

## DÉVELOPPEMENT DE MÉTHODES GÉO-ÉLECTRIQUES POUR LA CARACTÉRISATION DES PHÉNOMÈNES DE PRÉCIPITATION-DISSOLUTION EN MILIEU CARBONATÉ

REMBERT F.<sup>1</sup>, GUERIN R.<sup>1</sup>, JOUGNOT D.<sup>1</sup>, ZUDDAS P.<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Sorbonne Université, CNRS, EPHE, UMR 7619 METIS, 4 place Jussieu,  
75252 PARIS Cedex 05, [flore.rembert@sorbonne-universite.fr](mailto:flore.rembert@sorbonne-universite.fr)

### **RÉSUMÉ**

*Le suivi temporel des processus de précipitation et dissolution des minéraux carbonatés intéresse l'exploitation de réservoirs (e.g. eau, gaz) ou le stockage géologique (e.g. CO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>, déchets). Les récentes avancées des connaissances théoriques et de l'instrumentation des méthodes géo-électriques permettent maintenant d'envisager leur utilisation pour le suivi quantitatif in situ de processus hydrogéologiques (e.g. flux hydriques, transport de solutés) et de réactions géochimiques (e.g. dissolution-précipitation des minéraux) ou biogéochimiques (e.g. génération de biofilms bactériens). Pour répondre à cette problématique, nous proposons de caractériser les propriétés électriques complexes de la dissolution de la calcite par des mesures en laboratoire sur un matériau synthétique en utilisant la méthode de la polarisation provoquée spectrale (PPS, i.e. spectroscopie d'impédance électrique basse fréquence, entre 1 mHz et 50 kHz) et un dispositif d'acquisition en développement.*

**Mots clés :** *dissolution de la calcite, polarisation électrique, suivi temporel.*

### **ABSTRACT**

#### **GEO-ELECTRIC METHODS DEVELOPMENT TO CHARACTERIZE PRECIPITATION-DISSOLUTION PHENOMENA IN CARBONATE CONTEXT**

*Precipitation and dissolution processes in carbonates monitoring is a major deal of tanks exploitation (e.g. water, gas) or geological storage (e.g. CO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>, waste). It is now possible to quantitatively monitor in situ hydrogeological phenomenon (e.g. hydric flux, solute transport) or geochemical (e.g. minerals dissolution-precipitation) and biogeochemical reactions (e.g. bacterial biofilms generation) thanks to recent progresses of theoretical knowledge and in instrumentation of geo-electrical methods. To answer to this problematic, we propose to characterize the complex electrical properties of calcite dissolution with laboratory experiments on a synthetic material using spectral induced polarization method*

*(SIP, i.e. low frequency impedance spectroscopy, between 1 mHz and 50 kHz) and a data acquisition device in development.*

**Key words:** *calcite dissolution, electrical polarization, monitoring.*

## .1 INTRODUCTION

La méthode de la polarisation provoquée spectrale (PPS) est de plus en plus utilisée pour caractériser les roches carbonatées (Norbisrath et al., 2017 ; Halisch et al., 2018). Cette méthode de mesure permet d'observer des phénomènes de polarisation électrique ayant lieu à l'interface entre le minéral et le fluide poral selon la théorie de double couche électrique (e.g., Chelidze et al., 1999).

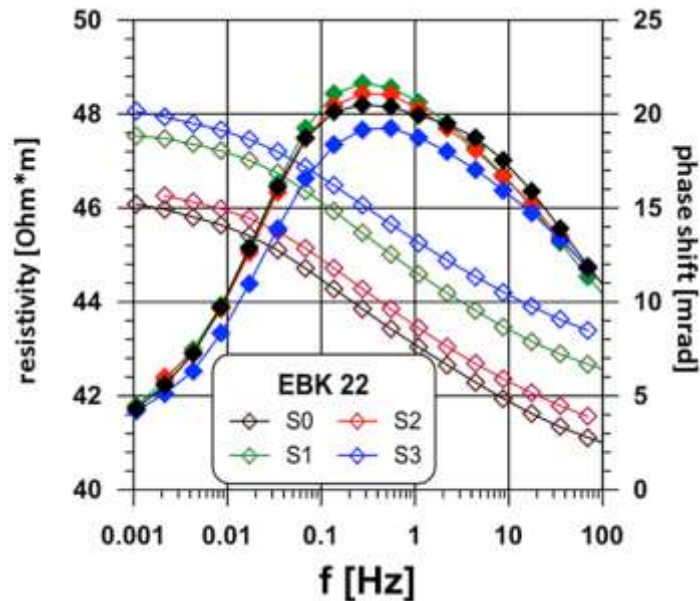
La compréhension des mécanismes de polarisation à l'origine des signaux électriques mesurés n'est pas encore totale, mais de nombreux modèles ont été développés afin d'en approcher les causes (Marshall et Madden, 1959 ; Leroy et al., 2017). La résistivité électrique mesurée  $\rho^*$  est une grandeur complexe :

$$\rho^* = |\rho|e^{i\phi} = \rho' + i\rho'' \quad (1)$$

L'amplitude  $|\rho|$  et la phase  $\phi$  de la résistivité électrique complexe sont les composantes mesurées, tandis que les parties réelle et imaginaire,  $\rho'$  et  $\rho''$ , représentent respectivement la résistivité ohmique et les mécanismes de polarisation. La phase  $\phi$  est une valeur négative définie par :

$$\phi = \arctan\left(\frac{\rho''}{\rho'}\right) \quad (2)$$

Les roches carbonatées se distinguent par une forte réactivité à l'acide, qui est un critère de reconnaissance très utilisé (Morse et Arvidson, 2002). En revanche, si le suivi temporel de la dissolution de roches carbonatées a déjà été réalisé en laboratoire par la mesure de grandeurs physico-chimiques (e.g., température, pH, conductivité électrique, pCO<sub>2</sub>) pour caractériser l'évolution de paramètres pétrophysiques (e.g., porosité, perméabilité) effectifs ou spatialisés grâce à des techniques d'imagerie 3D (Luquot et al., 2014a ; Luquot et al., 2014b), seuls Halisch et al. (2018) ont publié une étude sur la dissolution de roches carbonatées couplée à des mesures de PPS. Dans cette étude, des spectres de phase  $\phi$  sont mesurés suite à plusieurs étapes de dissolution.



**Fig. 1 – Mesures PPS réalisées par Halisch et al. (2018) sur un échantillon carbonaté à 4 étapes d'acidification. Les losanges vides correspondent à l'amplitude et les losanges colorées à la phase.**

La forme en cloche du spectre de phase montre que l'échantillon se polarise (Fig. 1). Cependant, on observe peu de variations pour les différentes étapes de dissolution. Le suivi temporel n'est donc pas concluant. Par ailleurs, ces spectres convoluent la complexité de la roche naturelle avec les variations dues à la dissolution. En effet, les échantillons étudiés contiennent différents minéraux carbonatés avec des grains de tailles différentes, mais également quelques minéraux de quartz et d'argile (illite). Il serait donc préférable de mener une étude sur un matériau synthétique, dont on contrôle la nature et la taille des grains.

## **.2 MATÉRIELS ET MÉTHODES**

### **2.1 Caractéristiques de l'échantillon**

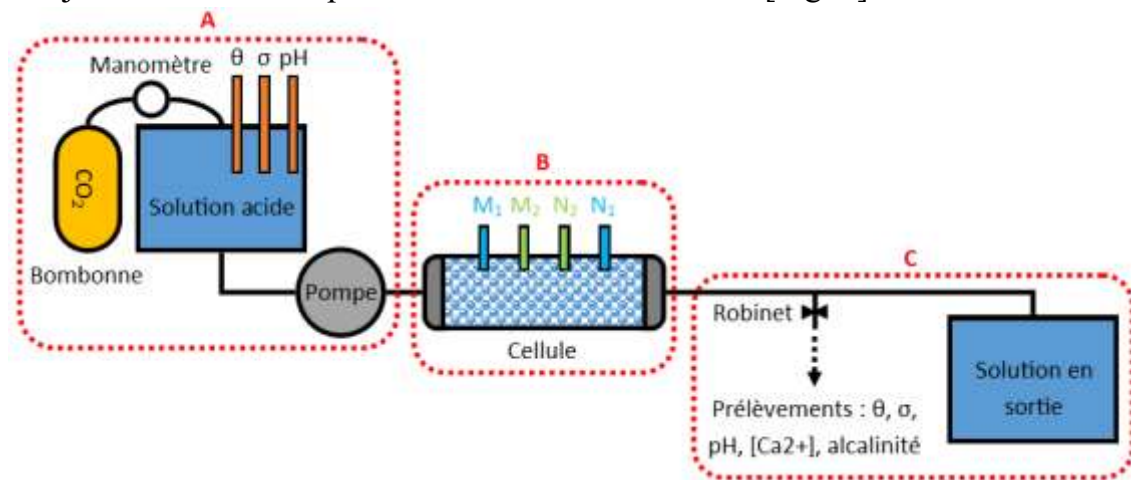
Les mesures sur des échantillons de roches naturelles sont compliquées à interpréter, car une roche est un assemblage hétérogène de nombreux minéraux de nature et taille variables et ayant un certain degré d'altération.

De la même manière que Wu et al. (2010), nous contrôlons les caractéristiques de notre échantillon pour n'étudier que la réactivité de la calcite pure. Notre système est donc composé de poudre de calcite obtenue après tamisage et comprenant des grains de 125 à 250  $\mu\text{m}$  de diamètre. Nous n'avons en revanche pas pu contraindre la sphéricité de ces grains.

### **2.2 Dispositif de mesures PPS**

La poudre de calcite est contenue dans une cellule cylindrique en plexiglas de 20 cm de long et 10 cm de diamètre, scellée par deux embases métalliques, qui

servent d'électrodes d'injection du courant électrique (0,4 mA). L'appareil de mesures PPS est le PSIP de Ontash & Ermac, utilisé pour un couple d'électrodes d'injection et deux couples de mesures  $M_1N_1$  et  $M_2N_2$  [Fig. 2].



**Fig. 2 – Schéma du dispositif de mesures PPS et physico-chimiques d'un échantillon de poudre de calcite. A : solution d'entrée dont on mesure les caractéristiques physico-chimiques à pression partielle en  $CO_2$  et débit fixés respectivement par une bombonne de gaz et une pompe. B : électrodes de mesure et cellule contenant la poudre de calcite scellée par les embases métalliques servant à l'injection du courant électrique. C : circuit de sortie avec un robinet pour prélever la solution et mesurer différents paramètres.**

Les électrodes de mesure sont des électrodes dites « impolarisables » de type Ag/AgCl. Elles sont composées d'un fil d'argent (Ag) recouvert d'un dépôt de chlorure d'argent (AgCl) et baigné dans une solution gélifiée de chlorure de sodium (NaCl) à  $0,68 \text{ mol.L}^{-1}$ . Le contact électrique avec le milieu est assuré grâce à une bougie poreuse.

### 2.3 Protocole de mesures

La dissolution a lieu en système fermé. Une solution d'acide chlorhydrique à  $0,01 \text{ mol/L}^{-1}$  circule dans la cellule avec un débit de  $36 \mu\text{L.min}^{-1}$  fixé par une pompe péristaltique. On fixe également la pression partielle en  $CO_2$  du système grâce à une bombonne pressurisée.

En amont de la cellule on contrôle la conductivité, le pH et la température du fluide. De plus, on prélève régulièrement le fluide en sortie de cellule pour mesurer la concentration en calcium dissous  $[Ca^{2+}]$ , l'alcalinité et les mêmes paramètres physico-chimiques que pour la solution d'entrée [Fig. 2]. La mesure de résistivité électrique complexe est réalisée au cours de la dissolution en faisant l'hypothèse que le courant électrique injecté ne perturbe pas l'avancement de la réaction de dissolution.

## RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

**CHELIDZE T. L., GUEGUEN Y., RUFFET C., 1999** – Electrical spectroscopy of porous rocks: a review. I. Theoretical models. *Geophys. J. Int.* (1999) 137, pages 16-34.

**HALISCH M., HUPFER S., WELLER A., DLUGOSCH R., PLUMHOFF H. P., 2018** – An experimental setup for the assessment of effects of carbonate rock dissolution on complex electrical conductivity spectra. *Paper SCA2018-051, Proceedings of the International Symposium of the Society of Core Analysts, Trondheim, Norway, 27-31 August.*

**LEROY P., SHUAI L., JOUGNOT D., REVIL A., WU Y., 2017** – Modelling the evolution of complex conductivity during calcite precipitation on glass beads. *Geophys. J. Int.* (2017) 209, pages 123-140.

**LUQUOT L., RODRIGUEZ O., GOUZE P., 2014a** – Experimental characterization of porosity structure and transport property changes in limestone undergoing different dissolution regimes. *Transp Porous Med* (2014) 101, pages 507-532.

**LUQUOT L., ROETTING T. S., CARRERA J., 2014b** – Characterization of flow parameters and evidence of pore clogging during limestone dissolution experiments. *Water Resour. Res.*, 50, pages 6305-6321.

**MARSHALL D. J., MADDEN T. R., 1959** – Induced polarization, a study of its causes. *Geophys*, vol. XXIV, NO. 4 (October 1959), pages 790-816.

**MORSE J. W., ARVIDSON R. S., 2002** – The dissolution kinetics of major sedimentary carbonate minerals. *Earth-Science Reviews* 58 (2002), pages 51-84.

**NORBISRATH J. H., WEGER R. J., EBERLI G. P., 2017** – Complex resistivity spectra and pore geometry for predictions of reservoir properties in carbonate rocks. *Journal of Petroleum Science and Engineering* 151 (2017), pages 455-467.

**WU Y., HUBBARD S., WILLIAMS K. H., AJO-FRANKLIN J., 2010** – On the complex conductivity signatures of calcite precipitation. *J. Geophys. Res.* (2010), 115, G00G04.