

# Extraire du méthane et/ou stocker le CO<sub>2</sub> en couche de charbon

*La Rédaction<sup>1</sup>.*

L'injection de CO<sub>2</sub> en couches de charbon en est encore largement au stade de la R&D, alors que celle dans les gisements d'hydrocarbures épuisés, dans une moindre mesure les aquifères profonds, se pratique déjà de longue date. En termes de stratégie du stockage de CO<sub>2</sub>, ces trois types d'environnements n'en sont donc pas au même niveau de développement.

Le thème qui nous préoccupe ici est celui du stockage du CO<sub>2</sub> en couche de charbon. Même si l'on peut considérer seulement le stockage de CO<sub>2</sub>, jusqu'ici les expériences test conduites ont toujours jumelé le stockage de CO<sub>2</sub> et la récupération de méthane.

L'extraction de méthane en couches de charbon (*Coal Bed Methane*) s'est déjà pratiquée dans certaines régions du monde, notamment dans le bassin charbonnier

de San Juan (Nouveau Mexique et Colorado) où plus de 100 000 tonnes de CO<sub>2</sub> ont été injectées depuis 1996 par la société Burlington Resources, avec une augmentation significative de la production de méthane. Le *projet Coal-Seq*, financé par l'US Department of Energy et conduit par Advanced Resources International (ARI), a été lancé en octobre 2000. Il portait sur les unités d'Allison (16 puits de production de méthane, 4 puits d'injection de CO<sub>2</sub> et 1 puits d'observation) et de Tiffany (34 puits de production de méthane, 12 puits d'injection de N<sub>2</sub>) où opèrent respectivement les sociétés Burlington Resources et BP America. La production de méthane à Allison a commencé en 1989 tandis que celle de Tiffany a débuté en 1983. Le projet, divisé en trois phases, avait pour objectif de comprendre la faisabilité technique et économique de

---

5. Voir : Annunziatellis A. et al., *Development of an innovative marine monitoring system for CO<sub>2</sub> leaks : system design and testing*. *ScienceDirect, Energy Procedia* 1, 2009, 2333-2340.

1. Remerciements à Éric Gaucher et Aurélien Leynet (BRGM) pour leur aide dans l'établissement de ce texte.

l'injection de CO<sub>2</sub> et N<sub>2</sub> en couches de charbon, en s'appuyant sur des études de laboratoire et sur site, ainsi que des travaux de modélisation (géochimie, géomécanique...). Cinq ans de réinjection ont confirmé les avantages économiques de l'injection de CO<sub>2</sub> pour la récupération de méthane et montré que l'on pouvait produire du méthane avec un taux très bas de CO<sub>2</sub>.

Autre opération mise en place, le projet canadien « **CO<sub>2</sub> Enhanced Coal Bed Methane – ECBM – Recovery** », qui concernait des couches de charbon non exploitables du groupe de Mannville et qui s'est déroulé en 5 phases de 1997 à 2005 sous l'égide de l'Alberta Research Council. Après diverses études, les tests de terrain ont été conduits d'abord sur un puits existant de Gulf Canada sur le site de Fenn Big Valley (Alberta), puis dans un nouveau forage réalisé en 1999 sur le même site. En juin 2000, deux micro-tests ont été réalisés sur ce forage, l'un en injectant N<sub>2</sub> pur, l'autre un mélange 50/50 de N<sub>2</sub> et CO<sub>2</sub>, tandis que sur le forage d'origine des tests étaient menés avec du gaz de fumée (13% N<sub>2</sub>, 87% CO<sub>2</sub>). Entre 2002 et 2005, le mélange H<sub>2</sub>S-CO<sub>2</sub> fut ajouté au cortège des gaz testés. On notera qu'en 2000, un autre bassin charbonnier de l'Alberta (Edmonton Group) a été étudié et que cela a conduit à réaliser quatre forages destinés à compléter les informations géologiques sur ce bassin. Enfin, entre 2004 et 2009, une autre opération a été conduite sur les charbons d'Ardley, comportant un micro-pilote et deux forages pilotes. Cette dernière opération a montré que ces charbons étaient beaucoup moins favorables que ceux de Mannville.

Les résultats ont souligné qu'il fallait au moins deux volumes de CO<sub>2</sub> injecté par volume de méthane produit, ce qui conditionne l'économie d'un tel projet pour lequel le gaz de fumée (N<sub>2</sub> + CO<sub>2</sub>) peut s'avérer plus intéressant que le CO<sub>2</sub> seul, même si le stockage corrélatif de CO<sub>2</sub> est sensiblement moindre. Le CO<sub>2</sub> reste adsorbé dans le charbon tandis que N<sub>2</sub> ressort avec le méthane. Économiquement, il peut donc se justifier de rechercher le meilleur équilibre CO<sub>2</sub>-N<sub>2</sub> dans le gaz injecté.

En France, la société European Gas Limited (EGL) est en phase de test (2009-2010) de l'extraction de méthane en couche de charbon dans le forage de Folschviller 2, implanté dans le permis Lorraine Nord attribué à EGL en novembre 2004<sup>2</sup>. Ce projet serait, à l'heure actuelle, suspendu.

À l'échelle de l'Europe, il y a eu au moins deux projets : le test pilote de haute Silésie (Kaniów, Pologne<sup>3</sup>) dans le cadre du Projet RECOPOL et le projet d'injection dans le Sud-Limbourg qui relevait de partenaires néerlandais seulement.

## Projet RECOPOL<sup>4</sup>

Le projet<sup>5</sup>, qui a démarré en novembre 2001 pour 36 mois (dont 18 d'expérimentation), a associé divers organismes de différents pays : TNO-NITG et l'Université de Technologie de Delft (Pays-Bas), l'Institut Principal des Mines de Pologne (GIG), DBI-GUT et l'Université de Technologie d'Aix-la-Chapelle (Allemagne), l'IFP, Gaz de France, Gazonor et Air Liquide (France), le CSIRO (Australie), Advanced Resources International (États-Unis), ainsi que le programme de R&D sur les gaz à effet de serre de l'AIE. Participaient également Shell International, Jcoal (Japon), ainsi que la région fédérale de Wallonie par l'intermédiaire de la Faculté polytechnique de Mons. La coordination générale du projet a été assurée par TNO-NITG. Quant au financement du projet, 3,5 millions d'euros au total, il a été couvert à 50% par le programme européen Énergie, Environnement et Développement durable (5<sup>ème</sup> Programme cadre), et pour 50% par les divers partenaires du projet.

L'objectif du projet était d'évaluer simultanément la possibilité de produire du méthane et de stocker du CO<sub>2</sub>. À cette fin, on a injecté 760 tonnes de CO<sub>2</sub> dans le site de Kaniów, entre 2004 et 2005. Le CO<sub>2</sub>, fourni par Air Liquide, était acheminé sur le site par camion et stocké sous forme liquide à -20°C. Ensuite, après avoir été chauffé, il était injecté entre 1 050 et 1 090 m de profondeur, soit plusieurs centaines de mètres au-dessous des plus profonds travaux miniers.

Après le développement du pilote en 2003, les tests d'injection ont démarré à l'été 2004 avec pour objectif des couches de charbon de 1 à 3 m de puissance situées entre 900 et 1 100 m de profondeur. Diverses opérations ont été menées pour faciliter l'injection (fracturation, stimulation) et remédier à la diminution observée de la perméabilité des couches de charbon à travers le temps, probablement due au gonflement du charbon au contact avec le CO<sub>2</sub>. Au total, environ 760 t de CO<sub>2</sub> seront injectées entre août 2004 et la fin juin 2005, au départ au rythme de 1-3 t/j, niveau monté à 12-15 t/j en opération continue entre fin avril et début juin 2005.

La production de méthane a été assurée par un puits de production de méthane existant, situé à environ 150 m, nettoyé et réparé pour la circonstance et remis en production fin mai 2004. Les résultats ont confirmé le lien entre injection de CO<sub>2</sub> et production de méthane et montré que du CO<sub>2</sub> injecté se retrouvait associé au méthane produit. Au début, le gaz produit contenait 95% de méthane. Ce taux a ensuite décru, notamment durant les opérations d'avril 2005, après stimulation du puits d'injection. En tout état de cause, la production du méthane a été stimulée par l'injection de CO<sub>2</sub> et s'avère donc

2. Un autre permis, Lorraine Sud, a été attribué en juillet 2007.

3. Secteur considéré comme le plus adapté au projet selon l'IEA (2000).

4. RECOPOL = Reduction of CO<sub>2</sub> emission by means of CO<sub>2</sub> storage in coal seams in the Silesian Coal Basin of Poland.

5. Voir le site Internet : [www.nitg.tno.nl/recopol](http://www.nitg.tno.nl/recopol)

supérieure à la production par méthode classique sans injection de CO<sub>2</sub>.

En conclusion, les résultats obtenus en termes d'augmentation de la production de méthane semblent nécessiter de conduire des stimulations dans le puits d'injection. En outre, la compréhension des phénomènes (notamment le gonflement du charbon avec l'injection de CO<sub>2</sub>) et la conduite d'opérations sur longue durée nécessiteront encore de nombreux travaux. Le projet RECOPOL est donc considéré comme un jalon dans la recherche de solutions adéquates pour combiner injection/stockage de CO<sub>2</sub> et extraction de méthane.

### Projet Sud-Limbourg

Le projet du Sud-Limbourg s'est déroulé à la même époque et n'a associé que des partenaires néerlandais. Une première étude de NOVEM<sup>6</sup>, réalisée en 2001, concluait à l'intérêt du stockage de CO<sub>2</sub> en couches de charbon conjointement à la production de méthane et recommandait l'installation d'un pilote et des progrès dans les technologies de sondage. La région du Sud-Limbourg a ainsi été sélectionnée pour son potentiel charbonnier et comme pouvant bénéficier de sources de CO<sub>2</sub> bon marché à partir de l'usine d'ammoniaque de GSM-Geelen ou de l'usine de gazéification du charbon de Buggenum. Il a ainsi été décidé de découper l'étude en trois phases :

- A. Évaluation comparative de plusieurs sites pilotes.
- B. Modélisation du réservoir et conception du pilote.
- C. Réalisation d'un pilote. Cette phase dépendait pour une large part des résultats du programme RECOPOL (voir ci-dessus).

La phase A, financée par NOVEM, a été terminée en 2003. Le choix des sites s'appuyait sur 5 critères : 1) distance des installations de production de CO<sub>2</sub>, 2) distance par rapport aux constructions existantes dans le secteur, 3) conditions de subsurface (organisation des failles, profondeur et stratigraphie, contenu en charbon et zones de charbon du Westphalien A à C, 4) distance par rapport aux routes, 5) aspects réglementaires, 6) contenu en gaz, 7) perméabilité et 8) distance des anciens travaux miniers.

Cinq sites ont ainsi été sélectionnés, les deux premiers présentant des conditions de surface meilleures et les trois autres, de meilleures caractéristiques de subsurface, la puissance de la série à charbon étant supérieure dans les sites 3 et 4. Au final, les comparaisons menées entre les différents sites n'ont pas permis de privilégier l'un plutôt que l'autre. L'essentiel du rapport de phase A est

consacré aux études techniques, économiques et environnementales de tels systèmes d'injection-captage dans le contexte régional.

Les phases B et C du projet n'ont pas été réalisées, mais en 2008, GTI une filiale de GDF Suez a proposé de réaliser un pilote de stockage de CO<sub>2</sub> à l'aplomb de son usine de Chemelot à Geelen-Sittard dans le Limbourg. L'étude devait être conduite en partenariat avec VITO (institut flamand pour la recherche technologique) et DSM Agro qui exploite deux usines d'ammoniaque, comme fournisseur de CO<sub>2</sub>. Il a finalement été décidé de réaliser un petit pilote. Auparavant, VITO a procédé à une campagne sismique pour déterminer les meilleurs emplacements de sondage.

### Projet Charco

L'expérience acquise, que ce soit en Amérique du Nord ou à l'issue du projet RECOPOL, conduisait naturellement à se poser la question de la démarche à suivre pour continuer la recherche sur l'injection et le stockage de CO<sub>2</sub> en couche de charbon. Comme on l'a vu dans l'expérience canadienne, les qualités spécifiques du charbon sont essentielles dans l'évaluation des performances d'injection de CO<sub>2</sub>. Il était donc naturel que l'on s'oriente, dans un premier temps, dans une logique d'évaluation du potentiel de différents charbons à partir de mesures et de tests de laboratoire.

Le projet CHARCO (Expérimentation et modélisation de l'échange de gaz dans les CHARbons en vue d'un stockage du CO<sub>2</sub>) n'est pas un projet européen mais un projet de l'Agence Nationale de la Recherche (ANR), avec un budget de 1,47 million d'euros, dont 0,652 d'aide. Coordonné par le BRGM, le projet, initié en décembre 2006, doit être clos en décembre 2010. Les partenaires du projet sont l'ISTO<sup>7</sup> (CNRS, Université d'Orléans), l'INERIS<sup>8</sup>, le LAEGO<sup>9</sup> (INPL<sup>10</sup> Nancy), le LCME<sup>11</sup> (Université de Metz) et TOTAL.

Un premier projet avait été envisagé en 2003 avec GDF sur le charbon d'Alès, mais n'a finalement pas abouti. Il en est résulté que les forages que l'on se proposait d'utiliser ont été obturés par mesure de sécurité. À l'évidence aussi, les enseignements des programmes nord-américains et du projet RECOPOL ont été tirés. D'où l'idée de reprendre le sujet par l'amont, au niveau de la qualité des charbons, et l'émergence du projet CHARCO.

Ce projet a trois objectifs principaux :

- une amélioration significative de la connaissance des processus d'échange de gaz dans les charbons ;
- la construction d'une méthodologie, sous forme de grille

6. Netherlands Organization for Energy and the Environment.

7. Institut des Sciences de la Terre d'Orléans.

8. Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques.

9. Laboratoire Environnement, Géomécanique et Ouvrages.

10. Institut National Polytechnique de Lorraine.

11. Laboratoire de Chimie et de Méthodologies pour l'Environnement. Université de Metz.

multicritères permettant de qualifier les potentialités d'échange de gaz des différents charbons ;

- l'élaboration des principes d'un premier site pilote à petite échelle en France ou en Europe.

La formation d'un thésard de l'ISTO (Pierrick Defossez) à la pétrographie des charbons, pour remédier à une carence qui est maintenant devenue nationale, et la réalisation de diverses expérimentations et analyses au sein du BRGM et des laboratoires partenaires (microporosité, texture, chimie, isothermes, géotechnique...) sont au cœur du projet pour lequel une trentaine de charbons d'origine (France, Espagne, Pologne, Sardaigne, Ukraine, Colombie, Maroc...) et de nature (maturité) variée ont été collectés pour servir aux différentes analyses.

Le projet a notamment permis au BRGM de développer la mesure des surfaces spécifiques par adsorption de CO<sub>2</sub>, donc à mieux décrire la microporosité des charbons, qui représente la partie de la porosité la plus intéressante pour l'adsorption, et qui paraît plus élevée pour les charbons les plus matures. De même, afin de mieux comprendre les mécanismes d'adsorption, le LCME, s'appuyant sur deux techniques d'analyse (spectroscopie IRTF en réflexion diffuse et analyse thermogravimétrique) a mis en évidence un phénomène de physisorption du CO<sub>2</sub> à la surface des charbons.

Les isothermes d'adsorption de CO<sub>2</sub> et de CH<sub>4</sub>, réalisées en pression par l'INERIS sur la plupart des charbons à l'état sec, confirment que la capacité d'adsorption du CO<sub>2</sub> est systématiquement plus importante que celle du CH<sub>4</sub>, pour tous les charbons analysés, et qu'une disparité importante des capacités d'adsorption du CO<sub>2</sub> existe d'un charbon à l'autre.

Une deuxième série d'essais a porté sur des échantillons humides, allant de quelques % (humidité naturelle des gisements vierges) à environ 30 % (gisement partiellement ennoyé). Ces essais montrent que l'influence de l'humidité sur la capacité d'adsorption du CO<sub>2</sub> sur le charbon est bien moindre que celle observée pour le CH<sub>4</sub>.

Parmi les modèles numériques réalisés au LCME, trois (Temkin, Toth et Langmuir) s'accordent au mieux avec les données expérimentales et permettent d'obtenir les informations suivantes : 1) quantité maximale de CO<sub>2</sub> adsorbé, 2) hétérogénéité de surface des charbons, 3) intensité de l'interaction CO<sub>2</sub>/surface.

Le grand nombre de charbons pris en compte et leur caractérisation par de multiples paramètres, permet

un traitement statistique de l'information soulignant les corrélations entre paramètres clés déterminant les meilleures conditions de stockage. En outre, deux techniques de préparation des échantillons ont été mises au point au BRGM et au LAEGO pour l'étude des propriétés mécaniques intrinsèques des charbons et des gonflements/emmagasinement sous-injection de CO<sub>2</sub>.

Le bilan de tous ces essais sera donné après l'achèvement du programme, c'est-à-dire au 1<sup>er</sup> semestre 2011. D'ores et déjà, un certain nombre de publications sont disponibles<sup>12</sup>. Sur la base du tri de qualité des charbons réalisé dans l'optique stockage, un site d'expérimentation pour un pilote de petite taille a été sélectionné dans les Asturies (Espagne) et fait l'objet du programme Carbolab qu'il nous appartient de présenter maintenant.

### Projet Carbolab

Il s'agit d'un projet européen, soutenu par le Fonds de recherche de l'ancienne Communauté Européenne du Charbon et de l'Acier (CECA) dont le traité fondateur a expiré le 23 juillet 2002. Le Fonds de recherche de la CECA a été transféré à la Communauté européenne et il sert à soutenir des projets de recherche dans le domaine du charbon et de l'acier. La suite logique du projet CHARCO était de réaliser des tests *in situ* dans un charbon dont les caractéristiques s'y prêtaient. C'était le cas du gisement de la mine de Montsacro (Photo 1) appartenant aux Houillères du Nord (HUNOSA, Asturies) qui prennent en charge la coordination des expérimentations sur leur site. Les autres partenaires sont : une association de recherche financée par les miniers



Photo 1. Chevalement du gisement de Montsacro (cliché HUNOSA).

12. • Gaucher E., Defossez P., Disnar J.-R., Laggoun-Defarge F., Pokryszka Z., Grgric D., Fingueneisel G., Zimny T., Aimard N. (2007) Problématique du stockage du CO<sub>2</sub> en veines de charbon. in Séminaire ANR CO<sub>2</sub> 2007 - Captage et Stockage du CO<sub>2</sub> - Pau - France - 12-13/12/2007, p. 82-83.  
 • Charrière D., Pokryszka Z., Behra P. Study of coal surface characteristics for CO<sub>2</sub> geological storage, International conference on coal and organic petrology, 22-27 September 2008, Oviedo.  
 • Gaucher E., Defossez P.-D.-C., Bizi M., Proust E. (2007) CO<sub>2</sub> storage mechanisms in coal seams. In 1<sup>st</sup> French - German Symposium on Geological Storage of CO<sub>2</sub> - Potsdam - Germany - 21-22/06/2007.  
 • Defossez P., Disnar J.-R., Laggoun-Defarge F., Bizi M., Gaucher E., (2008) Research of correlations between coal porosities and multivariable physico-chemical parameters., in European Coal Conference - 7<sup>th</sup> - Lviv - Ukraine - 26-29/08/2008.



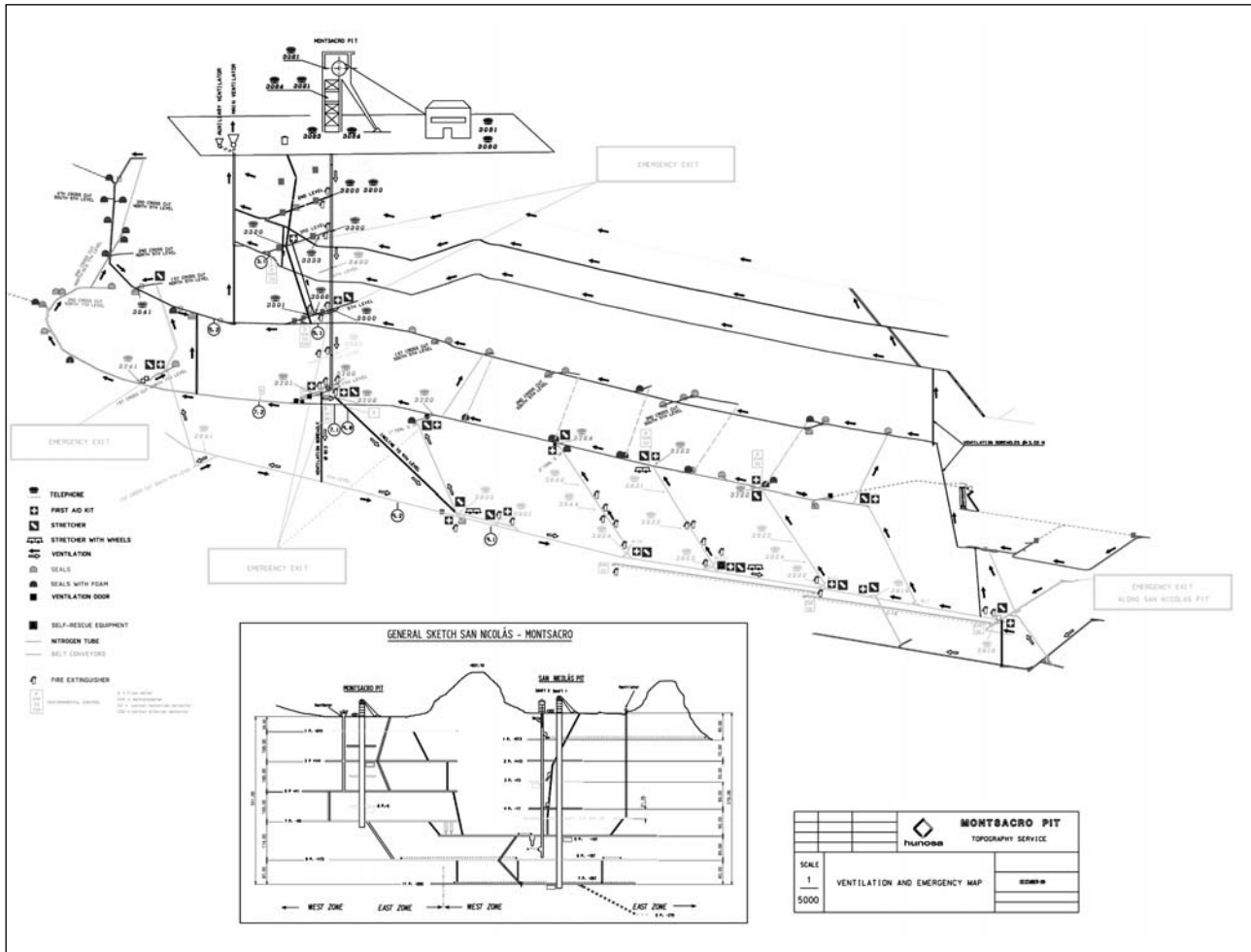


Figure 1. Coupe des travaux miniers de la mine de Hunosa et localisation des niveaux concernés par l'expérimentation (document du projet CARBOLAB).

(AITEMIN), le BRGM, l'INERIS, le GIG (Institut central des mines, Pologne), auxquels Total s'est joint ultérieurement, sur fonds propres. Le financement du projet représente 4,1 millions d'euros sur 4 ans (2009-2013).

Dans ce gisement, les veines de charbon sont verticales et la cible visée correspond au niveau 9 situé à 464 m sous le carreau en fond de vallée, environ 560 m sous le coteau où se trouve la mine (Fig. 1). Le projet a démarré en 2009 avec une phase de caractérisation du site (géologie, hydrogéologie, pétrologie...) parallèlement à des études de laboratoire réalisées dans le même esprit que celles du projet CHARCO. La suite comporte l'injection de CO<sub>2</sub> en une ou plusieurs étapes, le suivi de l'injection par les méthodes géophysiques et géochimiques, la modélisation des phénomènes, la sécurité à long terme et l'établissement de bonnes pratiques. Bien qu'on ne parle pas du méthane dans le projet, il sera forcément rencontré dans les expérimentations.

Le projet CARBOLAB constitue le maillon entre les études de caractérisation menées dans le cadre du programme CHARCO et le 1<sup>er</sup> pilote industriel à venir ensuite. La construction d'une usine pilote de 1 MW à La Pereda (Asturies), prévue par ENDESA, avec utilisation d'un système de postcombustion par gazéification-calcination pour le captage de CO<sub>2</sub>, est à ce stade reportée<sup>13</sup>.

### Conclusions

Les divers projets présentés ici témoignent de l'ampleur des efforts de recherche conduits sur le stockage géologique du CO<sub>2</sub> en couches de charbon. Ces recherches doivent être poursuivies sur sites pilotes, avec ou sans récupération de méthane, si l'on veut démontrer leur pertinence dans l'éventail des solutions proposées pour le stockage profond de CO<sub>2</sub>.

13. <http://www.lne.es/caudal/2010/07/25/endesa-aplaza-central-gas-mieres-hunosa-baja-demanda-energetica/946753.html>