

J'ai le plaisir de vous inviter à assister à la soutenance de ma thèse intitulée:

**"Étude de la réactivité de minéraux purs en présence de CO<sub>2</sub> supercritique. Mesure de la cinétique de carbonatation de la portlandite."**

qui se tiendra le mardi 1<sup>er</sup> Avril 2008 à 14h à l'Ecole des Mines de Paris (60 Boulevard Saint Michel) devant le jury composé de:

François Guyot	IPG Rapporteur	
Jacques Pironon	Université de Nancy	Rapporteur
Dominique Richon	Mines Paris	
Hélène Schneider	EDF	
Jacques Schott	LMTG	
Vincent Lagneau	Mines Paris Responsable de thèse	
Emmanuel Ledoux	Mines Paris Directeur de thèse	

Veillez trouver plus bas le résumé des travaux qui seront présentés. N'hésitez pas à faire suivre cette invitation auprès des personnes de votre connaissance susceptibles d'être intéressées.

Olivier Regnault

## **Étude de la réactivité de minéraux purs en présence de CO<sub>2</sub> supercritique. Mesure de la cinétique de carbonatation de la portlandite.**

*Olivier Regnault - Équipe Hydrodynamique et Réactions,  
Centre de Géosciences*

Le stockage géologique de CO<sub>2</sub> est une des solutions techniques envisagées pour faire face aux émissions de gaz à effet de serre dans l'atmosphère. Déjà mis en oeuvre aujourd'hui dans quelques sites pilotes, son acceptabilité à grande échelle requiert la démonstration de la tenue à long terme des propriétés de confinement des couvertures sus-jacentes aux réservoirs, et des ouvrages en ciment, particulièrement sensibles, qui constituent notamment les scellements de fond de puits. Pendant la phase d'injection, une bulle de CO<sub>2</sub> supercritique se forme, migre vers le sommet du réservoir sous l'effet de la poussée d'Archimède et se solubilise lentement (plusieurs dizaines d'années pour que la solubilisation soit complète). Alors que les réactions de dissolution et de carbonatation en présence d'eau liquide sont largement étudiées et commencent à être bien connues, la réactivité de la bulle de CO<sub>2</sub> en phase supercritique ou vapeur est encore mal appréhendée.

C'est face à ces incertitudes que nous avons mené une série d'expériences visant à décrire, à comprendre et à quantifier la réactivité d'un matériel minéral en présence d'une phase vapeur riche en CO<sub>2</sub>. Un minéral a été particulièrement étudié : la portlandite. Il s'agit d'un constituant clef des ciments riches en calcium, et à ce titre, peut, en première approche, être considéré comme un analogue des ciments de scellements de fond de puits. La cinétique de carbonatation de la portlandite a été déterminée à 80, 120 et 200° C, sous une pression de 160 bar et au contact de CO<sub>2</sub> initialement anhydre, ou d'un mélange CO<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O. Un protocole original a été élaboré : il associe mesures de l'avancement de la réaction (principalement, analyses par DRX du taux de carbonatation de la fraction solide et enregistrement de la consommation de CO<sub>2</sub> au cours de la réaction) et modélisation de l'évolution des équilibres de phases et des propriétés volumétriques du fluide réactionnel. D'un point de vue phénoménologique, nous avons montré que l'état de phase du système (vapeur ou biphasique liquide-vapeur) est déterminant. Il contrôle en grande partie le mode de réactivité et l'évolution cinétique de la réaction. Un modèle géochimique prenant en compte les spécificités de notre système réactionnel pauvre en eau a alors été développé pour simuler la carbonatation de la portlandite et à terme celle d'un ciment complet de type «fond de puits».

## **Abstract**

The efficiency on the long term of CO<sub>2</sub> geological storage will rely on trapping mechanisms and good sealing properties of the caprock and the eventual access wells. A series of experiments has been devised to observe and quantify the reactivity of portlandite with supercritical CO<sub>2</sub>. The portlandite has been chosen as a key component of calcium-rich cement for its interest in borehole cement degradation. Initial carbonation rates have been measured under different conditions: pressure 160 bar, temperatures 80, 120, and 200° C and with various amount of water. SEM observations show that the reacting fluid state (absence or presence of liquid phase) controls strongly the carbonation behaviour and the reaction path. A specific geochemical model has been developed in order to account for the particular conditions of our experiments. These results (portlandite carbonation rate and water-poor geochemical system modelling techniques) should be useful to simulate wellbore cement degradation.

La soutenance de thèse aura lieu le mardi 1<sup>er</sup> Avril 2008 à 14h à l'École des Mines de Paris (60-62 boulevard Saint Michel). Elle sera suivie d'un pot auquel vous êtes cordialement invités.