. http://www.code-aster.org/V2/doc/default/fr/man_u/u4/u4.72.05.pdf.

Connell, L.D., 2009. “Coupled flow and geomechanical processes during gas production from coal seams”. *Int. J. Coal Geology* 79 (1–2), 18–28.

Connell, L.D., Detournay, C., 2009. “Coupled flow and geomechanical processes during enhanced coal seam methane recovery through CO₂ sequestration”. *Int. J. Coal Geology* 77 (1–2), 222–233.

Connell, L.D., Pan, Z., Lu, M. and Heryanto, D., 2010a. “Coal Permeability and Its Behaviour with Gas Desorption, Pressure and Stress”. Presented at SPE Asia Pacific Oil & Gas Conference and Exhibition, Brisbane, Australia. Paper Number SPE-133915.

Connell, L. D., M. Lu, and Z. Pan, 2010b. “An Analytical Coal Permeability Model for Tri-axial Strain and Stress Conditions”. *Int. J. Coal Geology* 84 (2) (November 1): 103–114. doi:10.1016/j.coal.2010.08.011.

Coussy, O., 1991. “*Mécanique des milieux poreux*”. Editions TECHNIP, Paris.

Coussy, O., 1995. “*Mechanics of porous continua*”. John Wiley Sons.

Coussy, O., 2004. “*Poromechanics*”. John Wiley & Sons.

Crosdale P. J, B. B. Beamish, and M. Valix. 1998. “Coalbed Methane Sorption Related to Coal Composition.” *Int. J. Coal Geology* 35 (1–4): 147–158. doi:10.1016/S0166-5162(97)00015-3.

Crosdale, P. J., T. A. Moore, and T. E. Mares, 2008. “Influence of Moisture Content and Temperature on Methane Adsorption Isotherm Analysis for Coals from a Low-rank, Biogenically-sourced Gas Reservoir”. *Int. J. Coal Geology* 76 (1–2) (October 2): 166–174. doi:10.1016/j.coal.2008.04.004.

Cui X, Bustin RM, Chikatamarla L., 2007. “Adsorption-induced coal swelling and stress: implications for methane production and acid gas sequestration into coal seams”. *J Geophys Res*; 112(B10):B10202.

Cui, X., and R. M. Bustin. 2005. “Volumetric Strain Associated with Methane Desorption and Its Impact on Coalbed Gas Production from Deep Coal Seams”. *AAPG Bull* 2005; 89:1181-202.

Cui, X., Bustin, R.M. and L. Chikatamarla, 2007. “Adsorption-induced Coal Swelling and Stress: Implications for Methane Production and Acid Gas Sequestration into Coal Seams”. *Journal of Geophysical Research* 112, B10202.

Czerw, K., 2011. “Methane and carbon dioxide sorption/desorption on bituminous coal-Experiments on cubicoid sample cut from the primal coal lump”. *Int. J. Coal Geology* 85, 72-77.

D

Dave, N., Duffy, G., Edwards, J., 1990. “CO₂ mitigation from coal-fired power generation”. *Australian Coal Review* 8, 31–34.

Day, S., Fry, R., Sakurovs, R., 2008. “Swelling of Australian coals in supercritical CO₂”. *Int. J. Coal Geology* 74, 41–52.

De Silva P.N.K., Ranjith P.G., Choi S.K., 2012. “A study of methodologies for CO₂ storage capacity estimation of coal”. Fuel 91: 1–15.

De Windt, L., J. van Der Lee., Schmitt, J. M., 2005. “Modélisation en géochimie des eaux”. Concepts et applications aux problèmes d’environnement. Rev. Techn. Ing. AF-6-530, 1–18.

De Windt L., J. Van Der Lee, V. LAGNEAU, novembre 2007. Rapport R-301107-DEWI, Ecole des mines de Paris, Fontainebleau, France.

De Windt L., V. Lagneau et J. van der Lee, 2008. “Formation à l’outil de transport réactif HYTEC Applications à la migration d’éléments chimiques dans les milieux poreux”. Rapport Technique R080512VL.

DeDoer, J.H., 1953. “The Dynamical Character of Adsorption”. Oxford University Press, Oxford.

Défosses P.D.C., 2008. Caractérisation de charbons en vue de leur utilisation dans le cadre du stockage du CO₂, Rapport n° 1 du projet CHARCO. Rapport BRGM/RP-56017 FR.

DeGance, A.E., 1992. “Multicomponent high-pressure adsorption equilibria on carbon substrates: theory and data”. Fluid Phase Equilibria 78, 99–137.

Didier, R., 1997. Chimie générale. Paris : Tec&Doc Lavoisier, 1997. 651 p.

Do, D.D., 1998. “Adsorption Analysis: Equilibria and Kinetics”. Imperial College Press, London.

Donohue M.D., Aranovich G.L., 1998. “Classification of Gibbs adsorption isotherms”. Advances in Colloid and Interface Science, Volumes 76-77, Pages 137-152. DOI: 10.1016/S0001-8686(98)00044-X.

Doyle, B.R., 2001. “Hazardous Gases Underground — Applications to Tunnel Engineering”. Marcel Dekker, Inc.

Durucan, S., Edwards, J.S., 1986. “The effects of stress and fracturing on permeability of coal”. Mining Sci Technol 3, 205–216.

E

Elsworth, D., Bai, M., 1992. “Flow-deformation response of dual porosity media”. J. Geotechnical Eng 118, 107–124.

Every RL and Dell’Osso LJ., 1976. “Method for removing methane from coal. Patent file date”. Filed date 7 June 1976. Medium: X; 1977. p. 8.

F

Faiz, M., Saghafi, A., Sherwood, N., and Wang, I., 2007. “The Influence of Petrological Properties and Burial History on Coal Seam Methane Reservoir Characterisation, Sydney Basin, Australia”. Int. J. Coal Geology 70 (1–3): 193–208. doi:10.1016/j.coal.2006.02.012.

Fitzgerald, J.E., Pan, Z., Sudibandriyo, M., Robinson, R.L., Jr., Gasem, K.A.M., Reeves, S., 2005. “Adsorption of methane, nitrogen, carbon dioxide and their mixtures on wet Tiffany coal”. *Fuel* 84: 2351–2363.

Flores, R.M., 1998. “Coalbed methane: from hazard to resource”. *Int. J. Coal Geology* 35, 3–26.

Fowler R.H., Guggenheim E.A., 1965. “Statistical thermodynamics. Theory of the properties do matter in equilibrium”. Cambridge press, Cambridge. Pages 358-361.

Freundlich H., 1926. “Colloid and Capillary Chemistry”. Methuen, London.

Fulton, P. F., Parente, C.A., Rogers, B.A., Shah, N., Reznik, A.A., 1980. Society of Petroleum Engineers journal: 65.

G

Gale, J., Freund, P., 2001. “Coal-bed methane enhancement with CO₂ sequestration potential”. *Environmental Geosciences* 8, 210–217.

Gan, H., Nandi S.P., and Walker P.L. Jr. 1972. “Nature of the Porosity in American Coals.” *Fuel* 51 (4) (October): 272–277. doi:10.1016/0016-2361(72)90003-8.

Garnier CH., 2009. “Expérimentation et modélisation de l'échange de gaz dans les CHARbons en vue d'un stockage du CO₂”.

Gaucher, E.C., Défossez, P.D.C., Bizi, M., Bonijoly, D., Disnar, J.-R., Laggoun Défarge, F., Garnier, Ch., Finqueneisel, G., Zimny, T. Grgic, D., Pokryszka, Z., Lafortune, S. & Vidal Gilbert, S. (2011). “Coal laboratory characterisation for CO₂ geological storage”. *Energy Procedia*, Vol. 4, 3147-3154. Greenhouse Gas Control Technologies 10, Proceedings of the 10th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies (GHGT-10), 19- 23 September 2010, RAI Amsterdam, The Netherlands. Présentation poster.

Gilman, A., and Beckie, R., 2000. “Flow of Coalbed Methane to a Gallery”. In: *Transport Porous Media* 41: pp. 1–16.

Giraud A., 2001. “Modélisation des couplages THM dans les milieux poreux saturés et partiellement saturés”. Mémoire de HDR, Institut National Polytechnique de Lorraine:179p.

Gray, I. 1987. “Reservoir Engineering in Coal Seams: Part 1 – the Physical Process of Gas Storage and Movement in Coal Seams”. In: Paper SPE 12514, SPE Reservoir Engineering (February 1987): pp. 28–34.

Grenthe, I., J. Fuger, R. J. Konings, R. J. Lemire, A. B. Muller, C. Nguyen-Trung, et H. Wanner, 1992. “Chemical thermodynamics of uranium”. Amsterdam (NL): North- Holland.

Grgic, D., 2011a. “Mechanical and petrographical evolutions of a carbonate rock during injection of CO₂”. *Energy Procedia*, Vol. 4. Greenhouse Gas Control Technologies 10, Proceed-ings of the 10th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies (GHGT- 10), 19-23 September 2010, RAI Amsterdam, The Netherlands. Présentation poster.

Grgic, D., 2011b. “The influence of CO₂ on physico-chemical and mechanical properties of an oolitic limestone”. *J. Geophys. Res. B: Solid Earth*, article number: 2010JB008176.

Gruszkiewicz, M.S., Naney, M.T., Blencoe, J.G., Cole, D.R., Pashin, J.C., Carroll, R.E., 2009. “Adsorption kinetics of CO₂, CH₄, and their equimolar mixture on coal from the Black Warrior Basin, West-Central Alabama”. *Int. J. Coal Geology* 77, 23–33.

Gu, F., Chalaturnyk, R.J., 2005. “Analysis of coalbed methane production by reservoir and geomechanical coupling simulation”. *Journal of Canadian Petroleum Technology* 44 (10), 33–42.

Gu, F., Chalaturnyk, R.J., 2006. “Numerical simulation of stress and strain due to gas sorption/desorption and their effects on in situ permeability of coalbeds”. *Journal of Petroleum Science and Engineering* 45 (10), 52–62.

Gu, F., Chalaturnyk, R.J., 2010. “Permeability and porosity models considering anisotropy and discontinuity of coalbeds and application in coupled simulation”. *Journal of Petroleum Science and Engineering* 74 (3–4), 113–131.

Gunter, W.D., Mavor, M.J., Robinson, J.R., 2004. “CO₂ storage and enhanced methane production; field testing at Fenn-Big Valley, Alberta, Canada, with application”. In: Rubin, E.S., Keith, W.D., Gilboy, C.F. (Eds.), *Proceedings of 7th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies*, 1. IEA Greenhouse Gas Programme, Cheltenham, UK.

Gunter W. D., M. J. Mavor, and J. R. Robinson, 2005. “CO₂ Storage and Enhanced Methane Production: Field Testing at Fenn-Big Valley, Alberta, Canada, with Application”. In *Greenhouse Gas Control Technologies 7*, edited by E.S. Rubin, D.W. Keith, C.F. Gilboy, M. Wilson, T. Morris, D.W. Keith J. Gale and K. Thambimuthu (eds.). Elsevier Science Ltd: Oxford; 413–421.

H

Hall FE, Chunhe Z, Gasem KAM, Robinson RL, Jr. Oklahoma State U, Dan Yee, 1994. “Adsorption of pure methane, nitrogen, and carbon dioxide and their binary mixtures on wet Fruitland coal”. Eastern regional conference & exhibition of the society of Petroleum Engineers, Charleston, WV, SPE.

Hall, P.J., Brown S.D., and Calo J.M., 2000. “The Pore Structure of the Argonne Coals as Interpreted from Contrast Matching Small Angle Neutron Scattering.” *Fuel* 79 (11) (September): 1327–1332. doi:10.1016/S0016-2361(99)00270-7.

Han, F., Busch, A., Van Wagoningen, N., Yang, J., Liu, Z. and Krooss, B.M., 2010. “Experimental Study of Gas and Water Transport Processes in the Inter-cleat (matrix) System of Coal: Anthracite from Qinshui Basin, China”. *Int. J. Coal Geology* 81: 128–138.

Harpalani S. and M. Abhijit, 2010. “Impact of CO₂ Injection on Flow Behavior of Coalbed Methane Reservoirs”. *Transp Porous Med* 82, 141–156. DOI 10.1007/s11242-009-9475-1.

Harpalani, S., 1999. “Compressibility of Coal and Its Impact on Gas Production from Coalbed Reservoirs”. In: Amadei, Dranz, Scott, Smeallie (Eds.), *Rock Mechanics for Industry*, pp. 301–308.

Harpalani, S., Chen, G., 1997. “Influence of gas production induced volumetric strain on permeability of coal”. *Geotechnical Geological Eng* 15, 303–325.

Harpalani, S., Prusty, B.K., Dutta, P., 2006. “Methane/CO₂ sorption modeling for coalbed methane production and CO₂ sequestration”. *Energy Fuels* 20, 1591–1599.

- Harpalani, S., Schraufnagel, R.A., 1990.** “*Shrinkage of coal matrix with release of gas and its impact on permeability of coal*”. Fuel 69, 551–556.
- Harpalani, S., Zhao, X., 1989.** “*An investigation of the effect of gas desorption on gas permeability*”. Proceedings of the Coalbed Methane Symposium, University of Alabama, Tuscaloosa, Alabama, pp. 57–64.
- Harpalani, S., and G. Chen, 1995.** “*Estimation of Changes in Fracture Porosity of Coal with Gas Emission*”. Fuel 74 (10): 1491–1498. doi:10.1016/0016-2361(95)00106-F.
- Hill, T.L. 1964.** Journal of Chemical Physics. Volume 14, p. 1441.
- Hol, S., Peach, C.J., Spiers, C.J., 2011.** “*Applied stress reduces the CO₂ sorption capacity of coal*”. Int. J. Coal Geology 85, 128–142.
- Holloway, S., 1997.** “*An overview of the underground disposal of carbon dioxide*”. Energy Convers. Manag. 38, 193–198.
- Hueckel T. and Peano, A., 1987.** “*Some Geotechnical Aspects of Radioactive Waste Isolation in Continental Clays*”. Computers and Geotechnics, an International Journal, 3, 157–182.
- Hueckel T., and Borsetto, M., 1990.** “*Thermoplasticity of Saturated Soils and Shales: Constitutive Equations*”. Journal of Geotechnical Engineering, ASCE, 116(12) 1765–1777.
- Huy, P.Q., Sasaki, K., Sugai, Y., Ichikawa, S., 2010.** “*Carbon dioxide gas permeability of coal core samples and estimation of fracture aperture width*”. Int. J. Coal Geology 83, 1–10.

I

- Izadi, G., Wang, S., Elsworth, D., Liu, J., Wu, Y., Pone, D., 2011.** “*Permeability evolution of fluid-infiltrated coal containing discrete fractures*”. Int. J. Coal Geology 85, 202–211.

J

- Jackson, G., 2006.** “*CO₂ enhanced methane and reduced water production in high permeability, under-saturated coal seams - a modeling study*”. In: Gale, J., Rokke, N., Zweigel, P., Swenson, H. (Eds.), Proceedings of Eighth International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies. Elsevier Ltd, Oxford (CD-ROM).
- Jaeger J. C., and N. G. W Cook, 1979.** “*Fundamentals of Rock Mechanics*”. Third edition, Chapman and Hall. London.
- Jakubov T.S., Mainwaring D.E., 2002.** “*Modified Dubinin–Radushkevich/Dubinin–Astakhov Adsorption Equations*”. Journal of Colloid and Interface Science. Volume 252, Issue 2, Pages 263–268. DOI: 10.1006/jcis.2002.8498.
- Jaroniec M. and Marczewski A.W., 1984.** “*Physical adsorption of gases on energetically heterogeneous solids I. Generalized Langmuir equation and its energy distribution*”. Monatshefte für Chemie / Chemical Monthly. Volume 115, Issues 8–9, Pages 997–1012. DOI: 10.1007/BF00798768.

K

- Karacan C.O.**, 2003: “*Heterogeneous sorption and swelling in a confined and stressed coal during CO₂ Injection*”. *Energy & Fuel*. 17. 1595-1608.
- Kelemen, S.R., Kwiatek, L.M.**, 2009. “*Physical properties of selected block Argonne Premium bituminous coal related to CO₂, CH₄, and N₂ adsorption*”. *Int. J. Coal Geology* 77, 2–9.
- King, G. R., Ertekin, T., Schwerer, F.C.**, 1986. “*Numerical Simulation of Transient Behavior of Coal - Seam Degasification Wells*”. Society of Petroleum Engineers Formation Evaluation (SPEFE): 165-183.
- Kiyama, T., Nishimoto, S., Fujioka, M., Xue, Z., Ishijima, Y., Pan, Z., Connell, L.D.**, 2011. “*Coal swelling strain and permeability change with injecting liquid/supercritical CO₂ and N₂ at stress-constrained conditions*”. *Int. J. Coal Geology* 85, 56–64.
- Kolesar, J.E., Ertekin, T. and Obut, S.T.**, 1990. “*The Unsteady-State Nature of Sorption and Diffusion phenomena in the Micopore Structure of Coal: Part 1- Theory and Mathematical formulation*”. Society of Petroleum Engineers Formation Evaluation: 81–88.
- Krooss, B.M, van Bergen F, Gensterblum Y, Siemons N, Pagnier H.J.M, and David P.** 2002. “*High-pressure Methane and Carbon Dioxide Adsorption on Dry and Moisture-equilibrated Pennsylvanian Coals.*” *Int. J. Coal Geology* 51 (2): 69–92. doi:10.1016/S0166-5162(02)00078-2.

L

- Lagneau V. et Corvisier J.**, 2010. “*Module biphasique d’HYTEC – Transport, solubilité et couplage*”. PGT, Fontainebleau, 10 novembre 2010.
- Lagneau, V.**, 2003. “*R2D2 - Reactive transport and waterflow on an odd dimension 2 grid*”. Rapport Technique LHM/RD/03/05, Ecole des Mines de Paris, Fontainebleau (France).
- Langmuir I.**, 1918. “*The adsorption of gases on plane surfaces of glass, mica and platinum*”. *Journal of American Chemistry Society*, Volume 40, Pages 1361-1403. DOI: 10.1021/ja02242a004.
- Larsen JW, Flowers RA, Hall PJ**, 1997. “*Structural rearrangement of strained coals*”. *Energy Fuels* 11, 998–1002.
- Laubach, S.E., Marrett, R.A., Olson, J.E., Scott, A.R.**, 1998. “*Characteristics and origins of coal cleat, a review*”. *Int. J. Coal Geology* 35 (1–4), 175–207.
- Law, D.H.-S., van der Meer, L.G.H., Gunter, W.D.**, 2002. “*Numerical simulator comparison study for enhanced coalbed methane recovery processes, part I: pure carbon dioxide injection*”. Presented at the 2002 SPE Gas Technology Symposium, Calgary, Alberta, Canada, paper SPE 75669.
- Laxminarayana, C., Crosdale, P.J.**, 1999. “*Role of coal type and rank on methane sorption characteristics of Bowen Basin, Australia coals*”. *Int. J. Coal Geology* 40, 309–325.

Le Gal N., 2012. “*Libération et migration du méthane depuis le charbon dans un contexte hydrogéologique post-minier. Développement d’un protocole expérimental et approche numérique*”. Thèse de l’école nationale supérieure des mines de Paris. Spécialité ‘hydrologie et hydrogéologie quantitatives’ (juin 2012).

Le Gal N., Lagneau V., Charmoille A., 2012. “*Experimental characterization of CH₄ release from coal at high hydrostatic pressure*”. International Journal of Coal Geology, doi: 10.1016/j.coal.2012.04.001.

Levine, J.R., 1996. “*Model study of the influence of matrix shrinkage on absolute permeability of coal bed reservoirs*”. Geological Society, London, Special Publications 109 (1), 197–212.

Lewis, R.W., Majorana, C.E. et Schrefler, B.A., 1986. “*A coupled finite element model for the consolidation of non-isothermal elastoplastic porous media*”. Transport in Porous Media, 1, pp. 155-178.

Li, D., Liu, Q., Weniger, P., Gensterblum, Y., Busch, A., Krooss, B.M., 2010. “*High-pressure sorption isotherms and sorption kinetics of CH₄ and CO₂ on coals*”. Fuel 89, 569–580.

Lindeberg, E., and P. Bergmo, 2003. “*The Long-Term Fate of CO₂ Injected into an Aquifer*”. In Greenhouse Gas Control Technologies - 6th International Conference, edited by J. Gale and Y. Kaya, 489–494. Oxford: Pergamon.

Liu, H.-H., Rutqvist, J., 2010. “*A new coal-permeability model, internal swelling stress and fracture–matrix interaction*”. Transport in Porous Media 82 (1), 157–171.

Liu, J., Chen, Z., Elsworth, D., Miao, X., Mao, X., 2010. “*Linking gas-sorption induced changes in coal permeability to directional strains through a modulus reduction ratio*”. Int. J. Coal Geology 83 (1), 21–30.

Liu, J., Chen, Z., Elsworth, D., Qu, H., Chen, D., 2011a. “*Interactions of multiple processes during CBM extraction: a critical review*”. International Journal of Coal Geology 87, 175–189.

Liu, J., Elsworth, D. and Brady, B.H., 1999. “*Linking Stress-dependent Effective Porosity and Hydraulic Conductivity Fields to RMR*”. International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences 36 (5): 581–596. doi:10.1016/S0148-9062(99)00029-7.

Liu, J., Wang, J., Chen, Z., Wang, S., Elsworth, D., Jiang, Y., 2011b. “*Impact of transition from local swelling to macro swelling on the evolution of coal permeability*”. Int. J. Coal Geology. doi:10.1016/j.coal.2011.07.008.

M

Ma, Q., Harpalani, S., Liu, S., 2011. “*A simplified permeability model for coalbed methane reservoirs based on matchstick strain and constant volume theory*”. Int. J. Coal Geology 85 (1), 43–48.

Majewska, Z., Majewski, S., Zietek, J., 2010. “*Swelling of coal induced by cyclic sorption/desorption of gas: Experimental observations indicating changes in coal structure due to sorption of CO₂ and CH₄*”. Int. J. Coal Geology 83, 475–483.

Marczewski A.W. and Jaroniec M., 1983. “A new isotherm equation for single-solute adsorption from dilute solutions on energetically heterogeneous solids”. *Monatshefte für Chemie.*, Volume 114, Pages 711-715. DOI: 10.1007/BF01134184.

Massarotto, P., Golding, S.D., Rudolph, V., 2006. “Preliminary feasibility economics and risk of CO₂ geosequestration in coal seams of the Bowen Basin, Australia”. Proceedings of the 8th International Conference of GHG Technologies, Trondheim, Norway.

Mastalerz, M., Gluskoter, H., Rupp, J., 2004. “Carbon dioxide and methane sorption in high volatile bituminous coals from Indiana, USA”. *Int. J. Coal Geology* 60, 43–55.

Mazumder, S., Wolf, K.H., 2008. “Differential swelling and permeability change of coal in response to CO₂ injection for ECBM”. *Int. J. Coal Geology* 74, 123–138.

McKee, C.R., Bumb, A.C. and R.A. Koenig, 1987. “Stress-Dependent Permeability and Porosity of Coal”. *Proc., Coalbed Methane Symposium, Tuscaloosa, Alabama (November 1987)* 183.

McKee, C.R., Bumb, A.C. and R.A. Koenig, 1987. “Stress-Dependent Permeability and Porosity of Coal”. *Proc., Coalbed Methane Symposium, Tuscaloosa, Alabama (November 1987)* 183.

McKee, C.R., Bumb, A.C., Koenig, R.A., 1988. “Stress-dependent permeability and porosity of coal and other geologic formations”. *SPE Formation Evaluation* 3 (1), 81–91.

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

Myers AL, Prausnitz JM, 1965. “Thermodynamics of mixed-gas adsorption”. *AIChE J*, 11: 121–9.

N

National Energy Technology Laboratory (USA). “Carbon sequestration technology Roadmap and Program Plan 2007”. http://www.netl.doe.gov/technologies/carbon_seq/refshelf/project%20portfolio/2007/2007roadmap.pdf ; 2007 [accessed 10.31.10].

O

Ottiger S., Pini R., Stirti G., and Mazzotti M., 2008. “Competitive adsorption equilibria of CO₂ and CH₄ on a dry coal”. *Adsorption* 14, 539-556.

P

Palmer, I., and Mansoori, J., 1996. “How Permeability Depends on Stress and Pore Pressure in Coalbeds: a New Model”. Annual Technical Conference and Exhibition. Denver, Colorado. SPE 36737.

- Palmer, I., and Mansoori, J., 1998.** “How Permeability Depends on Stress and Pore Pressure in Coalbeds: A New Model”. In: Paper SPE 52607, SPE Reservoir Evaluation & Engineering (December): 539–544.
- Palmer, I., Mavor, M., Gunter, B., 2007.** “Permeability changes in coal seams during production and injection”. Paper 0713 presented at the International Coalbed Methane Symposium, Tuscaloosa, Alabama, USA, 5–9 May
- Palmer I., 2009.** “Permeability Changes in Coal: Analytical Modeling”. Int. J. Coal Geology 77 (1–2) (January 7): 119–126. doi:10.1016/j.coal.2008.09.006.
- Pan Z and Connell LD, 2007.** “A theoretical model for gas adsorption-induced coal swelling”. Int. J. Coal Geol; 69(4): 243–252.
- Pan Z and Connell LD, 2009.** “Comparison of adsorption models in reservoir simulation of enhanced coalbed methane recovery and CO₂ sequestration in coal”. International journal of greenhouse gas control 3, 77 – 89.
- Pan, Z., Connell, L.D., 2011.** “Modelling of anisotropic coal swelling and its impact on permeability behaviour for primary and enhanced coalbed methane recovery”. Int. J. Coal Geology 85, 257–267.
- Pan, Z., Connell, L.D., Camilleri, M., 2010.** “Laboratory characterisation of coal reservoir permeability for primary and enhanced coalbed methane recovery”. International J. Coal Geology 82, 252–261.
- Pan, Z., and L. D. Connell, 2012.** “Modelling Permeability for Coal Reservoirs: A Review of Analytical Models and Testing Data”. Int. J. Coal Geology 92 (0) (March 1): 1–44. doi:10.1016/j.coal.2011.12.009.
- Pekot, L.J., and Reeves, S. R., 2003.** “Modeling the Effects of Matrix Shrinkage and Differential Swelling on Coalbeds Methane Recovery and Carbon Sequestration”. In: Paper 0328, International Coalbed Methane Symposium, University of Alabama, Tuscaloosa, Alabama, USA.
- Pingping, S., C. Xinglong, and Q. Jishun, 2010.** “Pressure Characteristics in CO₂ Flooding Experiments”. Petroleum Exploration and Development 37 (2): 211–215. doi:10.1016/S1876-3804(10)60026-2.
- Prigogine, I. et Defay, R., 1950.** *Thermodynamique chimique*. Liège : Dosoer, 1950. 557 p.

R

- Reeves, S., Taillefert, A., Pekot, L. and Clarkson, C., 2003.** “The Allison Unit CO₂ — ECBM Pilot: a Reservoir MODELING Study”. Topical Report, U.S. Department of Energy, DE-FC26-ONT40924.
- Reeves, S.R., Davis, D.A. and Oudinot, A.Y, 2004.** “A Technical and Economic Sensitivity Study of Enhanced Coalbed Methane Recovery and Carbon Sequestration in Coal”. Topical Report, U.S. Department of Energy, DE-FC26-0NT40924.
- Reiss, L.H., 1980.** “The Reservoir Engineering Aspects of Fractured Formations”. Gulf Publishing Co., Houston.

- Reznik, A.A., Singh, P.K. and Foley, W.L., 1984.** “An analysis of the effect of CO₂ injection on the recovery of in-situ methane from bituminous coal: an experimental simulation”. Society of Petroleum Engineers Journal: 521–528.
- Richard, D. W., M. Gediminas, M. Vivak, M. and H. Stephen, 2012.** “Variations in the Mechanical Behavior of Illinois Bituminous Coals”. Fuel 98: 213–217.
- Robertson, E. P., Christiansen, R. L., 2006.** “A permeability model for coal and other fractured sorptive-elastic media”. Paper SPE 104380. In: Proceedings of the 2006 SPE Eastern Regional Meeting, Ohio, 11–13 October.
- Robertson, E.P., and Christiansen, R.L., 2005.** “Measurement of Sorption Induced Strain”. Paper 0532, Proceedings of the 2005 International Coalbed Methane Symposium. Tuscaloosa, A.
- Robertson, E.P., Christiansen, R.L., 2007.** “Modeling laboratory permeability in coal using sorption-induced-strain data”. SPE Reservoir Evaluation & Engineering 10, 260–269.
- Ross, H. E., P. Hagin, and M. D. Zoback, 2009.** “CO₂ Storage and Enhanced Coalbed Methane Recovery: Reservoir Characterization and Fluid Flow Simulations of the Big George Coal, Powder River Basin, Wyoming, USA”. International Journal of Greenhouse Gas Control 3 (6): 773–786. doi:10.1016/j.ijggc.2009.06.002.
- Rouquerol J., Avnir D., Fairbridge C.W., Everett D.H., Haynes J.M., Pernicone N., Ramsay J.D.F., Sing K.S.W., Unger K.K., 1994.** “Recommendations for the characterization of porous solids”. IUPAC Technical Report. Pure Applied Chemistry. Volume 66, Issue 8, p. 1739-1758. DOI: 10.1351/pac199466081739
- Russell P., Y. Cinar, R. Moreby, 2011.** “Simulation of an enhanced gas recovery field trial for coal mine gas management”. Int. J. Coal Geology 85, 247–256.

S

- Saghafi A, Faiz M, Roberts D., 2007.** “CO₂ storage and gas diffusivity properties of coals from Sydney Basin, Australia”. Int. J. Coal Geology; 70 (1-3):240–54.
- Saliya, K., D. Grgic, R. Giot, and A. Giraud, 2013.** “THM Modeling of the CO₂ Injection in Coal: Influence of Biot’s Coefficient and Langmuir’s Adsorption Parameters”. Poromechanics V: Proceedings of the Fifth Biot Conference on Poromechanics, pp. 648-657. American Society of Civil Engineers. doi: 10.1061/9780784412992.077.
- Sawyer, W.K., G.W. Paul, and R. A. Schraufnagel, 1990.** “Development and Application of a 3D Coalbed Simulator”. In: Paper CIM/SPE 90-119, Presented at the 1990 International Technical Meeting Hosted Jointly by the Petroleum Society of CIM and the Society of Petroleum Engineers, Calgary, Alberta, Canada.
- Schiffman, R.L., 1971.** “A thermoelastic theory of consolidation”. Environmental and Geophysical heat transfer, Heat transfer division (ASME), 1(4), 78-84.
- Seidle, J.P., and Huitt, L. G., 1995.** “Experimental Measurements of Coal Matrix Shrinkage Due to Gas Desorption and Implications for Cleat Permeability Increases”. In: Paper SPE 30010, Proceedings of the 1995 International Meeting on Petroleum Engineering, Beijing, China.

- Seidle, J.P., Huitt, L.G., 1995.** “Experimental measurements of coal matrix shrinkage due to gas desorption and implications for cleat permeability increases”. SPE-30010-MS.
- Shi JQ, Durucan S., 2004.** “A numerical simulation study of the Allison unit CO₂ – ECBM pilot: the impact of matrix shrinkage and swelling on ECBM production and CO₂ injectivity”. In: Proceedings of 7th international conference on greenhouse gas control technologies.
- Shi, J.Q., and Durucan, S., 2003a.** “Changes in Permeability of Coalbeds During Primary Recovery — Part 1: Model Formulation and Analysis”. Proceedings of the 2003 International Coalbed Methane Symposium. University of Alabama, Tuscaloosa, Alabama. Paper 0341.
- Shi, J.Q., and Durucan, S., 2003b.** “Changes in Permeability of Coalbeds During Primary Recovery — Part 2: Model Formulation and Analysis”. Proceedings of the 2003 International Coalbed Methane Symposium. University of Alabama, Tuscaloosa, Alabama. Paper 0342.
- Shi, J.Q., and Durucan, S., 2004a.** “Drawdown induced changes in permeability of coalbeds: a new interpretation of the reservoir response to primary recovery”. Transport in Porous Media 56 (1), 1–16.
- Shi, J.Q., and Durucan, S., 2004b.** “A numerical simulation study of the Allison Unit CO₂-ECBM pilot: the effect of matrix shrinkage and swelling on ECBM production and CO₂ injectivity”. Proceedings of the 7th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies (GHGT 7), September 5–9, Vancouver, Canada, V.1, pp. 431–442.
- Shi, J.Q., and Durucan, S., 2005.** “A model for changes in coalbed permeability during primary and enhanced methane recovery”. SPE Reservoir Evaluation and Engineering 8 (4), 291–299.
- Shugang, Wang, Elsworth Derek, and Liu Jishan, 2011.** “Permeability Evolution in Fractured Coal: The Roles of Fracture Geometry and Water-content”. Int. J. Coal Geology 85: 13 – 25.
- Siemons, N., Busch, A., 2007.** “Measurement and interpretation of supercritical CO₂ sorption on various coals”. Int. J. Coal Geology 69, 229–242.
- Sing K.S.W., Everett D.H., Haul R.A.W., Moscou L., Pierotti R.A., Rouquerol J., Siemieniewska T., 1985.** “Reporting physisorption data for gas/solid systems with special reference to the determination of surface area and porosity”. IUPAC recommendations. Pure Applied Chemistry. Volume 57, Issue 4, p. 603-619. DOI: 10.1351/pac198557040603
- Sips R., 1948.** “On the Structure of a Catalyst Surface”. J. Chem. Phys. Volume 16, Issue 5, Pages 490-495. DOI: [10.1063/1.1746922](https://doi.org/10.1063/1.1746922).
- Sips R., 1950.** “On the Structure of a Catalyst Surface II”. J. Chem. Phys. Volume 18, Issue 8, 1024-1026. DOI: 10.1063/1.1747848.
- Siriwardane, H., Haljasmaa, I., McLendon, R., Irdi, G., Soong, Y., Bromhal, G., 2009.** “Influence of carbon dioxide on coal permeability determined by pressure transient methods”. Int. J. Coal Geology 77, 109–118.
- Somerton, W.H., Soylemezoglu, I.M., Dudley, R.C., 1975.** “Effect of stress on permeability of coal”. Int J. Rock Mechanics Mining Sci Geomechanics Abstracts 12, 129–145.
- Stevenson MD, Pinczewski WV, Somers ML, Bagio SE, 1991.** “Adsorption/ desorption of multicomponent gas mixtures on coal at in-seam conditions”. SPE paper 23026, Perth, Western Australia; November 1991.

T

Terzaghi, K., 1923. “*Die Berechnung der durchlässigkeitsziffer des Tones aus dem Verlauf der hydrodynamischen Spannungserscheinungen*“. Sitzungbericht Akademie Wissenschaft Wien, Mathematik Naturwissenschaft 132,105–126.

Terzaghi, K., 1925. *Erdbaumechanik*, Franz Deuticke, Vienna.

Tóth J., 1962. Acta Chimica (Academiae Scientiarum) Hungaricae. Volume 32, p.31.

Tóth J., 1997. “*Some Consequences of the Application of Incorrect Gas/Solid Adsorption Isotherm Equations*”. Journal of Colloid and Interface Science 185 (1) (January 1): 228–235. doi:10.1006/jcis.1996.4562.

V

Van Bergen, F., Pagnier, H. and Krzystolik, P., 2006. “*Field experiment of enhanced coalbed methane- CO_2 in the upper Silesian basin of Poland*”. Environmental Geosciences 13 (3), 201–224.

van Bergen, F., Spiers, C., Floor, G., Bots, P., 2009. “*Strain development in unconfined coals exposed to CO_2 , CH_4 and Ar: Effect of moisture*”. Int. J. Coal Geology 77, 43-53.

van Der Lee J., De Windt L., Lagneau V. et Goblet P., 2003. “*Module oriented modeling of reactive transport with HYTEC*”, Computers & Geosciences, **29**, 265-275.

van der Lee, J. et L. De Windt, 2002. “*CHESS Tutorial and Cookbook, Updated for Version 3.0*”. Rapport Technique LHM/RD/02/13, Ecole des Mines de Paris, Fontainebleau (France).

van der Lee, J., 1998. “*Thermodynamic and mathematical concepts of CHESS*”. Technical Report Nr. LHM/RD/98/39, CIG, Ecole des Mines de Paris, Paris, France, 99 p.

van der Lee, J., 2005. “*HYTEC Keyword Glossary for version 3.5*”. Rapport technique, Ecole des Mines de Paris, Fontainebleau (France).

van der Lee, J., 2007. “*Reactive transport modelling with HYTEC. Users guide and tutorials*”. Rapport technique, Ecole des Mines de Paris, Fontainebleau (France).

van der Lee, J., De Windt L., Lagneau V., and Goblet P., 2003. “*Module-oriented modeling of reactive transport with HYTEC*”. Comp. Geosc. 29, 265–275.

van der Lee, J., et Lagneau, V., 2004. “*Rigorous methods for reactive transport in unsaturated porous medium coupled with chemistry and variable porosity*”. In C. Miller, M. Farthing, W. Gray, et G. Pinder (Eds.), Computational Methods in Water Resources (CMWR XV), Volume 1, p. 861–868.

Van Genuchten MT, 1980. “*A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils*”. Soil Science Society of America Journal 44(5):892-898.

Van Golf-Racht, T.D., 1982. “*Fundamentals of fractured reservoir engineering*”. Developments in Petroleum Science, no. 12. Elsevier Scientific Publishing Company, Netherlands.

Van, Bergen, F., Pagnier, H., and Krzystolik, P., 2006. “*Field Experiment of CO₂ ECBM in the Upper Silesian Basin of Poland*”. Proceedings of the 8th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies. IEA Greenhouse Gas Program, Cheltenham, UK.

Volmer M., 1925. “*Zeitschrift für Physikalische Chemie*”. Volume 115, p. 253.

W

Wang, G.X., Massarotto, P., Rudolph, V., 2009. “*An improved permeability model of coal for coalbed methane recovery and CO₂ geosequestration*”. Int. J. Coal Geology 77 (1–2), 127–136.

Wang, G.X., Wei, X.R., Wang, K., Massarotto, P., Rudolph, V., 2010a. “*Sorption-induced swelling/shrinkage and permeability of coal under stressed adsorption/desorption conditions*”. Int. J. Coal Geology 83, 46–54.

Wang, S., Elsworth, D., Liu, J., 2010b. “*Evolution of permeability in coal to sorbing gases. A Preliminary Study*”. 44th U.S. Rock Mechanics Symposium. July 2010, Salt Lake City, Utah, 209.

Wei, Z., Zhang, D., 2010. “*Coupled fluid-flow and geomechanics for triple-porosity/dual permeability modeling of coalbed methane recovery*”. International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences 47 (8), 1242–1253.

White, CM, Smith, DH, Jones, KL, Goodman, AL, Jikich, SA, LaCount, RB and al., 2005. “*Sequestration of Carbon Dioxide in Coal with Enhanced Coalbed Methane Recovery—a Review*”. Energy Fuels 19 (3): 659–724.

Wolery, T., 1992. “*EQ3/6. A software package for geochemical modelling of aqueous systems: package overview and installation guide (version 7.0)*”. Rapport Technique UCRLMA-110662 PT I ed., Lawrence Livermore National Laboratory, USA.

Wu Y., J. Liu, D. Elsworth, X. Miao, and X. Mao, 2010b. “*Development of Anisotropic Permeability During Coalbed Methane Production*”. Journal of Natural Gas Science and Engineering 2 (4): 197–210. doi:10.1016/j.jngse.2010.06.002.

Wu Y., J. Liu, D. Elsworth, Z. Chen, L. Connell, and Z. Pan, 2010. “*Dual Poroelastic Response of a Coal Seam to CO₂ Injection*”. International Journal of Greenhouse Gas Control 4 (4): 668–678. doi:10.1016/j.ijggc.2010.02.004.

Wu, Y., Liu, J., Elsworth, D., Siriwardane, H., and Miao, X., 2011. “*Evolution of Coal Permeability: Contribution of Heterogeneous Swelling Processes*”. Int. J. Coal Geology 88 (2–3) (November 1): 152–162. doi:10.1016/j.coal.2011.09.002.

Y

Young, D.M., and Crowell, A.D., 1962. “*Physical Adsorption of Gases*”. Butterworth, London.

Yun, Y, and Suuberg, EM, 1992. “*Physical Transition in Pittsburgh No. 8 Coal as Observed by Differential Scanning Calorimetry and Solvent Swelling*”. Energy Fuels 6: 328–30.

Z

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

Zhao, Y., Hu, Y., Wei, J. and Yang, D., 2003. “*The Experimental Approach to Effective Stress Law of Coal Mass by Effect of Methane*”. Transport Porous Media 53: 235–44.

Zhao, Y., Hu, Y., Zhao, B., Yang, D., 2004. “*Nonlinear coupled mathematical model for solid deformation and gas seepage in fractured media*”. Transport in Porous Media 55 (2), 119–136.

Zhou, C., Hall, F., Gasem, K.A.M., Robinson Jr., R.L., 1994. “*Predicting gas adsorption using two-dimensional equations of state*”. I&EC Research 33, 1280–1289

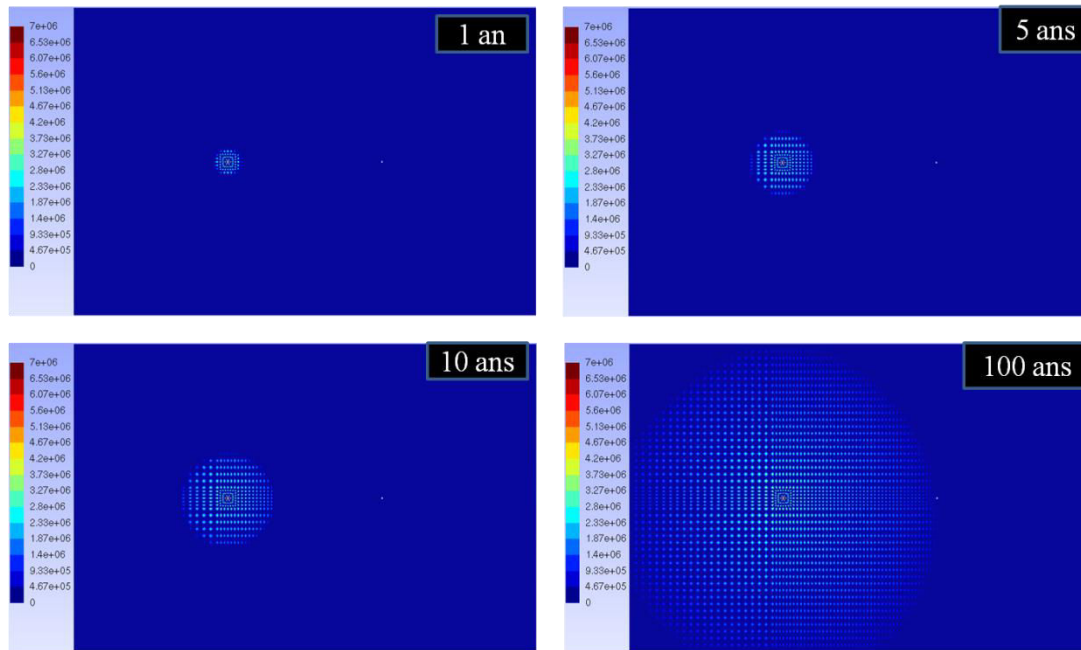
Zhu, W.C., Liu, J., Sheng, J.C., Elsworth, D., 2007. “*Analysis of coupled gas flow and deformation process with desorption and Klinkenberg effects in coal seams*”. International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences 44 (7), 971–980.

Annexes

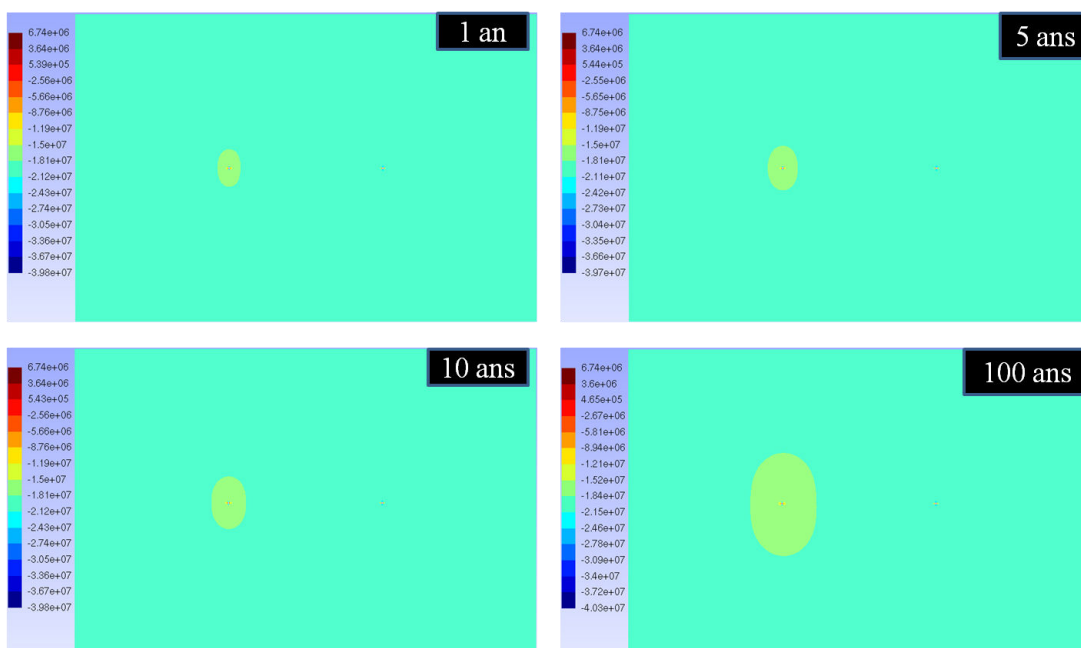
Deux puits mais injection dans un seul

On donne ici des isovaleurs de la pression de gaz, des contraintes, des déplacements et de la différence de porosité dans le cas de deux puits d'injection, mais en injectant uniquement le CO_2 dans un puits. L'autre puits pouvant éventuellement servir à récupérer le CH_4 .

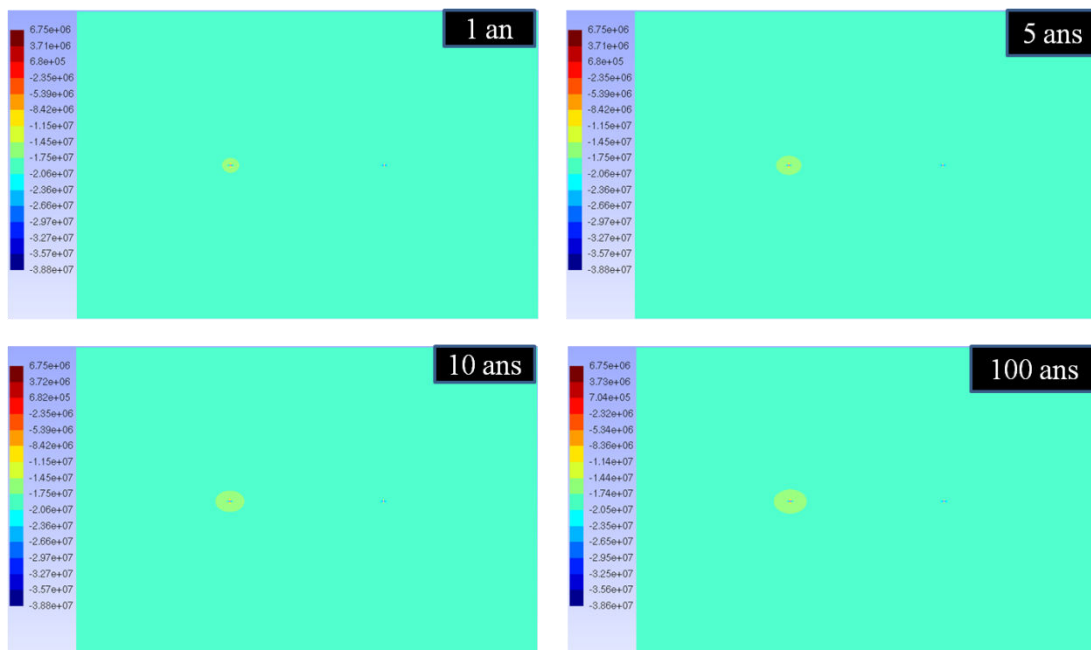
Cartes de la propagation de la pression de gaz (Pa) au sein du massif au cours du temps.



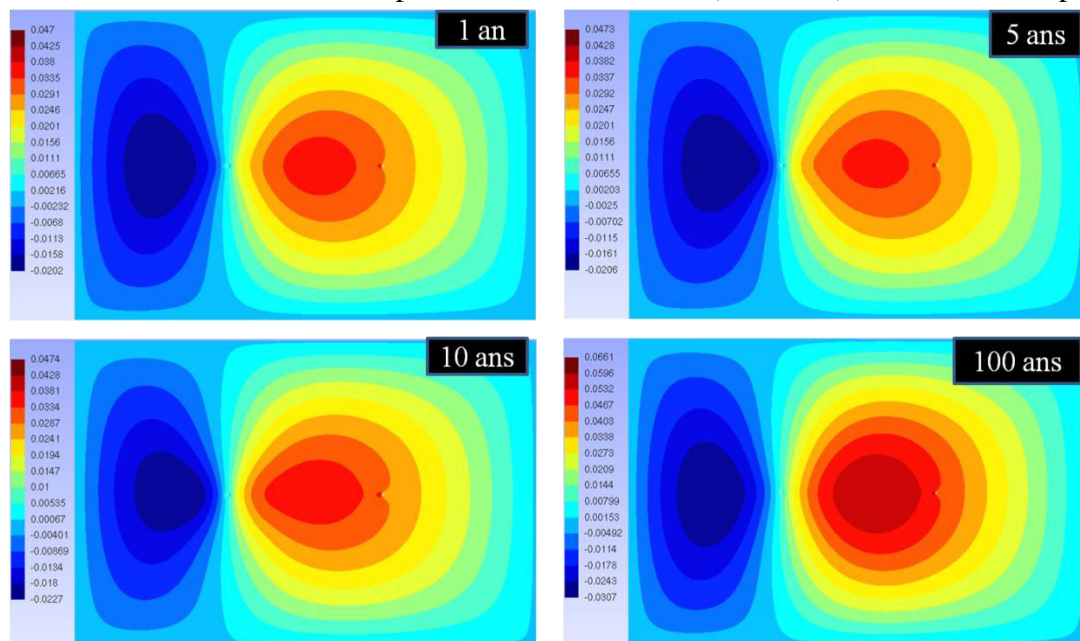
Cartes de la variation de la contrainte effective horizontale (SIXX en Pa) au cours du temps.



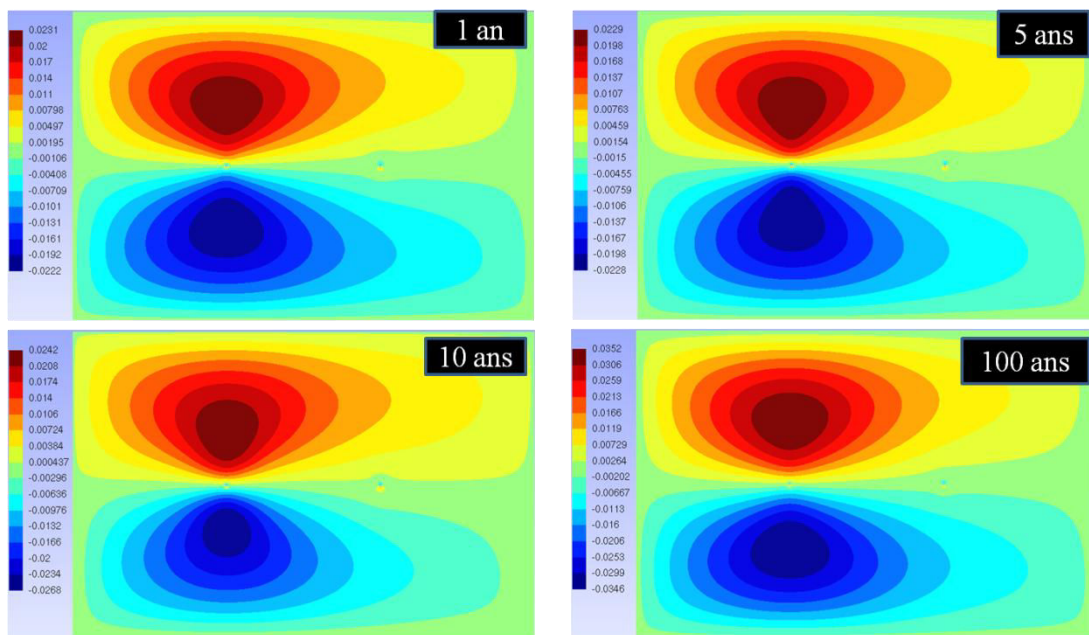
Cartes de la variation de la contrainte effective verticale (SIYY en Pa) au cours du temps.



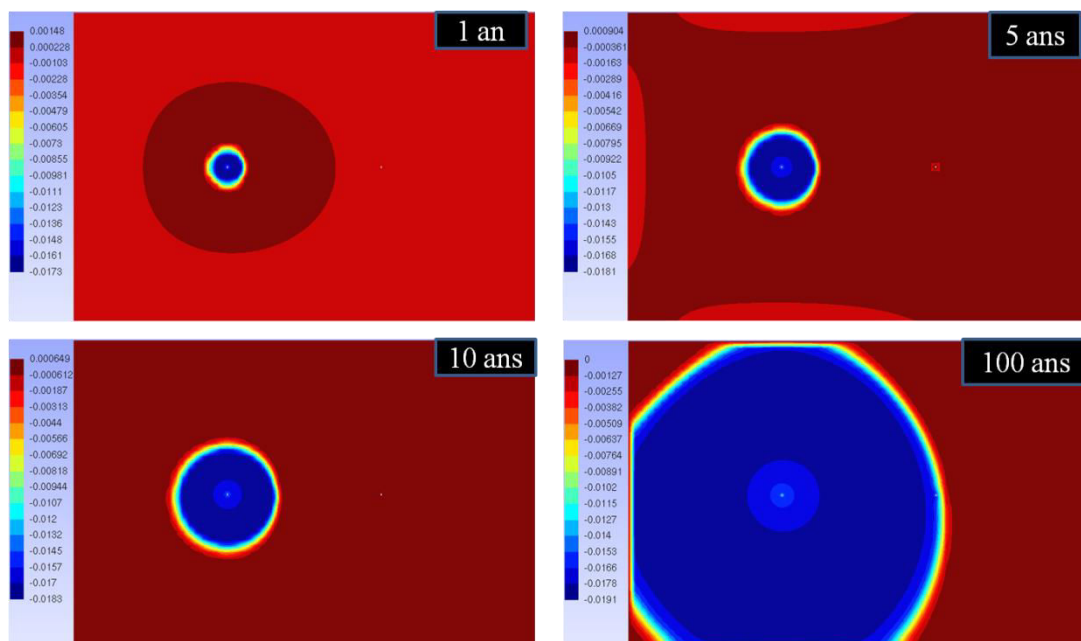
Cartes de la localisation des déplacements horizontaux (DX en m) au cours du temps.



Cartes de la localisation des déplacements verticaux (DY en m) au cours du temps.



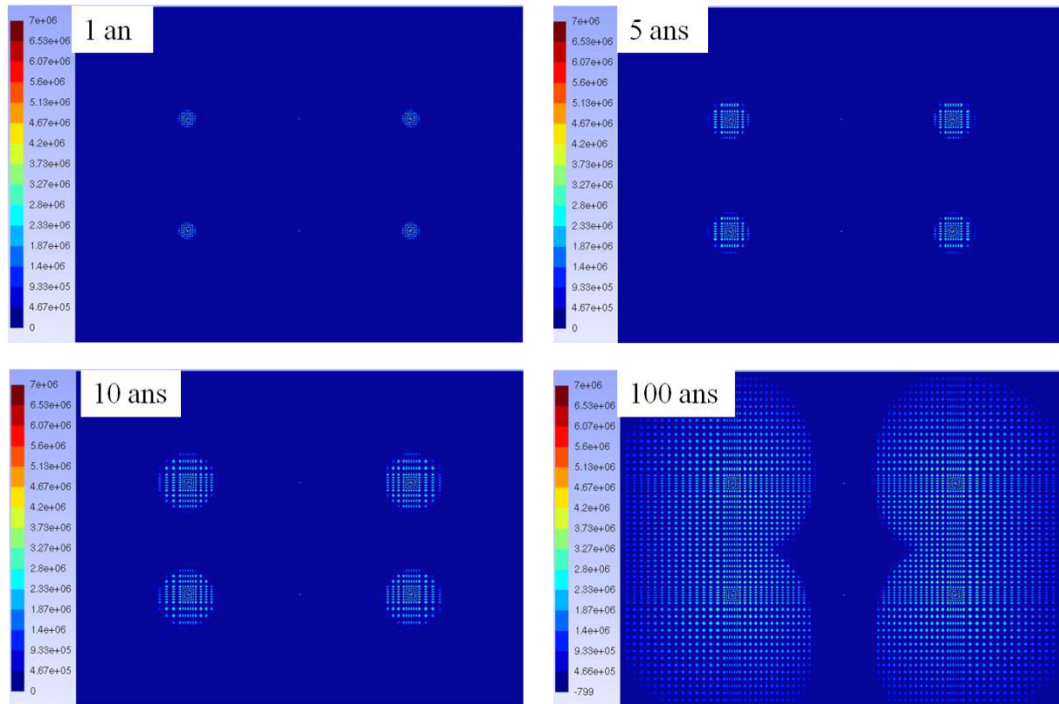
Cartes de la variation de porosité ($\phi - \phi_0$) au cours du temps.



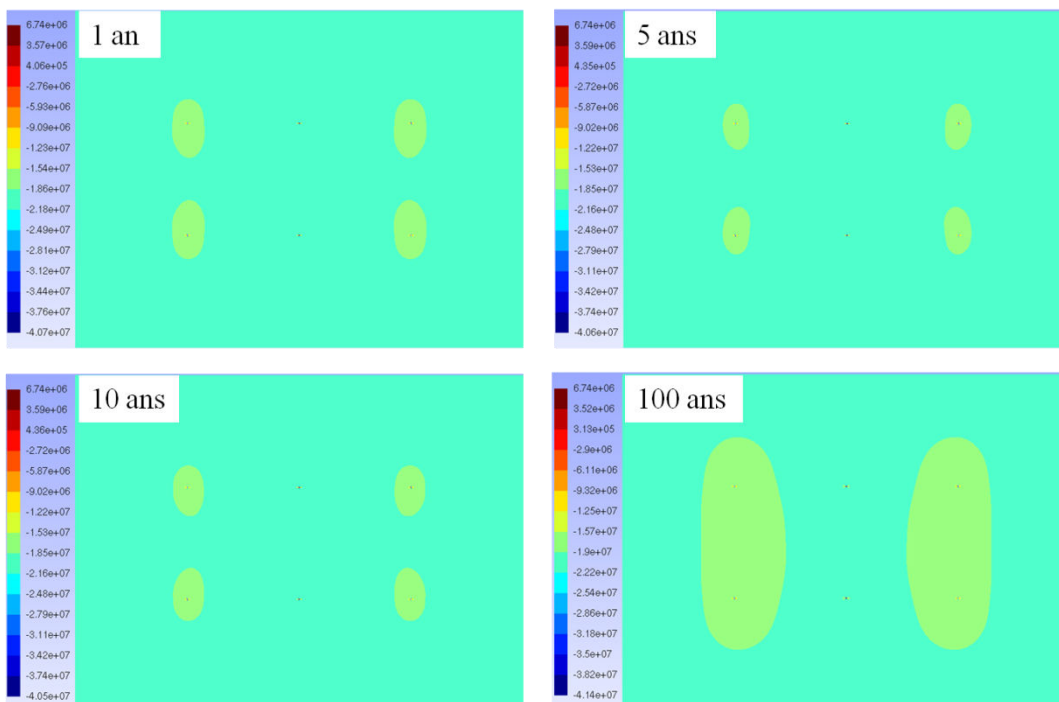
Quatre puits d'injection

On a considéré ici un massif de 400 m sur 300 m avec 4 puits d'injection. On donne ici des isovaleurs de la pression de gaz, des contraintes, des déplacements et de la différence de porosité dans le cas d'une injection dans les 4 puits. La pression d'injection est de 7 MPa.

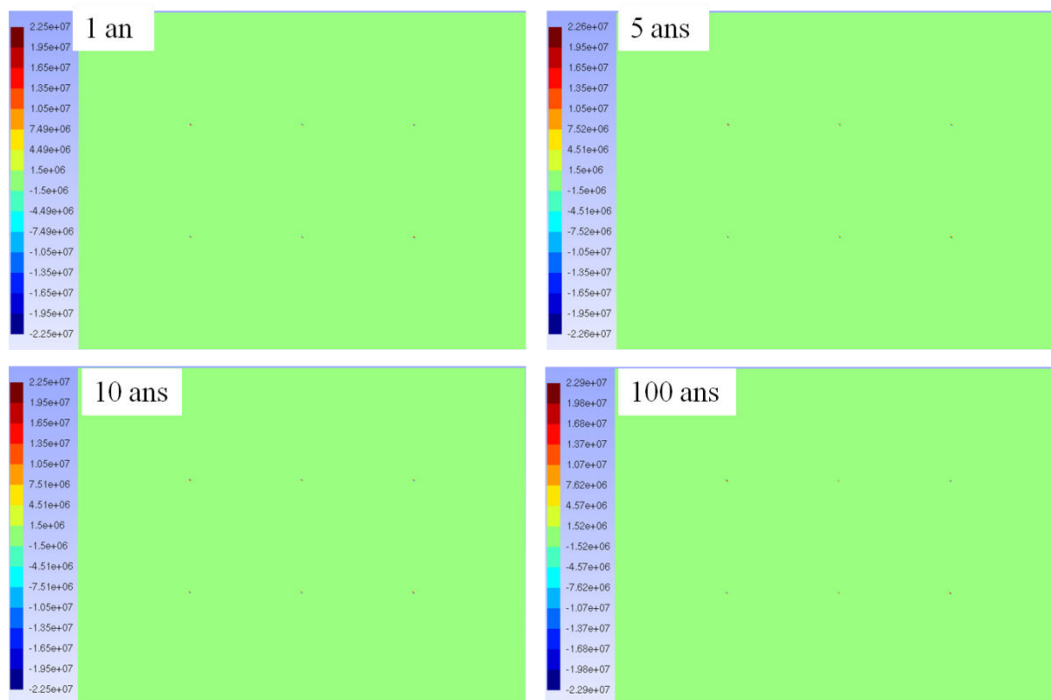
Cartes de la propagation de la pression de gaz (Pa) au sein du massif au cours du temps.



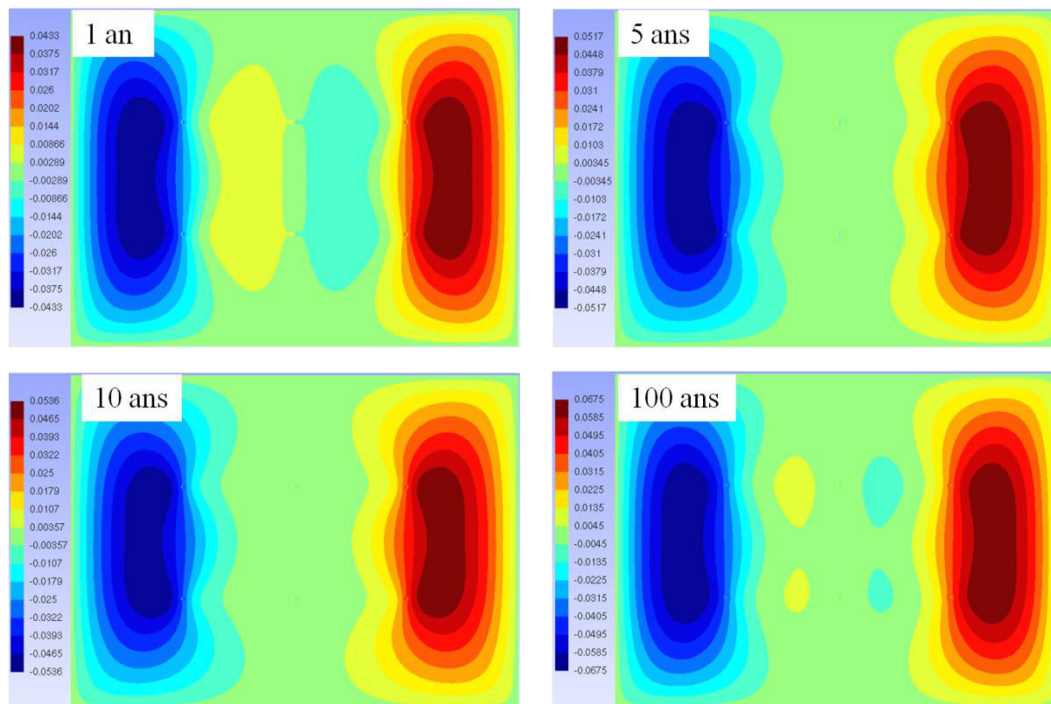
Cartes de la variation de la contrainte effective horizontale (SIXX en Pa) au cours du temps.



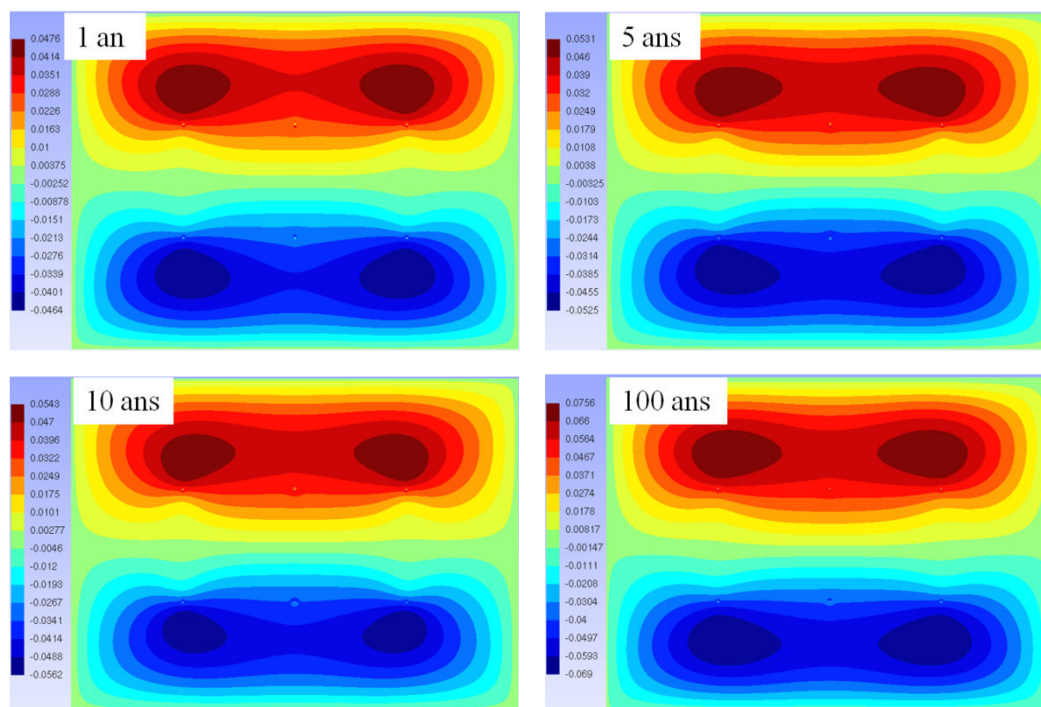
Cartes de la variation de la contrainte effective verticale (SIYY en Pa) au cours du temps.



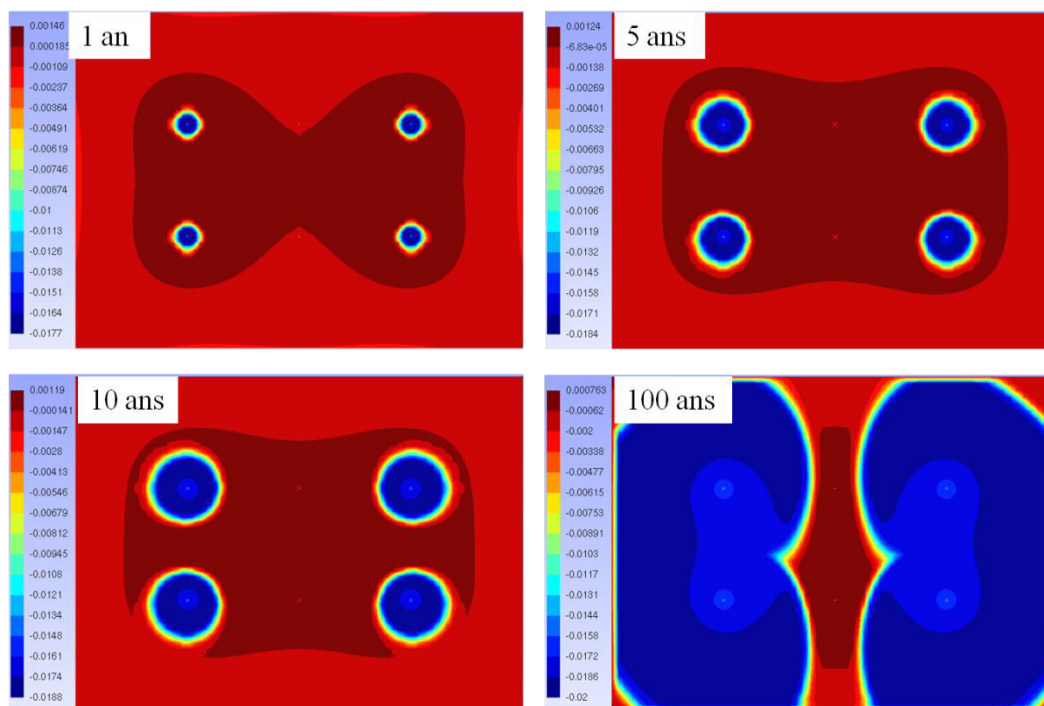
Cartes de la localisation des déplacements horizontaux (DX en m) au cours du temps.



Cartes de la localisation des déplacements verticaux (DY en m) au cours du temps.



Cartes de la variation de la porosité ($\phi - \phi_0$) au cours du temps.



Résumé

Le stockage géologique du CO_2 dans des réservoirs aquifères de type calcaire et grès, du charbon non exploité est une des solutions envisagées pour réduire les émissions de gaz à effet de serre dans l'atmosphère. Cependant, l'injection de CO_2 peut perturber les propriétés pétrophysiques (porosité et perméabilité), minéralogiques (transformations) et mécaniques (déformations, résistance à la rupture) des roches réservoir (calcaire, grès, charbon). Dans le cas du charbon, l'injection de CO_2 peut également se traduire par des phénomènes de gonflement de la matrice liés au processus d'adsorption. L'objectif de ce travail de thèse est de traduire en termes de modèles phénoménologiques les comportements et les couplages chimio-poromécaniques des roches réservoir de type charbon.

Dans ce travail, nous nous sommes focalisés en particulier sur l'étude de l'injection de CO_2 dans le charbon. Pour cela, deux modèles homogénéisés de porosité du charbon ont été développés avec la prise en compte du phénomène d'adsorption, connu pour être le principal mécanisme de production ou de séquestration de CO_2 dans de nombreux réservoir de charbon. Le premier modèle permet d'étudier le comportement poro-élastique du charbon pour une injection simple de CO_2 et le second permet d'étudier le comportement poro-élastique du charbon pour une injection de CO_2 avec une récupération assistée de méthane CH_4 . Le processus d'adsorption est classiquement modélisé à l'aide de l'isotherme d'adsorption de Langmuir (pour un gaz dans le premier modèle et pour deux gaz dans le second modèle).

L'implantation de ces modèles dans le Code_Aster (code d'analyse de calcul de structures entièrement couplé THM, développé par Electricité De France - EDF) nous a permis de faire des simulations numériques de stockage de CO_2 dans le charbon. Pour une injection simple du CO_2 dans le charbon (premier modèle), la matrice du charbon s'est comportée de deux façons différentes : elle gonfle (ce qui induit une diminution de la porosité du charbon) avec la prise en compte du phénomène d'adsorption et se contracte (ce qui induit une augmentation de la porosité du charbon) dans le cas contraire. Etant en bon accord avec les résultats de la littérature spécialisée, cela montre la capacité du modèle à prédire le comportement poro-élastique du charbon durant l'injection de CO_2 . Toujours avec le premier modèle, nous avons en particulier étudié l'influence des propriétés hydro-mécaniques du charbon (coefficient de Biot, module de Young/module d'incompressibilité), les paramètres d'adsorption de Langmuir et la pression initiale du liquide interstitiel dans le charbon, sur la réponse du charbon à l'injection du CO_2 . Dans le cas d'une récupération assistée du méthane CH_4 (le second modèle), un couplage du Code_Aster et un code de transport réactif HYTEC (HYdrological Transport coupled with Equilibrium Chemistry, développé par MINES Paris Tech) était nécessaire pour gérer surtout le calcul des pressions partielles des deux gaz (CO_2 et CH_4) à chaque pas de temps. Un travail de développement numérique sur les deux codes de calcul était alors nécessaire. Ce travail de thèse a proposé une méthode de couplage entre les deux codes (Code_Aster et HYTEC) dont les techniques sont largement décrites dans le manuscrit.

Mots-clés : Charbon, Injection de CO_2 , Modélisation numérique, Isotherme de Langmuir, Code_Aster, HYTEC, Perméabilité intrinsèque, Porosité, Propriétés Hydro-Mécaniques, Récupération de méthane.

Abstract

The geological storage of CO_2 in aquifers reservoirs such as limestone and sandstone, coal is a possible way to reduce greenhouse gas emission into the atmosphere. However, the injection of CO_2 may modify petrophysical (porosity and permeability), mineralogical (transformations) and mechanical (deformations, strength) properties of reservoir rocks (limestone, sandstone, coal). In the case of coal, the injection of CO_2 can also induce matrix swelling due to adsorption processes. The focus of this thesis is to translate in terms of phenomenological models, the behaviors and chemo-poromechanical coupling of reservoir rocks of coal type.

In this work, we focused particularly on the study of CO_2 injection into coal. For this, two models of homogenized coal porosity have been developed by taking into account the adsorption phenomenon, known to be the main mechanism of production or sequestration of CO_2 in many coal reservoirs. The first model allows the study of the poroelastic behavior of coal in the case of a single injection of CO_2 , and the second model allows the study of the poroelastic behavior of coal in the case of an injection of CO_2 with methane CH_4 recovery. The adsorption process is classically modelled using Langmuir's isotherm (for one gas in the first model and for two gases in the second model).

The implementation of these models in Code_Aster (a fully coupled Thermo-Hydro-Mechanical analysis code for structures calculations, developed by Electricity of France - EDF) allowed us to make numerical simulations of CO_2 storage in coal. For a single injection of CO_2 into coal (first model), the coal matrix behaved in two different ways: it swells (resulting in the decrease of coal porosity) when the adsorption phenomenon is taken into account and shrinks (resulting in the increase of coal porosity) otherwise. Being in good agreement with the results in specialized literature in this field, it shows the ability of the model to predict the poroelastic behaviour of coal to CO_2 injection. Also with the first model, we studied particularly through numerical simulations the influence of coal's hydro-mechanical properties (Biot's coefficient, bulk modulus), Langmuir's adsorption parameters and the initial liquid pressure in rock mass during CO_2 injection in coal. In the case of methane recovery (second model), a coupling of Code_Aster and a reactive transport code, HYTEC (Hydrological Transport coupled with Equilibrium Chemistry, developed by Mines Paris Tech) was needed to handle the above calculation of partial pressures of the two gases (CO_2 and CH_4) at each time step. Digital development work on the two computers codes (Code_Aster and HYTEC) was then necessary. This thesis proposed a method of coupling between the two codes whose techniques are widely described in the manuscript.

Key words: Coal, CO_2 injection, Numerical modelling, Langmuir's isotherm, Code_Aster, HYTEC, Intrinsic permeability, Porosity, Hydro-mechanical properties, Methane recovery.