

Caractérisation Pétro physique des Roches de Couverture dans le contexte du Stockage Géologique du CO₂

H.JEDLI^{#1}, H. HEDFI^{#2}, A. JBARA^{#3}, S. BOUZGARROU^{#4}, K.SLIMI^{#5}

^{#1}National Engineering School of Monastir University,,
IbnEljazzar Street, 5019, Monastir, Tunisia
jedli.hedi@yahoo.com

^{#2}National Engineering School of Monastir University,,
IbnEljazzar Street, 5019, Monastir, Tunisia

^{#3} Higher Institute for Sciences and Energy Technology, Gafsa
University, Tozeur Street, 2119, Gafsa, Tunisia.

^{#4} National Engineering School of Tunis,
Tunis El Manar University, Tunis, Tunisia.

^{#4} National Engineering School of Tunis,
Tunis El Manar University, Tunis, Tunisia.

^{#5} Higher Institute for Transport and Logistics, Sousse University,
Riadh City, 4023, Sousse, Tunisia

Abstract— L'objectif de ce travail est l'étude des roches de couverture d'aquifères profonds en vue du stockage de CO₂. Ces formations géologiques sont des réservoirs confinés naturels qui contiennent une forte salinité, et qui représentent un volume de stockage très important. Les propriétés pétro physiques de plusieurs roches de couverture issues d'un site de stockage ont été étudiées avant l'injection du CO₂. Cette étape est obligatoire en vue d'une bonne compréhension des interactions roches-saumure-CO₂. La composition minéralogique des matériaux a été déterminée par Diffraction des Rayons X (DRX), Microscopie à Balayage Electronique (MEB) couplé à une sonde EDS, Spectroscopie Infrarouge, Analyse Thermique et Photoluminescence. Les résultats expérimentaux obtenus montrent que l'illite, la calcite et le quartz sont les minéraux argileux dominants. Ainsi ces échantillons présentent une faible cristallinité et une teneur élevée en Fe, Cl, Ca et O. Ces roches de couverture peuvent également être utiles dans le processus de stockage en immobilisant la migration de CO₂ à l'extérieur du site géologique.

Keywords— argile- Diffraction des Rayons X- Microscopie à Balayage Electronique - Analyse thermique - spectroscopie infrarouge- Photoluminescence

I. INTRODUCTION

L'augmentation de la concentration atmosphérique des gaz à effet de serre émis par l'activité humaine, notamment le CO₂, provoque un réchauffement climatique [1]. Face à cette situation, plusieurs solutions ont été envisagées pour parvenir à une réduction sensible des émissions de CO₂. Un des moyens envisagés pour éviter ce problème est le développement de la filière capture/stockage du CO₂ [2]. Cette filière permet de captée le CO₂ à la source, puis son stockage dans des couches géologiques profondes comme les réservoirs

de gaz et des champs pétrolifères épuisés ou des aquifères salins profonds [3]. Ces formations géologiques sont des réservoirs confinés naturels qui contiennent une saumure inexploitable et qui représentent un volume de stockage très important. La sécurité du site à long terme est une priorité et elle nécessite, entre autres, une meilleure connaissance des roches de couverture, amenées à confiner le CO₂ au sein de l'aquifère [4]. La caractérisation du propriétés pétro physiques, avant l'injection du CO₂, des roches de couvertures est donc nécessaire.

Ce travail porte sur l'étude des roches avant réaction avec du CO₂. Cette étape est obligatoire en vue d'une bonne compréhension des interactions roches-saumure-CO₂. Ainsi, la composition minéralogique ont été étudié par divers méthodes d'analyses tel quel que la diffraction des rayons X, la microscopie à balayage électronique, l'analyse thermique, la spectroscopie infrarouge et la photoluminescence

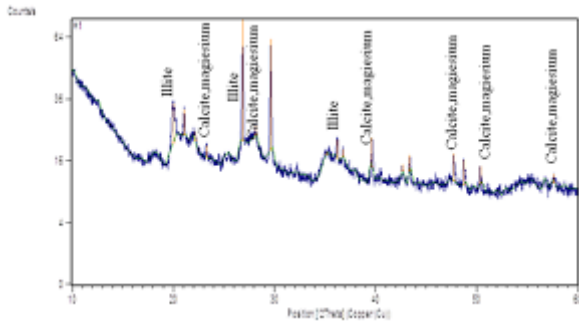
II. MATÉRIELS ET MÉTHODES

Les échantillons utilisés sont de type d'argile, proviennent d'un site de stockage située à Gabès dans le sud de la Tunisie. La diffraction des rayons X et les spectres infrarouges nous permettent de décrire les compositions minéralogiques des échantillons. La structure des échantillons est étudiée en utilisant un microscope à balayage électronique. Bien que la mesure de la variation de masse est délimitée par une analyse thermique. Cependant, la mesure de la fluorescence des échantillons est faite par photoluminescence.

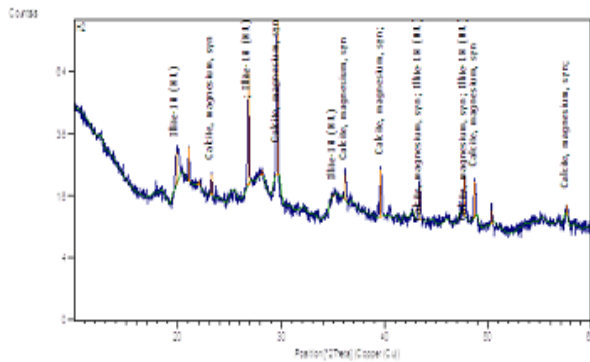
III. RÉSULTATS

A. Analyse par diffraction des rayons X

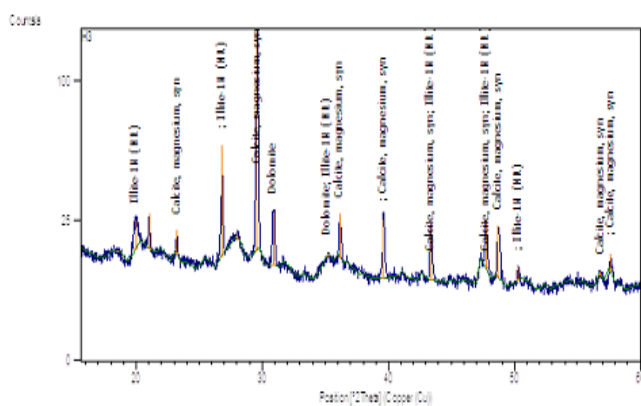
Les spectres de diffraction des rayons X (figure 1) des échantillons d'argile montre une compositions minérales similaires, se composant principalement de l'illite, calcite et de quartz. Les phases minéralogiques suivants ont été identifiés: la calcite (3,85 Å, 3,03 Å, 3,55 Å), l'illite (9,79 Å et 9,79 Å) et de quartz (4,26 Å et 3,35 Å). D'autres phases minérales secondaires sont également présentes dans cette argile comme la dolomite (2,88 Å). Les compositions minéralogiques des matières premières obtenues avec l'analyse XRD résumées dans le tableau 1.



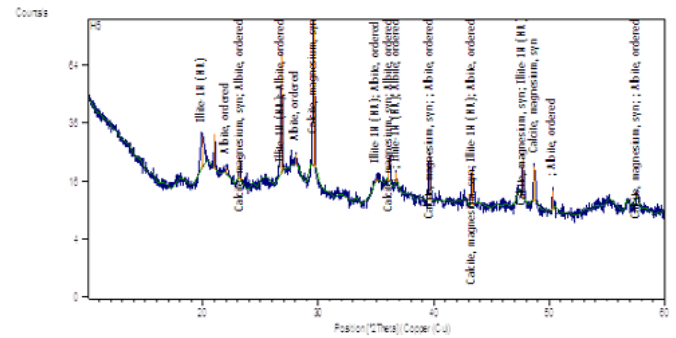
(a)



(b)



(c)



(d)

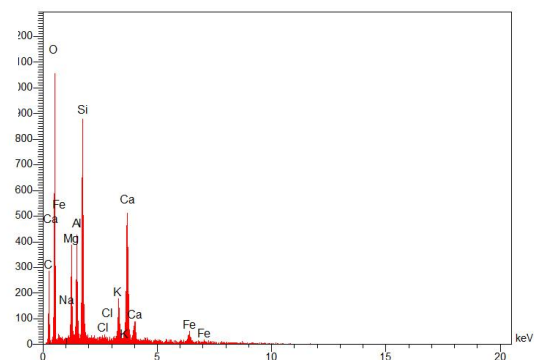
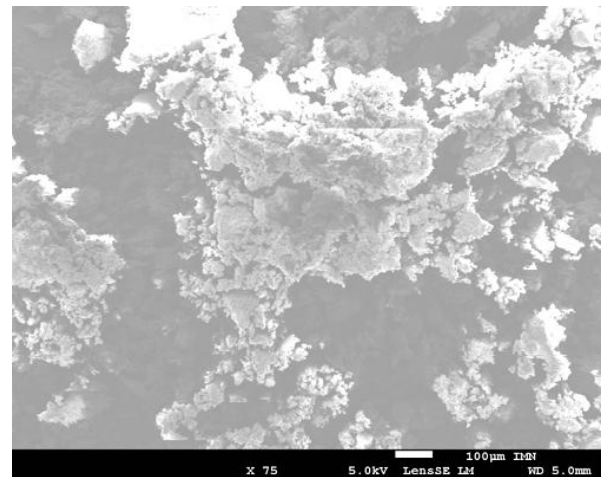
Fig. 1 Analyses DRX des échantillons

Echantillons	Quartz	Calcite	Illite	Dolomite	Albite
S1	31	23	46	-	-
S2	15	51	34	-	-
S3	8	47	32	12	-
S4	30	43	24	-	3

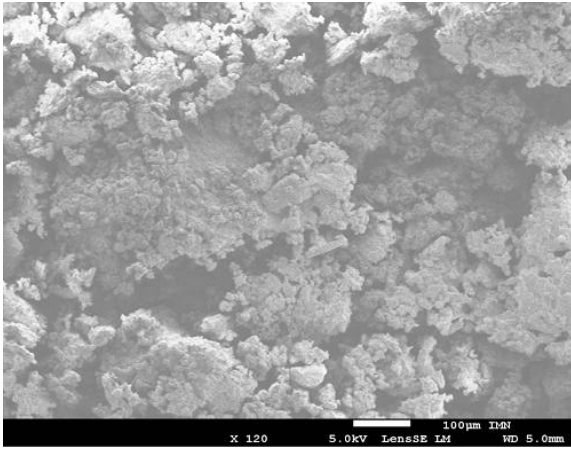
TABLE I. analyses DRX (masse.%) des différents échantillons de type argile

B. Microscopie à Balayage Electronique

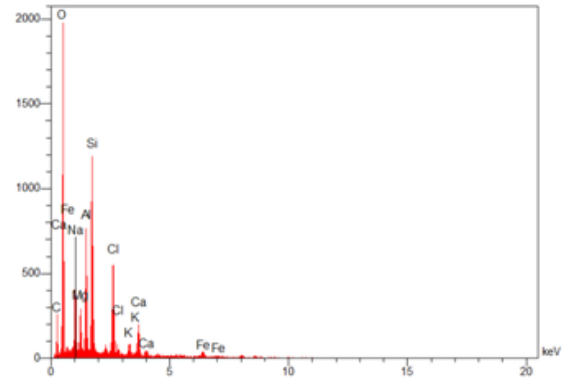
Les topographies de surface de différents composés étudiés sont analysées par microscopie électronique à balayage (SEM) et spectroscopie à dispersion d'énergie aux rayons X (EDS) (Figure 2). L'imagerie SEM montre que l'argile se produit sous forme de cristaux de tailles variables de contours et bords indéfinis. Ensuite, la morphologie des particules est représenté à laminer. EDS analyse nous permet d'identifier que les échantillons de type argile sont dominées par Si, Cl, Na, et O



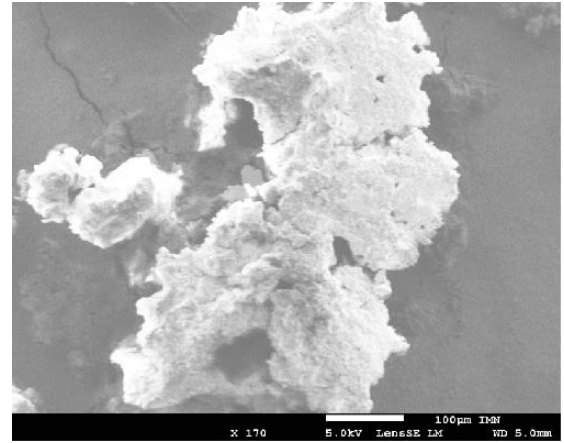
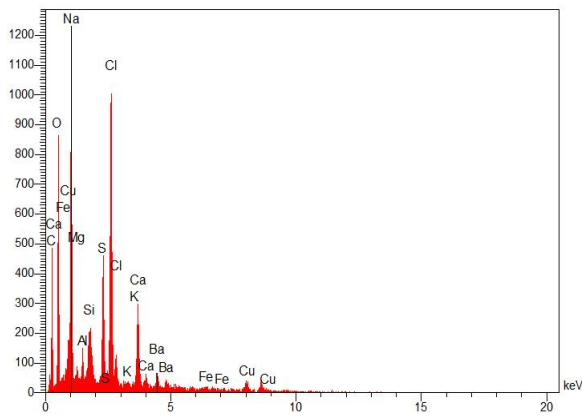
(A)



(c)



(b)



(d)

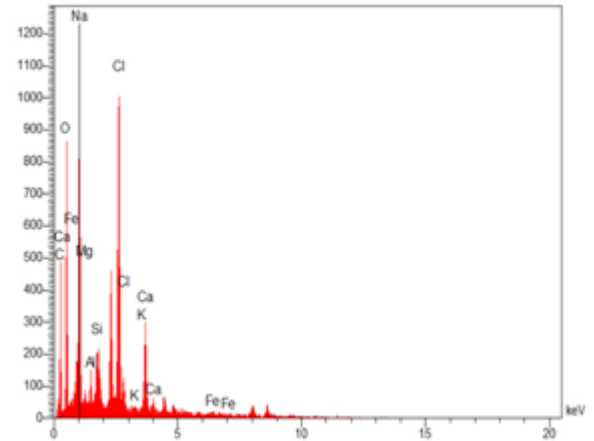


Fig. 2 : Analyses MEB couples par EDX des échantillons

C. Analyses par spectroscopie infrarouge

Les profils d'absorption des quatre échantillons d'argile choisis, S1-S4, sont à peu près similaires, comme représenté sur la figure 4, qui montre la présence de bandes OH-étirage au voisinage de 3400 cm⁻¹[5]. Le Si-O étirement des bandes de près de 1000 cm⁻¹ indiquent la présence de l'illite. La bande caractéristique à 1428 cm⁻¹ suggérant la présence de carbonate (calcite ou de dolomite) [6]. L'apparition d'intensité à 794 et 779 cm⁻¹ dans tous les spectres est considéré comme une indication de quartz. Les bandes à 669 cm⁻¹ et 647 cm⁻¹ ont confirmé la présence de plagioclase (albite ou anorthite). Toutefois, la bande à 1625 cm⁻¹ est attribué à hydrogène lié eau et correspond à la position de l'eau mode de l'eau liquide flexion [7]. En effet, la vibration d'élongation des liaisons OH à 3630 cm⁻¹ indique clairement la présence de kaolinite [8].

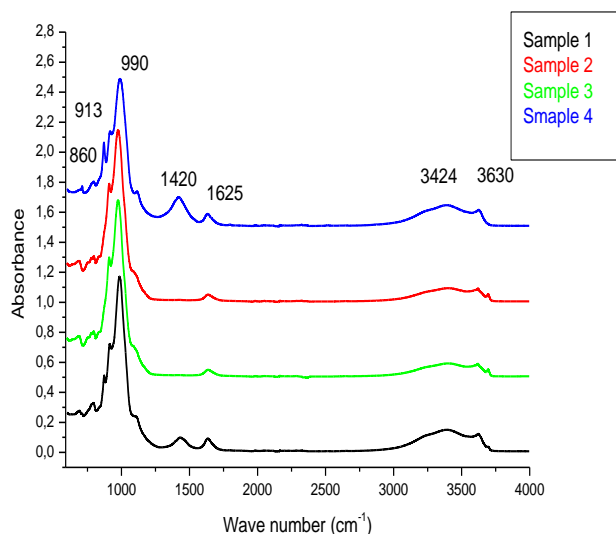
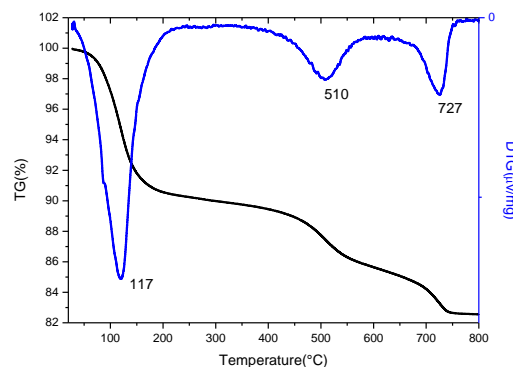
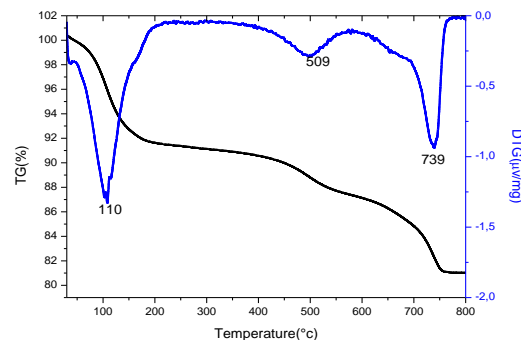


Fig. 3 Les spectres infrarouges de différents échantillons

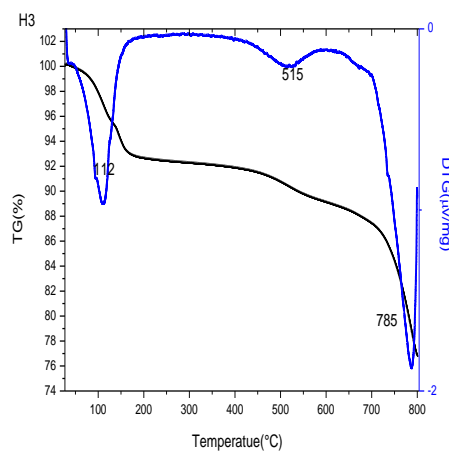
D. Analyses thermiques

Les résultats obtenus avec l'analyse thermique différentielle (DTA) et l'analyse gravimétrique thermique (TGA) pour les échantillons sont illustrés dans la Figure 3. Pour tous les échantillons sélectionnés, DTA courbes révèlent des similitudes dans la gamme basse température. En outre, on peut observer un système de pic endothermique à basse température (<200 ° C) correspondant à la perte d'eau d'hydratation [9]. Un fort pic endothermique apparaît à la gamme de température de 509 ° -515 ° C qui est liée à la sortie de l'eau de constitution résultant de la dés hydroxylation de minéraux argileux [10]. Un autre pic endothermique est observé aux environs de 730 ° C en raison de la décomposition des carbonates [11]. La perte de masse associée à ce pic est résumée dans le tableau 2

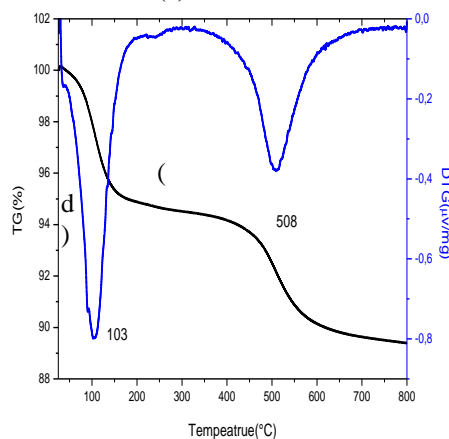


(a)

(b)



(c)



(d)

Fig. 4 Analyses thermique des échantillons

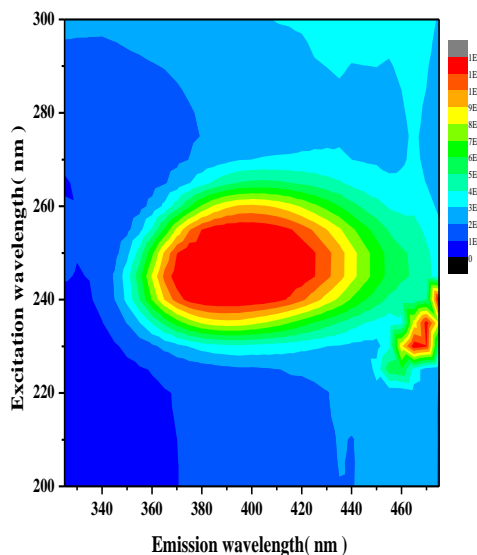
Echantillons	Temperature (°C)	Mass loss (%)
S1	119	9.68
	510	7.77
	727	0.71
S2	108	8.66
	500	4.08
	738	6.32
S3	110	7.69
	522	3.06
	782	12.41
S4	103	5.51
	510	510

TABLE 2. la perte de masse des différents échantillons de type argile

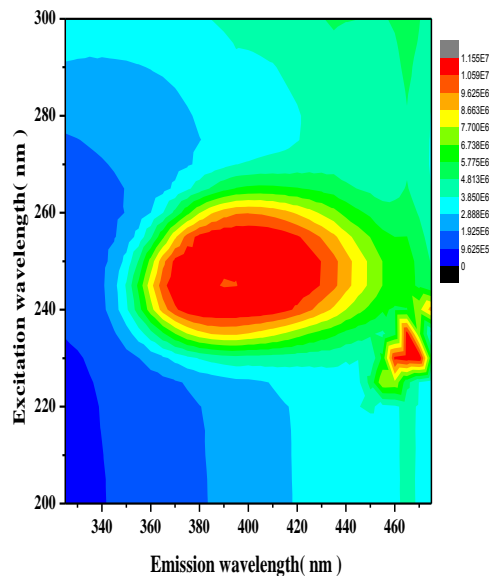
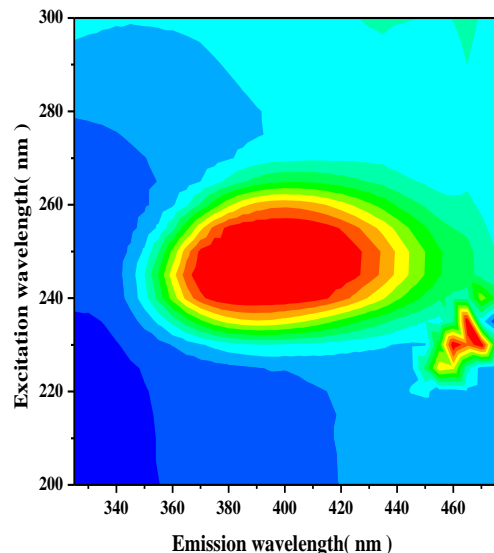
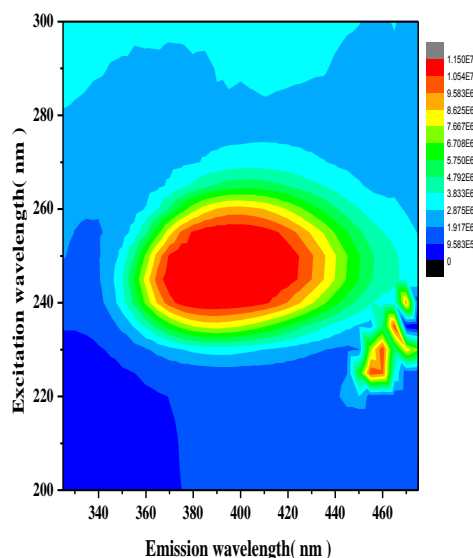
E. Les spectres de fluorescence

En ce qui concerne les expériences préliminaires effectuées avant le stockage de CO₂, la figure 6 fournit des cartographies photoluminescence PL (excitation-émission) en fausses couleurs effectuées sur les quatre échantillons choisis. Pour plus de clarté, les couleurs de cartographie allant du bleu au rouge représentent l'augmentation de l'intensité PL montrant l'état d'équilibre par rapport à l'émission-excitation. Les modèles d'émission ont été variés échantillons permettant leur classification. La réponse des quatre échantillons est située dans la région spectrale de 330 à 480 nm pour une gamme de longueurs d'onde d'excitation de 220 à 280 nm. Ces cartographies montrent également que l'intensité d'émission est maximale dans la région spectrale variant de 440 à 470 nm (couleur rouge) pour une longueur d'onde d'excitation entre 240 et 260 nm. La vue rapide de ces cartes qualitativement montre que le spectre est large PL dans le cas de S4 par rapport aux autres échantillons (S1, S2 et S3).

(a)



(c)



(d)

Fig 5 : Spectres de PL des différents échantillons

IV. CONCLUSIONS

L'objectif de ce travail est l'étude de roches de couverture d'aquifères profonds en vue du stockage de CO₂. Différentes Techniques de caractérisation ont été utilisées pour caractériser la couverture roche. Les résultats expérimentaux obtenus avec DRX ont démontré la présence de quartz, illite, la calcite, la dolomite. La présence de ces minéraux a également été confirmée par IR. L'analyse EDX justifie que ces argiles sont riches en Si, Cl, Na O et accompagné par un nombre important d'oxydes de fer. Les courbes DTA d'échantillons d'argile ont révélé que trois pics endothermiques étaient principalement dus à la perte de H₂O à partir de minéraux argileux et de la décomposition des carbonates, les résultats expérimentaux obtenus nous ont offert un moyen d'évaluer, comparer et sélectionner les réservoirs de stockage sur des critères tels que la facilité d'injection, la capacité de stockage, la migration, et la fuite de CO₂ à partir du réservoir

REFERENCES

- [1] S. Bachu. "Sequestration of CO₂ in Geological Media in Response to Climate Change: Road Map for Site Selection Using the Transform of the Geological Space into the CO₂ Phase Space". *Energy Conversion and Management*, (2000) 43, 87-102.
- [2] J Jean-Baptiste, P. and Ducroux, R. "Potentiel des méthodes de séparation et stockage du CO₂ dans la lutte contre l'effet de serre". *Compte Rendus Geoscience* (2003) 335, 611 - 625
- [3] S. Bachu, "CO₂ Storage in Geological Media: Role, Means, Status and Barriers to Deployment". *Progress in Energy and Combustion Science*, (2008) 34, 254-273.
- [4] K. Labus., W. Tarkowski. And M. Dowin, Modeling Gas-Rock-Water Interactions in Carbon Dioxide Storage.. *International Journal of Environmental Science and Technologie*, 5(2015)
- [5] R. E. Paul, D. and Daniel, N. (2013) FT-IR Spectroscopy Applied for Surface Clays Characterization. *Journal of Surface Engineered Matrielas and advanced technologie* (2013), 3, 275 -282
- [6] S .Selmani,N. Essaidi,F. Gouny,S. Bouaziz, E. Joussein, A. Driss, Sdiri and S. Rossignol, Physical- Chemical Characterization of Tunisian Clays for the Synthesis of Geopolymers Materials. *Journal of African Earth* (2015), 10, 113 -12
- [7] M. Torab, A. Angaji1, Zinali1, N. and Qazvini, N.T. Study of Physical, Chemical and Morphological Alterations of Smectite Clay upon Activation and Functionalization via the Acid Treatment. *World Journal of Nano Science and Engineering*, (2013) 3, 161-168
- [8] D. Sghaieir, F. Chaabani, D., Proust and P. Vielleiard. Mineralogical and Geochemical Signatures of Clays Associated with Rhyodacites in the Nefza Area (Northern Tunisia). *Journal of African Earth Sciences*, (2014) 100, 267-277
- [9] H, Baccoura, M, Medhjoub, F. Jamoussicc, and A. Daouda . Mineralogical Evaluation and Industrial Applications of the Triassic clay deposits, southern Tunisia. *Matrielas Characteriziion* , 2008, 59, 1613 -1622.
- [10] M, Eloussaiefefa, , N. Kallel, A. Yaacoubic and M. Benzinna. Mineralogical Identification, Spectroscopic Characterization, and Pottential Environmental Use of Natural Clay Materials on Chromate Removal from. (2011). *Chemical Engineering Journal*, 186, 1024 – 1031
- [11] M. Felh, A. Tlil,M. Gaied and M., Montacer. Mineralogical Study of Kaolintic Clays from Sidi El Bader in the Far North of Tunisia, (2008) . *Apllied Clay Science*, 39, 208 – 217.