

# La sécurité du captage et du stockage du CO<sub>2</sub> : un défi pour les industries de l'énergie

**Didier JAMOIS<sup>a\*</sup>, Christophe PROUST<sup>ab</sup>, Jérôme HEBRARD<sup>a</sup>, Olivier GENTILHOMME<sup>a</sup>,**

<sup>a</sup> INERIS, BP2, 60550 Verneuil en Halatte

<sup>b</sup> UTC Laboratoire TIMR EA4297, Centre Pierre Guillaumat, 60200 Compiègne

**Mots-clés:** CCS, stockage CO<sub>2</sub>, transport par canalisation

## Résumé

L'accumulation de CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère induite notamment par les systèmes de production d'énergie qui utilisent des énergies fossiles est largement jugée responsable du réchauffement climatique. Une solution à court et moyen terme a été proposée qui consiste à capter à la source le CO<sub>2</sub> dans les fumées de combustion (ou l'extraire du combustible avant combustion), puis à le transporter jusqu'à des zones de stockage géologique. La mise en œuvre pratique soulève cependant bien des difficultés dont la sécurité. On s'interroge en particulier sur l'effet de fuite massive sur les canalisations de transport, en ayant en tête la tragédie du lac Nyos en Afrique qui a fait 1800 victimes. On présente dans ce document des résultats d'expériences consacrées à la caractérisation de ces fuites. Des moyens d'essais tout à fait originaux ont été mis en place, dont en particulier un réservoir de 2m<sup>3</sup> capable de contenir du CO<sub>2</sub> en phase dense (comme prévu dans les canalisations de transport), à une pression plus grande que 70 bar, reliée à une canalisation de dépotage permettant des rejets jusqu'à un diamètre d'orifice de 2 pouces. L'installation pourvue de thermocouples, de capteurs de pression et d'un système de pesée a permis de mesurer avec précision les débits massiques et l'état du fluide à l'orifice. Par ailleurs, le nuage formé à l'extérieur a été examiné en détail, dont en particulier la répartition des températures et des concentrations. A fort débit, l'incidence des forces de pesanteur se manifeste de manière nette, ce qui laisse augurer d'une très faible propension à la dispersion.

## 1. Contexte-objectifs

Dans cette communication on tente de faire le point sur des résultats d'expériences consacrées à la caractérisation de fuites d'un réservoir de CO<sub>2</sub> pressurisé. Ces travaux ont été conduits dans le cadre d'un projet européen (E.U., 2009).

## 2. Moyens expérimentaux

### 2.1 Infrastructure

Des moyens d'essais tout à fait originaux ont été mis en place, dont en particulier (figure 1) un réservoir de 2m<sup>3</sup> capable de contenir du CO<sub>2</sub> en phase dense (comme prévu dans les canalisations de transport), à une pression plus grande que 70 bar, reliée à une courte (6 m) canalisation de dépotage de 50 mm (diamètre interne) d'orifice de 2 pouces. Les vannes sont à boisseau sphérique à passage intégral de même section que la canalisation.

Des orifices de fuite calibrés sont percés dans des bouchons filetés que l'on vient visser à l'extrémité du tube (figure 2).

---

\* [didier.jamois@ineris.fr](mailto:didier.jamois@ineris.fr)

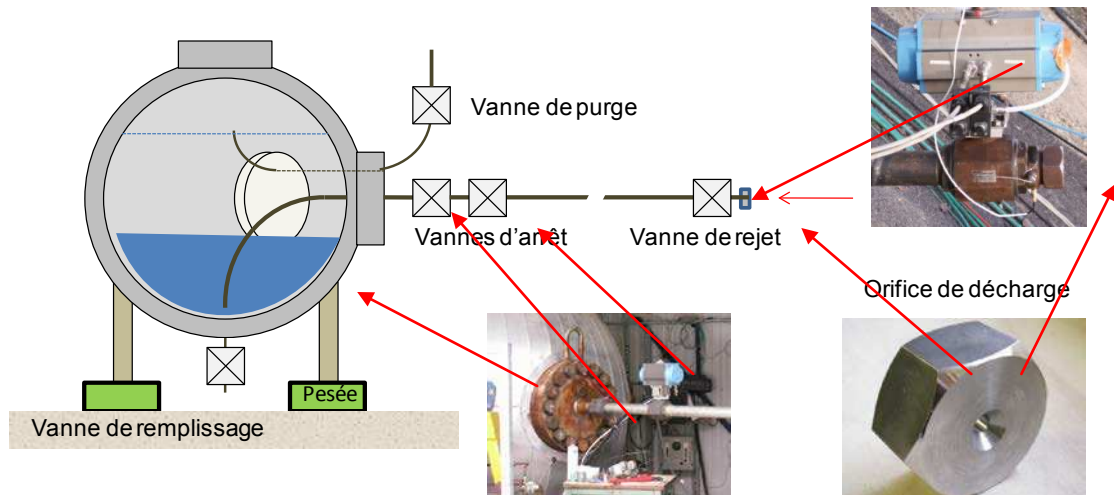


Figure 1. Installation de dépôtage. La sphère peut contenir 1tonne de CO<sub>2</sub>. La canalisation prélève le CO<sub>2</sub> en partie basse du stockage.



Figure 2 : Dimensions des orifices de fuite.

## 2.2 Métrologie

Dans la sphère, la pression est mesurée à l'aide d'un capteur piézorésistif KISTLER de type 4045 A 200 (gamme : 0 – 200±0,1 bar). Ce capteur est monté directement sur la bride de la sphère (figure 3). Un autre capteur (piezorésistif KISTLER de type 4045 A 500 - gamme : 0 – 500±1 bar), raccordé à la sphère par l'intermédiaire d'un tube sert de sauvegarde. La température interne est mesurée en 6 points sur l'axe vertical de la sphère à l'aide de thermocouples de type K (gainés, 1mm, classe A ± 0,3°C).

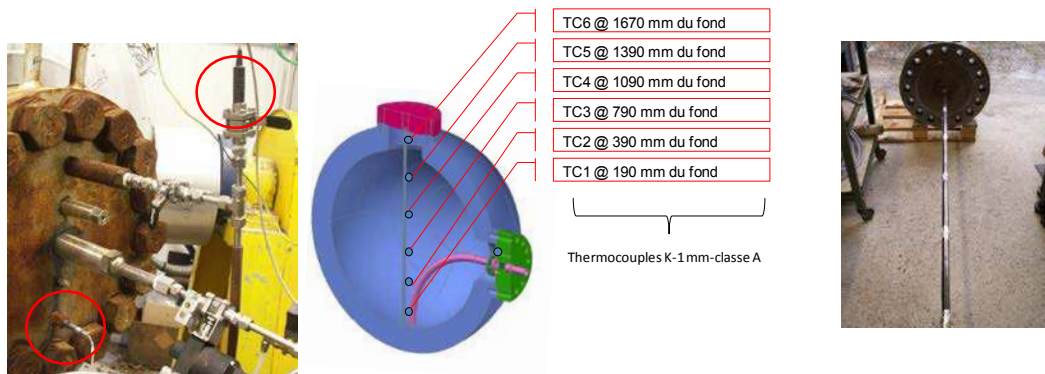


Figure 3 : Capteurs de pression montés sur la bride de la sphère (gauche) et thermocouples sur l'axe vertical de la sphère

La pression et la température du fluide sont également mesurées à l'extrémité du tube entre l'orifice et la vanne d'arrêt (figure 4) à 5 cm du point de fuite. Le capteur de pression piezorésistif de marque KULITE (type XTME190 0-350±3 bar).

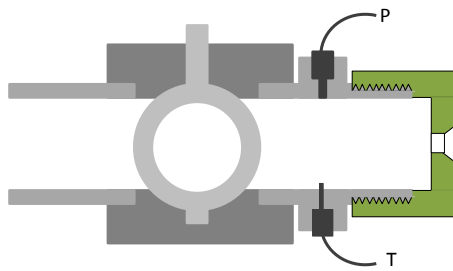


Figure 4 : Emplacement des capteurs température et pression à l'extrémité du tube

La sphère repose sur 4 pesons Mettler 0745A, de pleine échelle 2,2 tonnes (la sphère pèse environ 5 tonnes) qui permettent de mesurer sa masse avec une incertitude de +/-500g. Ces équipements sont suffisamment rapides pour envisager une mesure du débit massique durant une expérience. Le débit est obtenu par dérivation de la meilleure courbe de tendance passant à travers les points de mesure de masse en fonction du temps. On peut estimer que la précision de cette technique est de  $\pm 0,2$  kg/s.

Pour ce qui concerne le nuage (« panache ») produit par la fuite, on s'intéresse évidemment à la répartition des espèces ( $\text{CO}_2$ ) dans l'atmosphère mais aussi aux forces qui assurent la dispersion comme la pesanteur, le vent, la quantité de mouvement initiale. On a donc aussi tenté d'estimer les variations de densité du panache et sa vitesse interne.

Pour déterminer, grâce à une seule mesure de température, la concentration locale de  $\text{CO}_2$  et la densité du mélange, il est nécessaire de faire l'hypothèse que le mélange entre le gaz issu de la fuite et l'atmosphère est adiabatique. Si la température du gaz est différente de celle de l'atmosphère, alors l'écart de température en un point du panache par rapport à l'atmosphère environnante devrait être proportionnel à la teneur locale de gaz. La masse volumique peut alors se déduire par l'application de la loi des gaz parfaits.

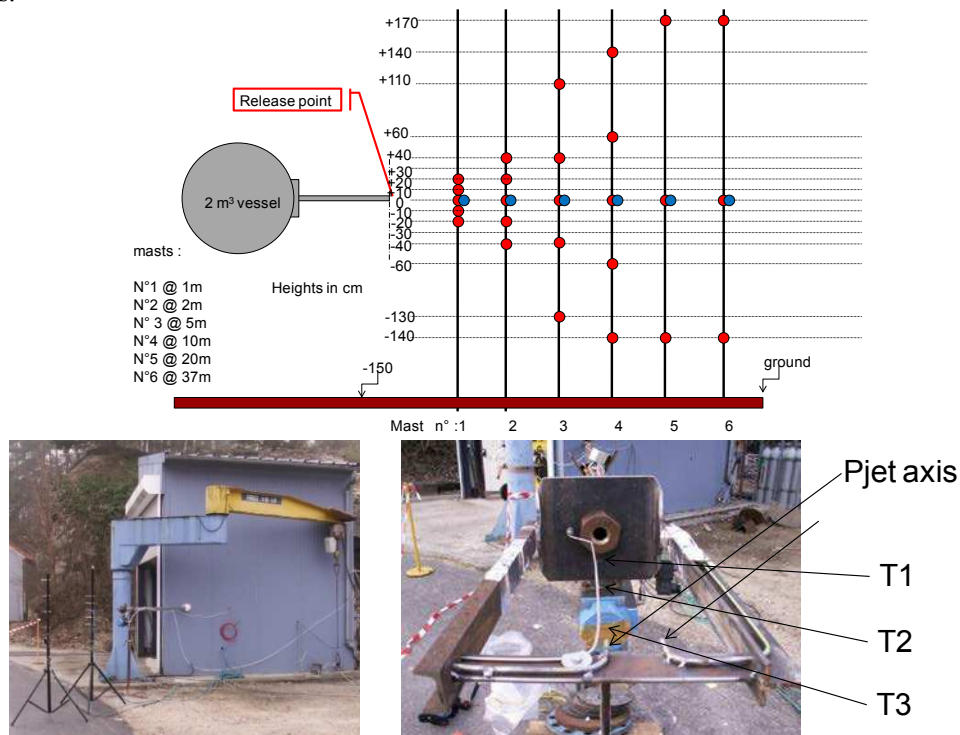


Figure 5 : schéma du dispositif de mesures dans le panache. Points rouge : mesures de température, points bleus : mesures de  $\text{CO}_2$  (et photo générale + dispositif métrologie de la zone d'expansion du jet)

Or il est relativement facile expérimentalement de connaître la température d'un gaz. On peut la mesurer avec un thermocouple, facile à installer et à contrôler, ce qui permet de multiplier les points de mesures simultanés. C'est beaucoup plus simple qu'un prélèvement pour analyse chimique par exemple. Cette

technique, très séduisante, a donc été privilégiée. Les aspects théoriques sont développés dans la section suivante. Les mesures de température ont été réalisées au moyen d'une trentaine de thermocouples de type K gainés. Leur extrémité est rétreinte à 0,5 mm de diamètre afin d'améliorer leur temps de réponse par rapport à un thermocouple standard (1,5 mm). On peut estimer que ce temps de réponse est inférieur à 1 seconde.

Cependant, pour vérifier les relations entre la concentration et la température, quelques points de prélèvement pour analyse de la composition de gaz ont été installés dans le panache. La concentration de CO<sub>2</sub> dans le mélange gazeux a été déduite de mesure de la concentration de l'oxygène dans l'atmosphère (en 6 points), toute baisse de cette teneur étant induite par une augmentation de la proportion du « diluant ». Cette mesure a été réalisée à l'aide d'analyseurs d'oxygène à effet paramagnétique, technique robuste et fiable (Appareil SERVOMEX de type PM1158 – incertitude +/-0,02%O<sub>2</sub>). On estime que l'incertitude absolue de mesure de la teneur en CO<sub>2</sub> est inférieure à +/-1%v/v de CO<sub>2</sub>.

26 thermocouples répartis sur 6 mâts (figure 5) ont finalement été utilisés. Six lignes de prélèvement pour analyse O<sub>2</sub> sont disposées sur chacun des 6 mâts, le long de l'axe du jet (à 1.5 m du sol). Trois points de mesure de températures ont été ajoutés sur l'axe du jet à 60, 160 et 360 mm de l'orifice ainsi que 2 prises de pression totale (dernière vue de la figure 5).

### 2.3 Températures, concentrations et masses volumiques

On peut aisément estimer les puissances thermiques échangées par le flux de CO<sub>2</sub> avec son environnement. La puissance échangée avec l'air entrainé dans le panache est :

$$P_{air} = \frac{\dot{m}_{CO_2}}{y_{CO_2}} \cdot C_{p_{air}} \cdot (T_{air} - T_{CO_2})$$

De même, on peut estimer la puissance échangée avec le sol par convection :

$$P_{sol} = h \cdot L \cdot \phi \cdot \frac{T_{air} - T_{CO_2}}{2}$$

où h est le coefficient d'échange thermique entre le nuage et le sol, typiquement de l'ordre de 1 watt/m<sup>2</sup>/°C.

Enfin, la puissance échangée par rayonnement entre le nuage et l'environnement peut être écrite de la manière suivante en supposant une émissivité de 1 :

$$P_{ray} = \sigma_o \cdot \phi^2 \cdot L \cdot \left( T_{air}^4 - \left( \frac{T_{air} + T_{CO_2}}{2} \right)^4 \right)$$

On trouve que P<sub>air</sub> est de 1400kW, P<sub>sol</sub> de 2kW et P<sub>ray</sub> de 30 kW. On constate donc que les échanges par convection et par rayonnement avec l'environnement sont tout à fait minoritaires (de l'ordre de 1%), ce qui confirme que le mélange entre l'air et le CO<sub>2</sub> est quasi-adiabatique. On peut essayer d'écrire l'équation caractéristique du mélange adiabatique du CO<sub>2</sub> avec l'air depuis son point d'émission jusqu'au point de mesure, et on obtient :

$$C \approx \frac{C_{pair}(T_{amb} - T_m) + C_{H_2O}^a (C_{pair}(T_{amb} - T_m) + (L_{H_2O} \times f_{H_2O}))}{(C_{pCO_2}(T_m - T_{CO_2}) + y \cdot L_{CO_2}) + C_{pair}(T_{amb} - T_m) + C_{H_2O}^a (C_{pair}(T_{amb} - T_m) + (L_{H_2O} \times f_{H_2O}))}$$

Avec :

- C<sub>pair</sub> Capacité calorifique de l'air (1 J/gK),
- C<sub>pCO<sub>2</sub></sub> Capacité calorifique du CO<sub>2</sub> (0,45 J/gK),
- C<sub>H<sub>2</sub>O</sub><sup>a</sup> Concentration massique en H<sub>2</sub>O dans l'air ambiant,
- L<sub>H<sub>2</sub>O</sub> Chaleur latente de condensation de l'eau vapeur atmosphérique (2500 J/g),
- L<sub>CO<sub>2</sub></sub> Chaleur latente de sublimation du CO<sub>2</sub> (570 J/g),
- f<sub>H<sub>2</sub>O</sub> Fraction de l'eau vapeur condensable à la température T<sub>m</sub>
- T<sub>amb</sub> Température ambiante,
- T<sub>m</sub> Température mesurée au point où est calculée la concentration,
- T<sub>CO<sub>2</sub></sub> Température du CO<sub>2</sub> à l'émission (pression atmosphérique et 100% CO<sub>2</sub> soit typiquement -80°C),
- y Fraction de CO<sub>2</sub> sous forme liquide ou solide à l'émission.

Si on voulait utiliser cette relation de façon prédictive, il faudrait connaître  $T_{CO_2}$  et  $y$ . La température est mesurable, mais la fraction massique de condensats est moins accessible. On a opéré un calage à l'aide de l'expression précédente en utilisant comme référence une mesure fiable de la concentration (via l'analyse d'oxygène) et une mesure de température réalisée au même endroit. On a choisi pour valeur de  $T_{CO_2}$ , le point de sublimation du  $CO_2$  à la pression atmosphérique ( $-80^\circ C$ , effectivement atteint comme l'ont montré les essais), puis on a retenu la valeur de «  $y$  » qui permettait d'avoir correspondance entre les valeurs calculées et mesurées de  $CO_2$  pour la valeur mesurée de la température au point de prélèvement,  $T_m$ . Typiquement, on a utilisé pour cela les mesures sur l'axe des mâts n°2, 3 ou 4. Puis la formule peut être appliquée pour tous les points de mesures de température. On vérifie (figure 6) que les valeurs ainsi calculées fournissent une très bonne estimation de la concentration de  $CO_2$  telle que mesurée aux autres points de prélèvement d'oxygène. Ce point confirme l'hypothèse de mélange adiabatique dans le panache.

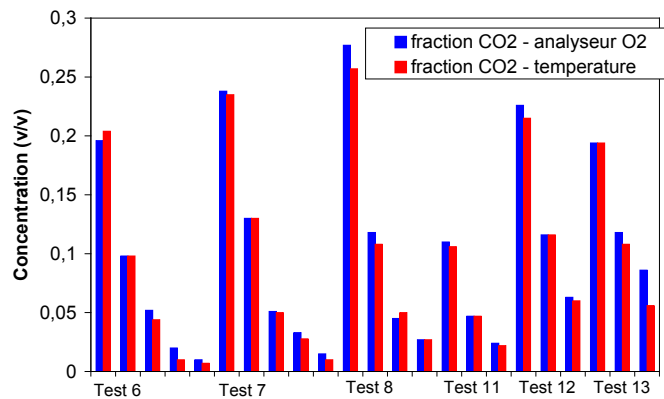


Figure 6 : comparaison des valeurs de concentration obtenues à partir des mesures de  $O_2$  avec celle obtenues à partir des mesures de température.

### 3. Résultats

Les conditions d'essai sont présentées dans le tableau 1. Le choix de la configuration des mâts suppose que les conditions ambiantes ne perturbent pas la direction du panache (pas de vent latéral trop important). Pour cette raison les essais n'ont été effectués que lorsque la vitesse locale du vent était inférieure à  $0,1$  m/s. On rappelle qu'à la pression ambiante le  $CO_2$  est solide et se sublime à  $-78^\circ C$ .

Test n°	T amb °C	Humidity %	T liquid °C	P liquid (babs)	P sat (liq) (babs)	Orifice (mm)
1	x	x	x	x	x	3
2	-1	90	-9	27	27	6
3	8,5	90	7	44	44	6
4	5	90	5	39	39	6
5	-3	90	-3	33	33	9
6	4	90	10	95	45	9
7	6	90	8	85	42	12
8	5	90	6	75	40	25
9	11	90	5	61	39	12
10	8	90	10	68	47	12
11	3	90	10	83	47	12
12	3	90	5	77	39	25
13	3	90	10	68	47	50

Tableau 1 : conditions expérimentales

#### 3.1 Caractéristiques de la fuite

Les résultats des mesures des débits spécifiques moyens (débit massique divisé par la section de fuite en phase liquide) sont présentés sur la figure 7. On y a représenté également la courbe théorique sous l'hypothèse d'un écoulement non flashant (liquide pur) à travers l'orifice supposant un coefficient de décharge (classique) de  $0,6$ . Mis à part, l'expérience  $50$  mm (pas d'orifice et fuite en pleine section de la

canalisation), on constate que la tendance générale des essais semble approximativement suivre l'évolution de la courbe théorique. Un meilleur accord entre les données d'essais et la courbe théorique nécessiterait le choix d'un coefficient de décharge de 0,5. Pourtant, parmi les conditions d'essai, plusieurs situations correspondaient à un liquide au point de saturation dans le réservoir, ce qui a priori aurait pu conduire à un écoulement flashant. La raison réside sans doute dans les très faibles pertes de charge dans la tuyauterie. La situation est totalement différente pour l'essai 13 où on a mesuré près de l'extrémité de la canalisation une surpression locale de 25 bar, largement au-dessous de la pression de vapeur saturante si bien que l'écoulement devait être « flashant ». Du reste, le point caractéristique est nettement séparé des autres sur la figure 7.

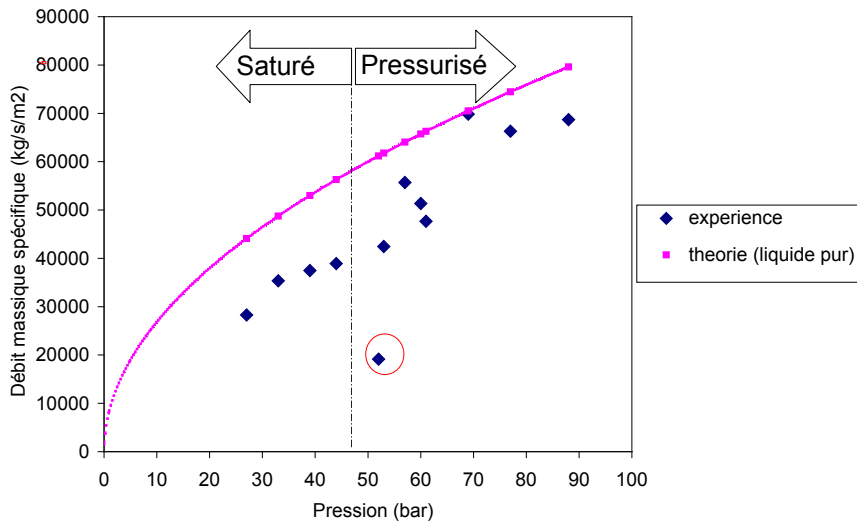


Figure 7 : débit spécifique de fuite en fonction de la pression génératrice

Lorsqu'on examine l'état de l'écoulement immédiatement après l'orifice, le jet subit une expansion considérable (jusqu'à un diamètre de 30 à 50 cm : figure 8) en amont de la zone de mélange avec l'air (qui débute à partir de 1 m de distance depuis la fuite). Ce point est commun avec les fuites de gaz sous très fortes pressions.

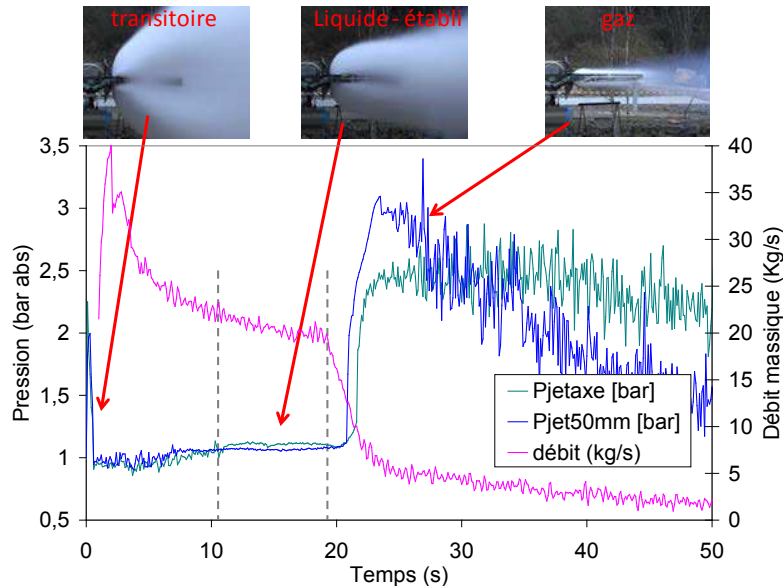


Figure 8 : zone d'expansion du jet et mesures de la pression totale locale

Les mesures locales révèlent que, au moins pendant l'écoulement liquide, la pression totale n'est que de 50 mbar environ. Cette surpression correspondrait à la pression dynamique de l'écoulement car les filets fluides sont parallèles. Connaissant par ailleurs le débit massique de la fuite, la section d'écoulement du

jet à l'endroit de la mesure de la pression dynamique, il est tout à fait possible de déduire la vitesse moyenne puis la masse volumique moyenne de l'écoulement (tableau 2).

test n°	$P_{\text{dyn}}$ (Pa)	$T@360$ mm	$P_{\text{sphere}}$ (b)	$U_{\text{orifice}}$ (m/s)	$\rho_{\text{vap}}$ (kg/m <sup>3</sup> )	$\Phi_{\text{jet}}$ (mm)	$M$ (kg/s)	$\rho$ (kg/m <sup>3</sup> )	$U$ (m/s)
12	6000	-85	61	110	2,8	350	23,4	4,9	49
13	6000	-80	52	102	2,7	430	37,6	5,6	46

Table 2 : estimation de la masse volumique et de la vitesse moyenne à l'extrémité de la phase d'expansion du jet

On constate que la masse volumique est proche de 5 kg/m<sup>3</sup> ce qui suggère qu'une fraction importante de condensés est transportée dans le flux de CO<sub>2</sub> vapeur (masse volumique de l'ordre de 3 kg/m<sup>3</sup>). Compte tenu des niveaux de température locales, typiquement -80°C, les condensés sont très probablement des fines particules de neige carbonique.

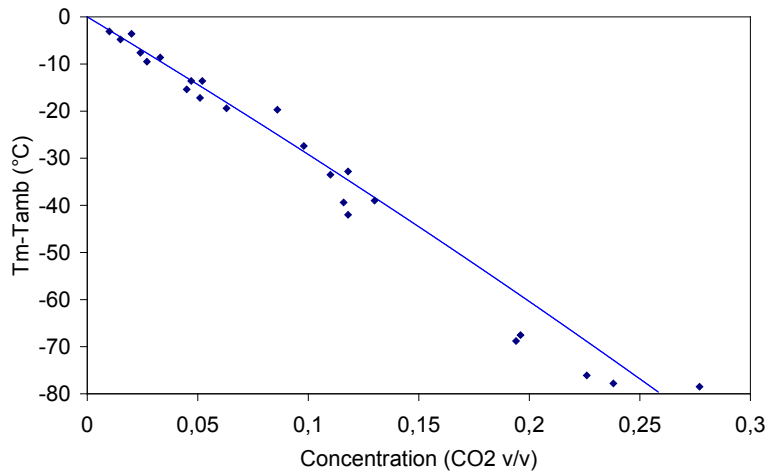


Figure 9 : Variations de température en fonction des concentrations CO<sub>2</sub> obtenues à l'aide de la mesure O<sub>2</sub>

Les mesures réalisées dans le panache plus en amont ont permis d'estimer plus précisément la fraction de solide formée dans la zone d'expansion. En effet, on a montré que le mélange CO<sub>2</sub>-atmosphère est quasi-adiabatique si bien que la température mesurée en 1 point du panache reflète l'état initial du CO<sub>2</sub>. C'est ce qu'exprime l'équation présentée précédemment (donnant C).

Comme la température dans la zone d'expansion est connue (-80°C), le calage de la formule à l'aide des mesures simultanées de température et de concentration nécessite de choisir la fraction massique de solide, y, formée dans la zone d'expansion. La figure 9 présente les résultats de ces mesures. Le meilleur accord est obtenu pour y=0,3 ce qui paraît plutôt conforme aux résultats du tableau 2.

### 3.2 Caractéristiques des panaches

Les caractéristiques des panaches ont également été étudiées. On présente sur la figure 10 deux exemples de courbes d'isoconcentration (selon le plan vertical coupant le nuage par la tranche). On admet que le nuage pourrait être dangereux au-delà d'une concentration de l'ordre de 5 % v/v. Ces données révèlent que la « zone à 5% » est bien moins étendue que la partie visible du panache (qui correspond au point de rosée de l'atmosphère, atteint pour une concentration de CO<sub>2</sub> d'une fraction de %). L'étendue de la zone dangereuse dépend très directement du débit massique de la fuite, jusqu'à 30 m dans les conditions présentes. Mais le nuage semble se dissiper rapidement. Il semblerait que le mécanisme de dispersion de ce type de fuite s'apparente à celui des jets de gaz sous pression.

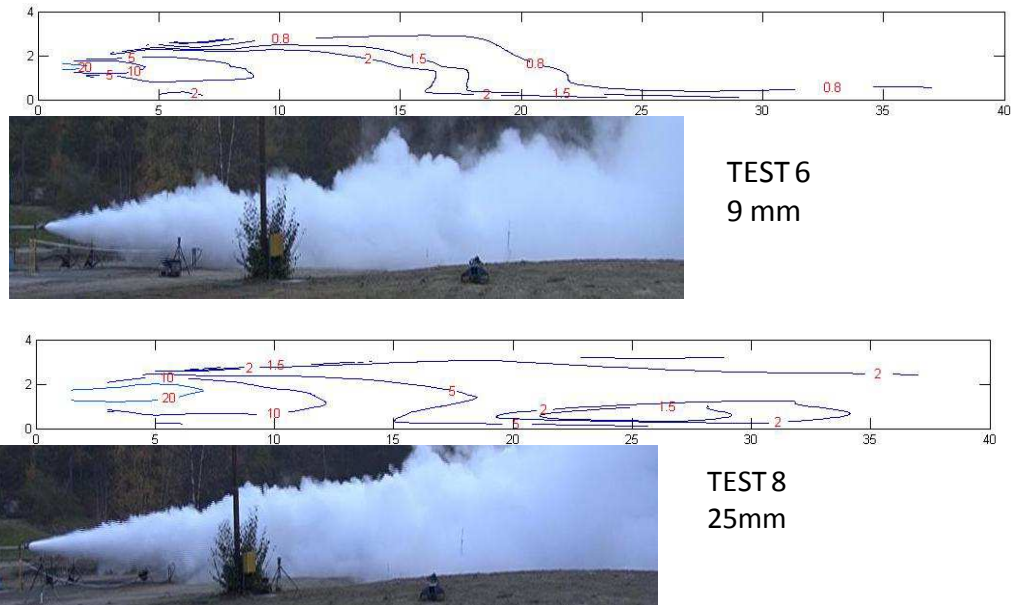


Figure 10. Allure des nuages de  $\text{CO}_2$  –la distance entre l’orifice et le poteau vertical est de 10 m

## Conclusions

Une série d’expériences tout-à-fait originale a été réalisée dans le cadre du programme européen  $\text{CO}_2$ -PIPEHAZ avec pour objectifs de quantifier les débits de fuite et de comprendre les mécanismes de dispersion dans l’atmosphère. Il semblerait que la phénoménologie se rapproche de celle des jets de gaz sous pression dont la dispersion est dominée par la quantité de mouvement de la fuite. Parmi, les éléments nouveaux on est parvenu à mettre en évidence la formation de fines particules de neige carbonique à l’intérieur de la zone d’expansion. La zone dangereuse du nuage semble s’étendre jusqu’à 20 ou 30 m pour un débit de fuite de l’ordre de 30 kg/s. Dans l’hypothèse d’une rupture de pipeline de  $\text{CO}_2$  (diamètre 500 mm par exemple) on peut craindre un débit au moins 100 fois plus grand et des zones de danger de quelques centaines de mètres. Ce point est en cours d’analyse.

## Références

- GIEC, 2007 : Bilan 2007 des changements climatiques. Contribution des Groupes de travail I, II et III au quatrième Rapport d’évaluation du Groupe d’experts intergouvernemental sur l’évolution du climat [Équipe de rédaction principale, Pachauri, R.K. et Reisinger, A. (publié sous la direction de~)]. GIEC, Genève, Suisse, ..., 103 pages.
- Eos, 2004, Sur la catastrophe du lac Nyos et les moyens de prévention mis en place pour éviter un nouvel accident, Vol. 85, No. 30, 27
- EU , 2009,  $\text{CO}_2$ Pipehaz - Quantitative Failure Consequence Hazard Assessment for Next Generation  $\text{CO}_2$  Pipelines : The Missing link - <http://www.co2pipehaz.eu/>

## Abstract

Continuous accumulation of  $\text{CO}_2$  from fossil fuels is judged responsible for the global warming effect. A short term solution would be to capture the  $\text{CO}_2$  on the production site and to bury it in geological storages. But a number of difficulties need to be solve and in particular the potential effect in populated area of a massive leak of  $\text{CO}_2$  in case of a pipeline rupture. This concern is backed by the tragedy of Nyos Lake during which 1800 people died. In this article, the results of a test campaign devoted to measurement of the characteristics of these leaks. To this pupose, a 2 m<sup>3</sup> vessel equipped with a 2’’ duct was used. The mass flowrate was estimated but also a number of other parameters like the quantity of dry ice formed outside and the dispersion of the gas in the atmosphere.

**Key-words:** CCS,  $\text{CO}_2$  storage, pipeline transportation