

Geo-electrical methods for the detection and monitoring of CO2 transfers in the subsurface.

Thomas Kremer

► To cite this version:

Thomas Kremer. Geo-electrical methods for the detection and monitoring of CO2 transfers in the subsurface.. Géophysique [physics.geo-ph]. Université Paris Sorbonne; Institut de Physique du Globe de Paris (IPGP), 2015. Français. NNT: . tel-02499188

HAL Id: tel-02499188 https://nantes-universite.hal.science/tel-02499188

Submitted on 5 Mar 2020

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers. L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITÉ SORBONNE PARIS CITÉ









Thèse préparée à l'INSTITUT DE PHYSIQUE DU GLOBE DE PARIS Ecole doctorale STEP'UP - ED N°560 IPGP - Laboratoire de Dynamique des Fluides Géologiques

Utilisation des méthodes électriques pour la détection et le suivi de transferts de CO_2 dans la subsurface

Par

Thomas Kremer

Thèse de doctorat Sciences de la Terre et de l'environnement dirigée par Pierre Agrinier & Alexis Maineult

> Présentée et soutenue publiquement le : Mardi 27 janvier 2015

> > devant le jury composé de :

M. Jean-Paul Montagner	Président
M. Philippe Cosenza	Rapporteur
M. Jean-François GIRARD	Rapporteur
Mme Myriam Schmutz	Examinatrice
M. Pierre Agrinier	Directeur de thèse
M. Alexis Maineult	Co-directeur de thèse
Mme Aïcha El-Khamlichi	Invitée
M. Jean DESROCHES	Invité

Résumé

L'objectif de cette thèse est d'étudier la capacité des méthodes de tomographie de résistivité électrique (ERT) et de polarisation provoquée (PP) à détecter et suivre des transferts de dioxyde de carbone dans la subsurface. Cette problématique s'inscrit dans le contexte de la surveillance en proche surface des sites de séquestration géologique du CO₂.

Dans un premier temps, une approche en conditions contrôlées a été adoptée. Des expériences en laboratoire d'échelle métrique, sur des milieux granulaires relativement homogènes, totalement saturés en eau ont été réalisées. En étudiant l'impact d'une injection de CO_2 sur les valeurs de résistivité et de paramètres PP associées à ces milieux, nous avons pu discerner et quantifier les effets induits par la présence d'une phase gazeuse dans le milieu de ceux reliés aux phénomènes de dissolution du CO_2 et/ou de la matrice poreuse. Dans le cas de la méthode ERT, des travaux de modélisation ont permis d'étudier la sensibilité de différentes configurations d'électrodes et de développer des protocoles d'acquisition adaptés à la détection d'un panache de CO_2 gazeux. Cette étude a mis en lumière l'importance de l'utilisation de protocoles de mesure adaptés à la géométrie du panache de gaz.

En étudiant l'évolution de la réponse PP lors d'expériences en laboratoire similaires, nous avons observé qu'aux hautes fréquences (f > 1 kHz), les propriétés capacitives du milieu sont systématiquement davantage affectées par l'injection de CO₂ que les propriétés de conduction ohmique. Ce constat souligne l'intérêt notable des méthodes PP pour la détection de transferts de CO₂ dans les sols. A partir d'un modèle théorique mécanistique, nous avons reproduit la forme et l'ampleur des spectres fréquentiels de conductivité en quadrature associés aux milieux étudiés. Ces travaux ont également permis de développer des relations empiriques simples reliant les réponses PP observées aux hautes fréquences avec les paramètres physico-chimiques caractéristiques du milieu (saturation en eau, conductivité électrique du fluide saturant).

Dans un second temps, nous avons étendu la problématique de la thèse à des milieux plus complexes, en réalisant des expériences sur un cas de terrain. Trois expériences distinctes ont été réalisées. Nous avons effectué le suivi temporel d'une injection de CO_2 gazeux à faible profondeur ($\approx 5,5$ m) par la méthode ERT, la méthode de polarisation provoquée temporelle (PPT), et la méthode de polarisation provoquée spectrale (PPS). A nouveau, les paramètres géophysiques liés aux propriétés capacitives du milieu présentent des variations plus importantes au cours des expériences que les paramètres liés aux propriétés de conduction ohmique. Cependant, dans certains cas, des effets instrumentaux sont également responsables d'importantes variations sur les signaux mesurés, et doivent être pris en compte lors de l'interprétation des résultats.

Abstract

The main objective of this thesis is to study the capacity of electrical resistivity tomography (ERT) and induced polarization (IP) methods to detect and follow carbon dioxide (CO₂) transfers in the subsurface. This work contributes to the development of surface monitoring strategies of CO_2 storage sites.

First, we assessed this issue by performing experimental studies in controled conditions. We designed and conducted metric scale laboratory experiments consisting in the injection of gaseous CO_2 into homogeneous granular media fully saturated with water. Studying the evolution of ERT and IP parameters during these experiments allowed us to distinguish and quantify the effects induced by the introduction of a gaseous phase in the media from those related to dissolution processes. In the case of ERT method, we developed modeling tools that allowed to studying the sensitivity of several electrode configurations and designing new acquisition protocols that show a greater efficiency for the detection of gaseous CO_2 plumes. This study highlights the importance of using measurement protocols adapted to the geometrical and spatial extension of the gas plume, in order to maximise the detection capacity of the method.

In the case of IP method, laboratory scale experiments showed that at high frequencies (f > 1 kHz), the capacitive properties of the studied media always showed a greater sensitivity to the physicochemical changes induced by the CO₂ injection than ohmic conduction properties. This observation underlines the significant interest of IP methods for the detection of CO₂ transfers in the subsurface. Using a theoretical mechanistic model, we managed to reproduce the shape and magnitude of the quadrature conductivity spectra associated with the studied media, and to develop simple empirical relationships linking the IP responses observed at high frequencies with some physicochemical parameters (water saturation level, electrical conductivity of the saturating water).

Then, we extended our studies to more complex environments by performing experiments at a small field scale. Three separate experiments were performed. We monitored a shallow CO₂ injection (≈ 5.5 m) using ERT method, temporal induced polarization method (TIP) and spectral induced polarization method (SIP). Again, the geophysical parameters related to the capacitive properties of the medium showed greater variations during the experiments than those related to ohmic conduction properties. However, in some cases, instrumental effects are responsible for significant variations on the measured signals, and must be taken into account when interpreting the results.

À mes parents.

Remerciements

Avant toute chose, je tiens à remercier Maria Zamora, Alexis Maineult et Pierre Agrinier, d'une part pour m'avoir donné l'opportunité de réaliser cette thèse, il y a maintenant 3 ans et demi de cela, à la suite d'une rencontre relativement rapide, mais qui aura finalement changé ma vie (ce qui n'est pas rien de mon point de vue), mais surtout pour m'avoir accompagné tout au long de ces travaux, en tant que directeurs de thèse et chef d'équipe, et pour s'être toujours rendus disponibles lorsque le besoin s'en est fait sentir. Au-delà de vos compétences d'encadrement, je tiens également à vous remercier pour vos compétences humaines, qui ont rendu tous les déjeuners, les pauses café, et les innombrables heures dans le labo passées en votre compagnie des moments agréables. A tous les trois, merci beaucoup!

J'adresse également de profonds remerciements à Myriam Schmutz, qui, sans détenir le titre officiel de directrice de thèse, m'a néanmoins guidé et accompagné sur de nombreux aspects de ces travaux, en laboratoire, sur le terrain, j'ai énormément appris à ton contact. Merci pour tout.

Je tiens également à remercier tous les contributeurs du centre de recherche sur le stockage géologique du CO_2 , l'Ademe, Schlumberger et Total, fournisseurs du nerf de la guerre, sans qui cette thèse n'aurait jamais vu le jour. Je remercie également leurs représentants, Aïcha El-Kamlichi de l'Ademe, Aline Gendrin et Jean Desroches de chez Schlumberger, qui ont tous les trois suivi mon travail et m'ont fait profiter de leurs conseils avisés.

Ces travaux n'auraient pas non plus pu aboutir sans l'aide, parfois ponctuelle, parfois continue, que m'ont apporté de nombreuses personnes au cours de ces trois ans et demi, qu'ils soient de l'IPGP ou d'ailleurs. Dans le désordre, je tiens donc à remercier Agnès Michel et Caroline Gorge, qui m'ont initié aux merveilles de la chromatographie ionique, Didier Jézéquel pour ses lumières en géochimie, Philippe Leroy, pour son aide en modélisation des phénomènes de polarisation électrochimiques, Elizabeth Keating et Hari Visvanathan du Los Alamos National Laboratory, qui m'ont accueilli dans leur équipe, et ont ainsi rendu possible une collaboration très fructueuse. Merci à l'équipe de la com de l'IPGP, toujours prompts à distribuer conseils et coups de mains, un GRAND merci à Frédérique Métzelard, grâce à qui les aspects administratifs qui accompagnent un thésard se sont révélés d'une simplicité déconcertante. Merci encore à tous les autres que j'ai pu oublier de citer ici.

De grands merci à tous mes camarades thésards pour tous les bons moments passés en votre compagnie, avec une mention spéciale pour Mr Giunta, camarade de balcon, camarade de café et surtout camarade de road trip. Merci à toi Caroline, pour ta bonne humeur permanente, et les chocolats et autres déliciosités refilés en douce. Merci à Alberto, Samuel, Nicolas, Clémentine, Antoine, Johanna pour les bières après le boulot, les Big Nights à San Francisco et ailleurs, et tout simplement le quotidien du labo. Je n'oublie pas non plus mes camarades de bureau, Vincent, Elodie, Cristian, et aujourd'hui Pierre. Très cool, à chaque fois, bonne ambiance, des co-bureaux exemplaires.

Mes pensées à la fin de ce travail de thèse se tournent également vers tous mes proches amis, qui m'ont toujours encouragé dans mon travail, et ont parfois subi mes sautes d'humeur avec brio, particulièrement lors de ces derniers mois délicats. Sabine, Julie, Romano, Chloe, la coloc de Nation et leurs extensions, avec une pensée particulière pour Guigui, perdu puis retrouvé grâce à cette thèse! Merci bien sur à mes colocs à moi, passés ou présents, en un seul bloc Fignol Elise Flo Pierrot Dada Anaïs Alex (et son aide pour résoudre des problèmes de topographie), votre compagnie à été des plus précieuses, chaque jour, et particulièrement après les journées difficiles. Enfin je réserve bien sur une ligne pour Fanny, qui plus que personne, à été le témoin de mes difficultés, de mes doutes, et de mes réussites, et qui, par ses encouragements, son affection et sa patience, a été d'un soutien ô combien précieux.

Enfin je tiens à remercier tout particulièrement mes parents, ainsi que mes frères et soeurs, qui m'ont toujours soutenu dans tous mes choix professionnels et personnels, sans que l'objectif final ne soit nécessairement en vue. Sans vous, rien de tout cela n'aurait été possible, cela va de soi, mais mérite toujours d'être dit et répété.

Table des matières

Résur	né			2	
\mathbf{Abstr}	act			3	
Table	des ma	atières		8	
Intro	duction	généra	le	16	
Chap	itre 1	Proble	ématique générale	18	
1	Probl	ématique	e du stockage géologique du CO ₂	20	
	1.1	Le cyc	le du carbone	20	
		1.1.1	L'élément carbone - Origines	20	
		1.1.2	Le carbone sur Terre	20	
		1.1.3	Le cycle du carbone	21	
		1.1.4	Perturbations du cycle du carbone	23	
	1.2	Le stoc	kage géologique du CO ₂	25	
	1.3	$\operatorname{Surveil}$	Surveillance des sites de stockage - détection des fuites 29		
		1.3.1	Risques liés aux fuites de CO_2	29	
		1.3.2	Principales causes et chemins préférentiels de fuite	30	
		1.3.3	Méthodes envisagées pour la détection et la quantification des		
			fuites	30	
2	Les n	Les méthodes géophysiques			
	2.1	Généralités			
	2.2	Principales méthodes géophysiques			
		2.2.1	Description générale	33	
		2.2.2	Application des méthodes géophysiques à la surveillance des		
			sites de stockage	36	
Chap	itre 2	Descr	iption des méthodes ERT et PP	38	
1	Tomo	graphie	de résistivité électrique (ERT)	40	
	1.1	Notion	de résistivité électrique	40	
		1.1.1	Eléments influençant la résistivité du sol	40	
		1.1.2	Résistivité d'un échantillon de géométrie connue	46	

		1.1.3	Cas d'un demi-espace homogène infini	47		
		1.1.4	Eléments théoriques pour la mesure de la résistivité d'un sol	47		
		1.1.5	Principe d'acquisition d'une tomographie de résistivité électrique.	53		
		1.1.6	Méthodes d'inversion	61		
2	Polar	Polarisation provoquée (PP)				
	2.1	Bref hi	storique de la méthode	63		
	2.2	Origine	es des signaux PP	65		
		2.2.1	Description de la double couche électrique	65		
		2.2.2	Polarisation d'électrode	67		
		2.2.3	Polarisation de la double couche électrique	68		
		2.2.4	Polarisation de membrane	69		
		2.2.5	Polarisation de Maxwell-Wagner	71		
		2.2.6	Phénomènes perturbateurs potentiels des mesures PP	72		
	2.3	Elémer	its d'électromagnétisme	76		
	2.4	Polaris	ation Provoquée Temporelle (PPT)	80		
		2.4.1	Principe - paramètres caractéristiques	80		
		2.4.2	Mise en œuvre sur le terrain \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots	82		
		2.4.3	Traitement des données	84		
		2.4.4	Exemples d'applications	85		
	2.5	Polaris	ation Provoquée Spectrale (PPS)	88		
		2.5.1	Principe - paramètres caractéristiques	88		
		2.5.2	Quelques modèles en PPS	92		
		2.5.3	Mise en œuvre sur le terrain \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots	96		
		2.5.4	Exemples d'applications	100		
Chapi	itre 3	ERT -	Etude en milieu contrôlé - Modélisation 1	104		
1	Résur	né des tr	avaux de Vieira (2013)	107		
	1.1	Présen	tation du dispositif expérimental	107		
	1.2	Config	urations d'électrodes optimale	109		
	1.3	Détails des paramètres expérimentaux				
	1.4	Résulta	ats des expériences de tomographie de résistivité électrique	115		
	1.5	Conclu	sion	121		
2	Modé	lisation o	les expériences	122		
	2.1	Dynam	ique d'un écoulement de gaz en milieu saturé	122		
		2.1.1	Introduction - Air sparging	122		
		2.1.2	Etat de l'art - écoulements diphasiques	123		
	2.2	Modéli	sation 3D : circulation du gaz et réponse électrique	126		
		2.2.1	Présentation du modèle	126		
		2.2.2	Modélisation de l'état initial	129		

		2.2.3 Modélisation de la circulation du gaz
		2.2.4 Calcul de la résistivité du milieu
	2.3	Conclusion
3	Etude	e de sensibilité des configurations d'électrodes $\dots \dots \dots$
	3.1	Classes de configurations $\ldots \ldots 154$
	3.2	Etude de sensibilité
	3.3	Etude des configurations spécifiques - protocoles alternatifs 161
	3.4	Conclusion
Chapi	tre 4	PPS - Etude en milieu contrôlé - Modélisation 178
1	Prote	coles expérimentaux
	1.1	Dispositif expérimental
		1.1.1 Instrumentation de la cuve
		1.1.2 Dispositif global $\ldots \ldots 182$
	1.2	Electrodes impolarisables
		1.2.1 Description des électrodes $\dots \dots \dots$
		1.2.2 Tests de conception $\ldots \ldots 186$
		1.2.3 Tests de mesures
		1.2.3.1 Comparaison avec des électro des métalliques 189
		1.2.3.2 Stabilité temporelle des mesures
		1.2.4 Conclusions
	1.3	Caractérisation des matériaux
		1.3.1 Description préliminaire
		1.3.2 Dispositif de mesure $\ldots \ldots 198$
		1.3.3 Mesures des propriétés hydrauliques
		1.3.3.1 Mesure de la porosité
		1.3.3.2 Mesure de la perméabilité à l'eau $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots 202$
		1.3.4Mesures des propriétés électriques203
		1.3.4.1 Déplacement miscible $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots 203$
		1.3.4.2 Calcul du facteur de formation $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots 206$
	1.4	Protocoles expérimentaux
		1.4.1Description des expériences
		1.4.2Procédure de remplissage de la cuve
		1.4.3 Mesures et prélèvements annexes pendant les expériences 211
2	Résul	tats
	2.1	Réponse PPS de l'état pré-injection
		2.1.1 Dépendance fréquentielle
		2.1.2 Influence de la conductivité de surface

2.2	Evolution de la réponse PPS au cours de l'expérience selon la gamme de				
	fréquer	nces $\ldots \ldots 215$			
	2.2.1	Evolution de la conductivité en quadrature σ''			
	2.2.2	Evolution de la partie réelle de la conductivité complexe 220			
	2.2.3	Evolution du déphasage			
2.3	Evolut	ion temporelle des paramètres PPS à haute fréquence			
	2.3.1	Sable de Fontainebleau - Injection de N $_2$			
	2.3.2	Sable carbonaté - Injection de N $_2$			
	2.3.3	Sable de Fontainebleau - Injection de CO_2			
	2.3.4	Sable carbonaté - Injection de CO_2			
	2.3.5	Amplitude des variations			
	2.3.6	Conclusions sur les résultats des mesures aux hautes fréquences 241			
2.4	Etude	de la transition entre la réponse PPS "moyennes fréquences" et			
	"haute	s fréquences"			
	2.4.1	Rupture de pente dans le spectre fréquentiel			
	2.4.2	Transition fréquentielle des variations - Dissolution $\ldots \ldots \ldots 243$			
	2.4.3	Apport du déphasage dans l'étude de la zone de transition 245			
	2.4.4	Transition fréquentielle des variations - Dissolution et désatura-			
		tion			
	2.4.5	Transition fréquentielle des variations - Chutes de désaturation. 248			
	2.4.6	Résumé des observations			
2.5	Conclu	sions $\ldots \ldots 251$			
Inter	prétation	- Modélisation - Discussions \hdots			
3.1	Interprétation des résultats aux moyennes fréquences $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots 252$				
	3.1.1	Conductivité complexe aux moyennes fréquences $\dots \dots \dots \dots \dots 252$			
	3.1.2	Discussion sur les propriétés électriques de surface du sable car-			
		bonaté et du sable de Fontainebleau			
	3.1.3	Implication sur l'interprétation des résultats observés aux moyennes			
		fréquences			
	3.1.4	Conclusions $\ldots \ldots 257$			
3.2	Modéli	sation de la réponse PPS			
	3.2.1	Modèle mécanistique			
		3.2.1.1 Présentation du modèle TLM			
		3.2.1.2 Résultats du modèle $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots 261$			
	3.2.2	Modélisation empirique			
		3.2.2.1 Construction du modèle empirique			
		3.2.2.2 Application du modèle empirique à la simulation d'une			
		expérience - code FEHM (LANL)			
	3.2.3	Conclusions			

	3.3	Discuss	ion sur les valeurs mesurées et modélisées aux hautes fréquences	. 281	
		3.3.1	Hautes valeurs de permittivité diélectrique	. 282	
		3.3.2	Effets instrumentaux	. 286	
		3.3.3	Conclusion	. 293	
	3.4	Conclus	sions	. 294	
Chapitre 5		Expéri	ences sur le terrain - ERT et PP	296	
1	Introd	luction -	site expérimental	. 298	
	1.1	Présent	ation du site d'étude	. 298	
	1.2 Etude préliminaire sur le site - Blanco et al., 2013				
	1.3	$\operatorname{Descrip}$	tion générale des protocoles expérimentaux	. 301	
2	Tomo	graphie d	le résistivité électrique - ERT Time lapse monitoring	. 303	
	2.1	Mesure	s préliminaires	. 303	
		2.1.1	Paramètres d'acquisition	. 303	
		2.1.2	Traitement des données - Inversion	. 304	
		2.1.3	Résultats	. 304	
	2.2	Suivi te	emporel lors d'une injection de CO_2	. 306	
		2.2.1	Protocole expérimental	. 306	
		2.2.2	Résultats	. 308	
		2.2.3	Discussion	. 312	
	2.3	Conclus	sions	. 313	
3	Polari	Polarisation provoquée temporelle			
	3.1	Dispositif de mesure			
	3.2	2 Mesures préliminaires			
		3.2.1	Paramètres d'acquisition.	. 315	
		3.2.2	Traitement des données	. 316	
		3.2.3	Inversion des données - Résultats	. 317	
	3.3	Discuss	ion sur l'origine de la zone de haute chargeabilité	. 318	
		3.3.1	Origine physique	. 318	
		3.3.2	Couplage électro-magnétique	. 319	
		3.3.3	Influence des électrodes et du protocole d'acquisition \ldots .	. 320	
	3.4	Etude r	néthodologique	. 322	
		3.4.1	Principe de l'étude	. 322	
		3.4.2	Résultats de l'étude	. 324	
		3.4.3	Conclusions	. 329	
	3.5	Suivi te	emporel de l'injection de CO_2	. 330	
		3.5.1	Protocole expérimental	. 330	
		3.5.2	Résultats	. 331	
		3.5.3	Interprétations	. 338	

	3.6	Estimat	ion d'un intervalle de confiance des variations \ldots \ldots \ldots \ldots	. 339	
		3.6.1	Description de la méthodologie	. 339	
		3.6.2	Résultats - interprétation	. 343	
	3.7	Conclus	ions	. 344	
4	Polarisation provoquée spectrale (PPS)			. 348	
	4.1	Dispositif de mesure			
	4.2	Mesures préliminaires			
		4.2.1	Sondage de résistivité électrique	. 348	
		4.2.2	Phases apparentes	. 351	
	4.3	Protoco	$les d'acquisition \dots \dots$. 353	
		4.3.1	Choix des configurations d'électrodes	. 353	
		4.3.2	Disposition des câbles en rectangle $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots$. 354	
		4.3.3	Planning des mesures	. 355	
		4.3.4	Paramètres d'acquisition	. 355	
	4.4	Résultat	ts	. 356	
		4.4.1	Mesures pré-injection	. 356	
		4.4.2	Inversion des mesures	. 358	
		4.4.3	Evolution du déphasage lors de l'injection de CO_2	. 358	
		4.4.4	Evolution de la résistivité apparente lors de l'injection de CO_2	. 360	
		4.4.5	Conclusions	. 361	
	4.5	Influenc	e du couplage électromagnétique	. 362	
		4.5.1	Modélisation des phénomènes de couplage électromagnétique .	. 362	
		4.5.2	Résultats de la modélisation	. 364	
	4.6	Influenc	e de la résistance de contact des électrodes	. 366	
		4.6.1	Protocole expérimental de l'étude	. 366	
		4.6.2	Résultats des acquisitions	. 367	
		4.6.3	Conséquences sur les résultats du suivi temporel de l'injection		
			de CO_2	. 369	
	4.7	Conclus	ions	. 370	
Conclu	sions e	et persp	ectives	372	
Bibliog	raphie			380	
Table d	les figu	ires		406	
Liste d	es tabl	leaux		430	

Introduction générale

Ce travail de thèse s'inscrit dans la problématique de la séquestration géologique du dioxyde de carbone (CO_2) . De nombreux groupes industriels et gouvernementaux voient dans cette solution technologique un moyen d'enrayer l'augmentation des concentrations atmosphériques en CO_2 d'origine anthropique. Afin de s'assurer de la viabilité du stockage sur de longues périodes de temps et de prévenir des impacts environnementaux, il est indispensable de mettre au point un réseau de surveillance efficace permettant de détecter, de localiser et de quantifier d'éventuels transfert de CO_2 hors de la zone de stockage. Dans cette étude, nous avons pour objectif d'apporter des éléments de réponse quant à la capacité des méthodes géophysiques électriques à participer à la constitution d'un tel réseau.

Dans le premier chapitre, nous présentons la problématique générale autour de laquelle s'est construite cette étude. Nous décrivons brièvement le fonctionnement du cycle terrestre du carbone ainsi que certains aspects techniques du procédé de stockage du CO_2 . Nous apporterons également quelques éléments permettant d'appréhender la place des méthodes géophysiques dans la surveillance de sites de stockage et celle des méthodes géo-électriques en particulier.

Dans le chapitre 2, nous présentons en détail les deux méthodes électriques sur lesquelles portent nos travaux : la tomographie de résistivité électrique et la polarisation provoquée. Nous décrivons les éléments théoriques de base et les principes physiques sur lesquels ces méthodes se sont développées, ainsi que les principales manières de les mettre en œuvre.

Le corps de nos recherches est ensuite organisé en trois chapitres distincts. Pour chacune des deux méthodes, nous étudions d'abord la problématique proposée sur des milieux simples, relativement homogènes, à travers des expériences en laboratoire d'échelle métrique, puis nous développons et appliquons des modèles adaptés afin d'élargir notre compréhension des phénomènes physiques impliqués. Les résultats de l'ensemble de ces travaux ont constitué un socle sur lequel nous nous sommes appuyés pour réaliser et interpréter au mieux des expériences à l'échelle du terrain.

Ainsi, le troisième chapitre de ce manuscrit présente tout d'abord les résultats d'une étude en milieu contrôlé réalisée par Vieira (2013) lors d'une précédente thèse réalisée au sein de notre laboratoire. Ces travaux étudient la réponse en résistivité électrique de milieux granulaires totalement saturés en eau, soumis à une injection de CO_2 gazeux. Nous présentons ensuite les travaux de modélisation que nous avons entrepris pour approfondir notre compréhension des phénomènes impliqués dans cette étude. Enfin, nous élargissons ces travaux à une étude portant sur la sensibilité des configurations d'électrodes utilisées au cours de ces expériences.

Dans le quatrième chapitre, nous présentons le développement et les résultats d'expériences en milieu contrôlé similaires à celles précédemment énoncées, au cours desquels nous avons cette fois étudié l'influence d'une injection de CO_2 sur des mesures en polarisation provoquée spectrale. A travers de nouveaux travaux de modélisation, nous proposons des éléments d'interprétation pour expliquer les résultats observés.

Dans le cinquième et dernier chapitre, nous présentons les résultats de trois expériences de terrain, consistant au suivi temporel d'une injection de CO_2 gazeux à faible profondeur dans un sol marneux, par la méthode de résistivité électrique, la méthode de polarisation provoquée spectrale et la méthode de polarisation temporelle. Nous appliquons alors les conclusions des études réalisées en milieux contrôlés à la compréhension et l'interprétation des résultats obtenus sur le terrain.

Chapitre 1

Problématique générale

1 Problématique du stockage géologique du CO₂

1.1 Le cycle du carbone

1.1.1 L'élément carbone - Origines

Le carbone est un élément chimique appartenant à la famille des cristallogènes. Son symbole est C, son numéro atomique 6 et sa masse atomique vaut 12,0107 u. Sa découverte est attribuée à Antoine Laurent de Lavoisier (1743-1794), célèbre savant français particulièrement connu pour ses travaux de chimiste, et considéré par certains comme le père de la chimie moderne. En simplifiant à l'extrême ses travaux, Lavoisier observe que les réactions de combustion du diamant, du graphite et du charbon produisent toutes un gaz identique, à l'époque connu sous l'appellation « air fixe » (en réalité le dioxyde de carbone : CO_2) et en déduit que ce gaz dérive d'un élément commun à la composition de ces trois solides. Le 18 avril 1787, Guyton de Morveau présente à l'assemblée publique de l'Académie des Sciences la « Nouvelle Méthode de Nomenclature Chimique », qu'il a rédigé de concert avec Antoine de Lavoisier, François Fourcroy et Claude Louis Berthollet. Parmi les nombreuses propositions formulées et argumentées dans ce mémoire, on peut notamment lire à la page 44 de ce rapport :

« Quand on a vu former l'air fixe par la combinaison directe du charbon & de l'air vital (dioxygène), à l'aide de la combustion, le nom de cet acide gazeux n'est plus arbitraire, il se dérive nécessairement de son radical, qui est la pure matière charbonneuse, c'est donc l'acide carbonique, ses composés avec bases sont des carbonates ; &, pour mettre encore plus de précision dans la dénomination de ce radical, en le distinguant du charbon dans l'acception vulgaire, en l'isolant, par la pensée, de la petite portion de matière étrangère qu'il recèle ordinairement, & qui constitue la cendre, nous lui adaptons l'expression modifiée de carbone, qui indiquera le principe pur, essentiel du charbon, & qui aura l'avantage de le spécifier par un seul mot, de manière à prévenir toute équivoque. »

Voici donc comment cet élément aujourd'hui familier du grand public obtint son nom, carbone, du latin carbo, -onis : le charbon.

1.1.2 Le carbone sur Terre

Le carbone n'est pas l'élément le plus abondant sur Terre. Il est placé au seizième rang d'abondance, très loin derrière l'hydrogène H, l'hélium He et l'oxygène O. Il possède cependant des propriétés géométriques et chimiques très particulières, qui en font un élément à part au sein de la chimie terrestre. Le carbone possède 4 électrons sur sa couche de valence, caractéristique qui lui permet de former des structures moléculaires à trois dimensions, sous la forme d'un tétraèdre dont l'atome de carbone occupe le centre, et quatre atomes liés occupent les sommets. La carbone permet donc la formation de structures moléculaires extrêmement variées. On connait aujourd'hui à peu près 10 millions de substances carbonées différentes, ce qui ne représente qu'une petite partie des molécules que cet élément est capable de former.

Ce sont probablement ces caractéristiques électroniques, couplées à une réactivité adaptée, qui ont permis au carbone de devenir l'élément de base dans toutes les structures moléculaires qui composent les organismes vivants. Son importance dans le développement de la vie sur Terre est telle que la chimie du carbone est aujourd'hui appelée, y compris dans la communauté scientifique, chimie organique.

On peut décrire la répartition de l'élément carbone sur Terre selon 4 réservoirs distincts :

- La lithosphère, qui correspond à l'ensemble croûte terrestre/manteau supérieur, est le réservoir principal. Le carbone y est présent majoritairement sous forme de calcaire (CaCO₃), à hauteur de 80.10⁶ Gigatonnes, et sous forme de matière organique fossile (charbon, pétrole, gaz), à hauteur de 27000 Gigatonnes.
- Le réservoir secondaire est l'hydrosphère, qui concentre approximativement 39000 Gt de carbone. On l'y trouve principalement sous forme de dioxyde de carbone (CO₂) dissout, c'est-à-dire sous forme d'ions HCO₃⁻ majoritairement, ou d'ions CO₃²⁻ en moindre proportion.
- 3. La biosphère donc, où le carbone est présent dans l'ensemble des structures moléculaires qui composent le vivant. Ce réservoir est estimé à 600 Gigatonnes. On peut également inclure dans ce réservoir les sols et détritus issus de l'activité des êtres vivants qui représentent 2400 Gt de carbone.
- 4. L'atmosphère est généralement considérée comme appartenant à l'hydrosphère (l'atmosphère contient à peu près 100 fois plus d'eau que l'ensemble des fleuves et rivières de la planète), mais du point de vue du cycle du carbone, son rôle particulier amène généralement les auteurs à considérer l'atmosphère comme un réservoir à part. L'élément carbone s'y trouve sous la forme du bien connu dioxyde de carbone (CO₂). On estime la masse totale de carbone contenue dans l'atmosphère à 770 Gt, ce qui en fait le réservoir le plus réduit des 4.

1.1.3 Le cycle du carbone

L'élément carbone transite donc entre ces 4 réservoirs sous différentes formes moléculaires, au travers de différents processus physico-chimiques ou biologiques. Les problématiques liées à l'augmentation de la concentration en CO_2 dans l'atmosphère ont conduit la plupart des scientifiques à considérer l'atmosphère comme le réservoir de référence dans le cycle du carbone. En adoptant ce point de vue, les trois autres réservoirs peuvent alternativement être considérés comme des *sources* de carbone ou des *puits* de carbone selon que les processus physico-chimiques ou biologiques d'échange du carbone tendent à augmenter ou à diminuer la concentration en CO_2 dans l'atmosphère.

Echanges Atmosphère-Biosphère

Les échanges de carbone entre l'atmosphère et la biosphère sont d'ordre biologique. Certains éléments de la biosphère, comme les plantes, les algues, ou les cyano-bactéries sont capables de transformer le CO_2 atmosphérique en substances organiques énergétiques (glucides) avec le concours de l'énergie solaire. Ce processus biochimique, connu sous le nom de photosynthèse, réduit donc la concentration en CO_2 atmosphérique. La respiration des être vivants, elle, produit l'effet inverse. Le processus de respiration concerne la très grande majorité des organismes. De façon générale, l'énergie requise pour alimenter l'activité cellulaire est obtenue par la dégradation de molécules organiques par l'oxygène. Cette libération d'énergie est accompagnée d'une production de dioxyde de carbone.

La photosynthèse et la respiration sont les deux processus d'échanges principaux entre l'atmosphère et la biosphère. On estime que la photosynthèse absorbe à peu près 62 Gt/an de carbone atmosphérique, alors que la respiration rejette du CO_2 à un taux inférieur : 60 Gt/an. La biosphère est donc censée se comporter comme un puits de carbone. Toutefois, c'est sans compter sur certains aspects de l'activité humaine, notamment la déforestation, que l'on estime responsable d'un rejet d'à peu près 1,9 Gt/an de carbone dans l'atmosphère, qui viennent affaiblir les capacités de la biosphère à se comporter comme un puits de carbone atmosphérique.

Echanges Atmosphère-Hydrosphère

Le dioxyde de carbone est soluble dans l'eau. Des échanges gazeux sont donc possibles entre l'hydrosphère et l'atmosphère. En soi, ces deux réservoirs tendent à être à l'équilibre chimique. Si les concentrations en carbone augmentent ou diminuent dans l'un des réservoirs, l'évolution du système vers l'équilibre chimique produira le même effet dans l'autre réservoir. Cet équilibre dépend entre autres de la température, de la concentration en minéraux et du pH de l'eau. Les variations locales de ces paramètres sont responsables d'échanges de carbone entre les deux réservoirs dans les deux sens. On parle de dégazage et de dissolution. Le bilan net de ces échanges fait de l'hydrosphère un puits de carbone, car les processus de dissolution sont plus importants que les processus de dégazage.

Echanges Atmosphère-Lithosphère

Les transferts directs de carbone entre entre ces deux réservoirs sont presque exclusivement le fait des rejets dans l'atmosphère de CO_2 issu de l'activité volcanique, qui représente une source de carbone de l'ordre de 0,1 Gt/an. D'aucuns pourraient également considérer que la combustion des ressources carbonées fossiles par les sociétés humaines (émettrice de 5 à 6 Gt/an de carbone dans l'atmosphère) soit inclue dans le bilan d'échange atmosphère/lithosphère, alors que d'autres pourraient attribuer cette source de CO_2 à l'activité d'une partie de la biosphère.

Echanges Hydrosphère/biosphère-Lithosphère

Nous avons vu que la biosphère terrestre absorbait du CO_2 atmosphérique à travers le processus de photosynthèse. La biosphère marine, elle, absorbe aussi une partie du CO_2 dissout dans l'hydrosphère. Par photosynthèse d'une part, réalisée majoritairement par le phyto-plancton et les algues, mais également lors de la formation de carbonate de calcium $CaCO_3$ qui compose l'ensemble des coquilles et squelettes des organismes marins.

Pour la biosphère marine comme pour la biosphère terrestre, la fossilisation des matières organiques issues des organismes morts constitue un apport en carbone vers la lithosphère. Ce processus de transformation est très long, de l'ordre de plusieurs millions d'années. La biosphère marine est également responsable d'un autre apport en carbone vers la lithosphère : la "sédimentation océanique". De très nombreux organismes marins ont une coquille ou un squelette composé de carbonate de calcium $CaCO_3$, formé à partir du calcium et du CO_2 dissout dans l'eau. Quand ces organismes meurent, tous ces éléments sédimentent au fond des océans, pour finalement former des roches sédimentaires calcaires qui seront intégrées à la lithosphère.



Cycle du carbone

---->Intervention humaine

FIGURE 1.1 – Représentation schématique des principaux transferts de carbone entre les différents réservoirs. Les flux conséquents à l'activité humaine sont représentés par des flèches en pointillés. Extrait de Wikimediacommons. Auteur : Bendeck.

```
http://commons.wikimedia.org/wiki/File:Cycle_du_carbone2.svg
```

1.1.4 Perturbations du cycle du carbone

Le cycle biogéochimique du carbone sur Terre implique donc des interactions nombreuses et variées entre les différents réservoirs. Des variations significatives à un niveau ou à un autre de cette chaîne complexe entraîne nécessairement des modifications sur l'ensemble du cycle, à des échelles de temps plus moins grandes. Ainsi depuis plusieurs décennies, la concentration en CO_2 dans l'atmosphère augmente continuellement (figure 1.2). Le 3 mai 2013, les capteurs de l'observatoire Mauna Loa, à Hawaï, ont enregistré un dépassement du seuil symbolique des 400 ppm (parties par millions) de CO_2 dans l'atmosphère, en surface. Il est estimé que cette concentration était globalement stable autour de 280 ppm il y a approximativement 150 ans, à l'aube de l'ère industrielle.



FIGURE 1.2 – Evolution de la concentration en CO₂ dans l'atmosphère mesurée à l'observatoire Mauna Loa à Hawaï. Graphique extrait et modifié à partir du site de l'ESRL (Earth System Research Laboratory). http://www.esrl.noaa.gov/

Une grande partie de la communauté scientifique s'accorde sur l'origine anthropique de cette augmentation de la concentration en CO_2 atmosphérique. Les activités humaines depuis le début de l'ère industrielle sont responsables d'importants rejets de CO_2 notamment à travers la combustion des énergies fossiles, sous toutes ses formes (procédés industriels, production d'électricité, transports etc...). La déforestation par le feu provoque également un transfert d'une grande importance, direct, du carbone composant la matière végétale vers l'atmosphère. En outre, la déforestation dans sa globalité réduit la capacité de la biosphère végétale à se comporter comme un puits de carbone. Le cycle du carbone est donc nécessairement perturbé par cette augmentation brusque de la concentration en CO_2 atmosphérique.

En tant que gaz participant à l'effet de serre, le CO_2 qui s'accumule dans l'atmosphère est partiellement responsable du réchauffement climatique observé ces dernières décennies (figure 1.3) et des conséquences sur l'environnement qui lui sont associées (e.g., le réchauffement et l'acidification des océans, la réduction de la cryosphère, l'augmentation du niveau des océans).

Son accumulation à également une incidence particulière sur la chimie des océans. Davantage de CO_2 sous forme gazeuse dans l'atmosphère implique une augmentation de la quantité de CO_2 dissout dans les océans, lequel phénomène s'accompagne d'une diminution du pH des eaux. Depuis 250 ans, le pH des eaux superficielles des océans aurait ainsi diminué d'environ 0,1 unité pH (Jacobson, 2005). Un certain nombre d'études ont montré que l'acidification des océans pourrait avoir des effets néfastes sur la biosphère marine (e.g., Munday et al., 2010),

Observed change in surface temperature 1901-2012



FIGURE 1.3 – Cartographie des variations de la température de surface observées de 1901 à 2012. Les variations sont représentées uniquement lorsque la disponibilité des données permet une estimation suffisamment robuste. Dans le cas contraire les cases sont blanches. Les signes + indiquent les zones où la variation est supérieure à 10%. Extrait du dernier rapport du GIEC (Stocker et al., 2013)

notamment pour les espèces dont le développement est basé sur des réactions de précipitation de solides carbonatés (Orr et al., 2005).

1.2 Le stockage géologique du CO₂

Une des solutions proposées pour enrayer l'augmentation de la concentration en CO_2 dans l'atmosphère est la séquestration (ou stockage) géologique du CO_2 . Le concept s'adresse principalement aux unités industrielles fortement émettrices de CO_2 (usines diverses, raffineries, centrales électriques fonctionnant au charbon etc...). L'ensemble du procédé est composé de trois phases principales : le captage, le transport et le stockage proprement dit (figure 1.4).

1. Le captage : La séparation du CO_2 des autres éléments contenus dans les rejets gazeux est une étape primordiale dans le cycle de stockage du CO_2 . Elle permet en premier lieu de s'assurer du stockage d'un $CO_2 \ll pur \gg$, donc sans impuretés ou polluants, et donc d'un certain contrôle environnemental. Dans le cas des fumées de combustion, majoritairement composées de vapeur d'eau et d'azote (seulement 3% à 15% de CO_2), la séparation permet de réduire les quantités de gaz à comprimer et à acheminer vers le puits d'injection. Les coûts de transport se trouvent donc réduits. Enfin, injecter uniquement du CO_2 permet d'optimiser les capacités de stockage du site.

Pour certaines activités, le captage du CO_2 est déjà inclus dans le processus industriel. La production de gaz naturel par exemple, nécessite la séparation des flux de gaz des flux de CO_2 prélevés conjointement dans le sous-sol, car la teneur en CO_2 du gaz commercialisé doit être très faible. Des processus de séparation sont également nécessaires pour les usines productrices d'hydrogène ou d'ammoniac (raffineries et usines de fertilisants).



FIGURE 1.4 – Représentation schématique des étapes de captage, de transport et de stockage, qui composent le processus de séquestration géologique du CO₂. (IFP/BRGM/ADEME).

Il existe trois procédés principaux de captage du CO_2 (figure 1.5). La post-combustion consiste à extraire le CO_2 à l'aide d'un solvant chimique. Bien que coûteux, c'est le procédé le plus utilisé actuellement car il est assez facilement applicable à tout type de structure industrielle. La précombustion consiste à traiter le combustible (pétrole, charbon etc...) en amont de son utilisation. En le gazéifiant dans un réacteur en présence d'air, de vapeur d'eau et d'oxygène, on produit un gaz synthétique composé uniquement de monoxyde de carbone (CO) et de dihydrogène (H₂). En faisant réagir ce « syngaz »avec de l'eau dans un réacteur de conversion, on obtient un mélange de CO_2 et de dihydrogène, lesquels sont facilement séparables. Le dihydrogène est alors utilisé comme combustible "propre", et le CO_2 est récupéré avant combustion. Enfin, la technique d'oxycombustion consiste à utiliser comme comburant non pas de l'air mais du dioxygène pur. On génère ainsi des fumées contenant essentiellement du CO_2 et de l'eau, facilement séparables par condensation de l'eau. Cette technique, encore en développement, est prometteuse car elle présente de faibles coûts, des besoins en énergie réduits, et peut être installée sur n'importe quel type d'unité industrielle.

2. Le transport : Le transport du CO_2 par gazoduc est déjà bien développé aux Etats-Unis, où approximativement 40 millions de tonnes sont transportées chaque année à travers un réseau de conduites de 2500 km. Dans ce cas, le CO_2 est généralement transporté sous forme gazeuse, comprimé jusqu'à une pression minimale de 74 bars à laquelle il atteint l'état supercritique, et possède alors une densité élevée, proche de celle des liquide, qui le dote d'une capacité de transport importante sans problématiques liées aux changements de phase. Le transport réfrigéré de CO_2 sous forme liquide par gazoduc est également en développement. C'est également sous forme liquide que le CO_2 est transporté par navires, méthode qui peut s'avérer plus économique pour les longues distances de transport.



FIGURE 1.5 – Représentation schématique des trois principales techniques de captage du CO₂. Extrait du rapport 2005 du GIEC.

A priori, le transport de CO_2 par gazoduc ne devrait pas être une technologie trop difficile à maîtriser, étant donné les compétences déjà acquises dans le transport de gaz naturel, dont la nature inflammable complique sensiblement la mise en œuvre. Aujourd'hui, les principaux axes de recherche concernent l'adaptation des matériaux au transport de flux de CO_2 supercritique, les effets accidentels liés à la perte de confinement d'une canalisation de transport, ainsi que les méthodes et équipements de surveillance des réseaux de transport.

3. Le stockage :

Il existe différents types de sites potentiels pour le stockage proprement dit du CO_2 . Les principaux sont représentés sur la figure 1.6. Pendant un temps, la communauté scientifique a également envisagé de stocker du CO_2 compressé à l'état liquide dans les profondeurs océaniques. Cependant, le caractère ouvert du réservoir (en contact direct avec l'atmosphère), et les potentiels dommages environnementaux sur la faune et la flore sous-marines ont rapidement mené au rejet de cette option.

Le stockage géologique en aquifère salin : ce mode de stockage est celui qui présente le plus grand volume d'accueil potentiel (Bentham and Kirby, 2005). Le mécanisme de piégeage impliqué est la dissolution du CO₂ dans l'eau. Les phénomènes de dissolution augmentent la densité de l'eau, si bien que l'eau chargée en CO₂ dissout va tendre à s'accumuler au fond de l'aquifère, améliorant la pérennité du stockage. De par leur nature très saline et leur profondeur, ces aquifères sont totalement inadaptés en tant que ressources en eau potable ou en eau d'irrigation, et sont donc des cibles intéressantes. En France, nous utilisons déjà des aquifères salins "fermés" pour stocker le gaz naturel (Le Thiez and Rojey, 2007). Ces derniers présentent de bonnes capacités de confinement et constituent



FIGURE 1.6 – Représentation schématique des principales formations géologiques envisagées pour stocker du CO_2 . Modifié d'après le site http://chercheurs.edf.com/.

une option de stockage relativement sûre. Dans des aquifères "ouverts", pour lesquels il n'y a pas de confinement latéral, le CO_2 peut éventuellement migrer. Cependant, les vitesses d'écoulement son généralement très lentes, ce qui limite les risques liés à la diffusion trop rapide d'un éventuel panache de CO_2 à travers la nappe. À tire d'exemple, la vitesse de Darcy horizontale du Dogger en région parisienne (aquifère calcaire situé entre 1600 et 1800 mètres de profondeur) est approximativement de 0,33 m/an (Contraires, 2008).

Le stockage géologique en réservoirs épuisés : ces types de formations géologiques sont d'excellents candidats au stockage du CO₂. En premier lieu, en tant que réservoirs d'hydrocarbures, leur capacité de confinement est bonne et surtout stable sur les échelles de temps nécessaires à la formation des hydrocarbures (jusqu'à plusieurs millions d'années). En outre, ces réservoirs ont souvent été bien caractérisés lors de la phase d'exploration précédant l'exploitation du gisement.

Certaines compagnies pétrolières utilisent également le CO_2 comme un moyen d'améliorer la récupération de pétrole et / ou de gaz dans des réservoirs en fin de vie. En effet, le CO_2 diminue la viscosité du pétrole, améliore sa mobilité et facilite donc sa récupération. Ce type de technique combinant stockage de CO_2 et production d'hydrocarbures est généralement nommée "Enhanced Oil Recovery" (e.g., Bergman et al., 1997).

• Le stockage géologique en veines de charbon non exploitées : si la veine de charbon en question est trop profonde pour être exploitée, on peut envisager d'y stocker du CO₂ car le charbon possède des capacités d'adsorption plus importantes avec le CO₂ qu'avec le

méthane, naturellement présent dans ces veines. Dans ce type de gisements, le stockage du CO_2 pourrait donc s'accompagner d'une récupération de méthane, ajoutant un attrait économique supplémentaire au projet de stockage. Cependant, un des paramètres sensibles de ce type de formations géologiques est leur faible perméabilité. L'injection de grandes quantités de CO_2 , sans multiplier outre mesure le nombre de puits d'injection reste le problème majeur de ce mode de stockage.

- Séquestration minérale : le mode de stockage par séquestration minérale repose sur l'idée que le CO₂ soit injecté dans un environnement avec lequel il pourrait interagir chimiquement, afin de précipiter sous forme de carbonates solide. Ce mode de séquestration est celui qui présente le plus de sûreté en terme de fuites potentielles. Cependant, son application nécessite une excellente connaissance des processus réactifs de dissolutionprécipitation et de l'impact de ces derniers sur les caractéristiques hydro-dynamiques de la zone d'injection, sur les capacités d'écoulement du CO₂ injecté, et donc sur les l'évolution des capacités de stockage.
- Autres options : Enfin, plus récemment, et à un stade encore de recherche, le CO₂ est envisagé comme moyen d'optimiser la récupération de schistes bitumineux, notamment pour remplacer une partie de l'eau injectée pour fracturer la roche et / ou pour optimiser la récupération de l'hydrocarbure, comme dans le cas de la technique de récupération assistée de pétrole citée précédemment.

1.3 Surveillance des sites de stockage - détection des fuites

Dans toute problématique impliquant le stockage d'un élément potentiellement polluant, la question de la détection des fuites est primordiale, principalement pour prévenir la dispersion non contrôlée du polluant en question dans l'environnement. Dans le cas du CO_2 , cette question est d'autant plus importante que si des fuites significatives vers la surface se produisent, l'efficacité du projet de stockage est remise en cause puisque le CO_2 est à terme rejeté dans l'atmosphère. De nombreux éléments présentés dans cette section sont issus rapport technique co-écrit par Korre et al. (2012).

1.3.1 Risques liés aux fuites de CO₂

Un certain nombre de risques peut être associé à des fuites de CO_2 . On peut craindre des effets directs induits par de hautes concentrations en CO_2 dans l'atmosphère à l'aplomb du site de stockage. Selon l'ampleur de ces concentrations, l'impact potentiel sur la santé et l'environnement est variable. Cependant, le CO_2 étant plus dense que l'air, une fuite importante et très localisée peut produire une accumulation dans des vasques géologiques, avec des conséquences potentiellement mortelles pour les êtres vivants dans la zone.

L'impact de la dissolution du CO_2 sur la chimie des eaux souterraines est également à prendre en compte. L'acidification des eaux par la dissolution du CO_2 peut conduire à la

dissolution de minéraux solides et potentiellement favoriser la mobilisation de métaux lourds toxiques dans l'eau (e.g., Lu et al., 2010).

Un autre type de risque lié au stockage géologique du CO_2 concerne les effets conséquents au déplacement des fluides initialement présents dans la formation géologique dans laquelle le CO_2 est injecté (pétrole, gaz, saumure). Les mouvements de ces fluides induits par l'arrivée massive de CO_2 peuvent alors être d'autre sources potentielles de contamination d'aquifères ou de pollution en surface.

1.3.2 Principales causes et chemins préférentiels de fuite

La plupart des méthodes de piégeage du CO_2 envisagées requiert la présence d'un toit géologique de très faible perméabilité à l'aplomb de la zone d'injection, permettant le confinement vertical du panache de CO_2 injecté. Ce toit est communément appelé « caprock ». Ainsi, les fuites de CO_2 peuvent résulter d'un caprock inefficace, qui ne parvient pas à contenir le panache de CO_2 injecté. Le caprock peut être endommagé et présenter en conséquence des zones de circulation préférentielles de haute perméabilité, ou être simplement absent à l'aplomb d'une partie de la zone de stockage effective.

Les failles et fractures sont également des chemins de circulation préférentiels des fluides et donc des zones de fuites potentielles pour le CO_2 injecté. Ainsi les failles naturelles, initialement présentes dans la zone doivent être particulièrement surveillées. En outre, le réseau de failles et de fracture peut également être amplifié par les phénomènes de sismicité induits par l'injection de CO_2 proprement dite, ou par tout type d'événements sismiques se produisant dans les alentours de la zone de stockage.

Des fuites peuvent également se produire à cause de chemins préférentiels d'origine humaine. En premier lieu, le puits d'injection du CO_2 se doit de présenter une résistance très importante à des environnements riches en CO_2 , sans quoi des fuites peuvent se produire le long du puits. Pour des projets ayant lieu aux alentours de zones précédemment exploitées par l'industrie pétrolière ou gazière, les puits pré-construits lors de l'exploitation sont également des éléments à surveiller de près, puisqu'ils constituent un chemin de circulation préférentielle direct des profondeurs vers la surface. Enfin, des chemins de circulation préférentielle peuvent également être créés par des activités anthropiques de type exploitation minière, ou plus généralement toute activité humaine impliquant le creusement de galeries et l'induction de sismicité proche de la zone de stockage.

1.3.3 Méthodes envisagées pour la détection et la quantification des fuites.

Environnement aquatique

Lorsque la formation géologique ciblée est située sous un environnement aquatique, une méthode de détection envisagée des fuites repose sur la détection des bulles résultant du transfert de CO₂. On utilisera alors généralement des techniques de types sonar permettant d'étudier la réflexion acoustique produite par les bulles. En environnement marin, il a également été démontré que les fuites de CO_2 pouvaient résulter en la formation de "pockmarks" à la surface de la couche sédimentaire (Hovland et al., 2002), que l'on peut décrire comme des dépressions coniques de diamètre variable (entre 1 cm et 1 m), qui se forment au fond de l'océan suite à l'échappement d'un gaz à travers la couche sédimentaire. Avec ce constat, la détection d'éventuelles fuites passe par la détection de telles structures, et requiert généralement l'utilisation de techniques d'imagerie des fonds marins. Enfin, effectuer des analyses géochimiques sur la colonne d'eau surplombant le site d'injection est également un moyen potentiel de détection des fuites. On s'intéresse alors aux variations de pH, aux concentrations en gaz dissout, mais également aux concentrations en éléments dissouts que l'on peut associer au mouvement des eaux profondes (vers la surface) induits par la fuite de CO_2 .

Surveillance atmosphérique

La détection de fuites par des méthodes de mesures atmosphériques est délicate à mettre en œuvre d'une part parce que le CO_2 se disperse généralement rapidement dans l'atmosphère, et d'autre part parce que les mesures de flux de gaz émis par les sols doivent également prendre en compte les émissions de CO_2 naturelles. La respiration de la biomasse située dans la prochesurface produit des flux de CO_2 caractérisés par des variations diurnes, et qui peuvent être potentiellement élevés. L'analyse de la composition isotopique des gaz prélevés en surface peut constituer un moyen de discerner l'origine des flux de CO_2 observés.

Surveillance des éco-systèmes

Il est également envisageable de détecter d'éventuelles fuites de CO_2 en surveillant l'état du manteau de végétation à l'aplomb du site de stockage (Govindan et al., 2011). Cette technique nécessite cependant d'être appliquée avec une discrétisation temporelle suffisante, car les changements induits par les nouvelles conditions atmosphériques provoquées par la fuite de CO_2 sont rapides. Au delà d'un certain temps et d'un certain débit de CO_2 le manteau de végétation ne présentera plus de changements notables.

Surveillance en proche surface

L'utilisation de méthodes géophysiques est également envisagée pour détecter les transferts de CO_2 dans la sub-surface. L'objectif est de suivre les variations temporelles des observables géophysiques propres à chaque méthode. L'utilisation de méthodes géophysiques comme moyen de surveillance à long terme nécessite donc une très bonne caractérisation de l'évolution annuelle, mensuelle et quotidienne des observables géophysique lors de la période pré-injection, afin de pouvoir discerner les variations « naturelles »des variations induites par une fuite de CO_2 . Parmi les méthodes envisagées, les mesures gravimétriques sont théoriquement capables de caractériser des volumes de gaz de l'ordre de quelques centaines de tonnes de CO_2 , selon le degré de saturation en eau de la subsurface. Ces méthodes ont déjà montré un potentiel intéressant pour la surveillance du panache de CO_2 en profondeur (Alnes et al., 2008), mais n'ont pas encore été appliquées à notre connaissance à la détection de flux de CO_2 dans la sub-surface.

Les méthodes électromagnétiques (EM) font également partie des options envisagées. Un intérêt particulier est porté aux méthodes aéroportées, qui ont démontré depuis plusieurs années leur potentiel à caractériser structurellement des aquifères et à fournir des informations sur la qualité des eaux souterraines (Siemon et al., 2009).

2 Les méthodes géophysiques

2.1 Généralités

Parmi les nombreuses disciplines qui composent les sciences de la Terre, la géophysique consiste en l'utilisation de méthodes quantitatives physiques pour obtenir des informations sur la constitution géologique de notre planète. Tous les matériaux terrestres, de par leur composition et leur agencement structurel possèdent des caractéristiques physiques spécifiques. Le géophysicien travaille à discerner spatialement dans le sous-sol les contrastes liés à ces caractéristiques et à assembler les informations obtenues pour produire un modèle géologique du système étudié.

Concrètement, ces méthodes peuvent être actives. Le géophysicien génère un champ physique dans le sol (e.g., champ magnétique, champ électromagnétique, ondes sismiques etc..) et étudie son comportement, la façon dont il se propage, et tente d'en déduire des informations spatialisées sur la composition et la structure du sous-sol. D'autres méthodes sont dites passives. Le géophysicien étudie alors les champs physiques naturellement produits sur Terre (e.g., champ de gravité, champ magnétique terrestre, champs électromagnétiques orageux etc...) et s'attache à discerner des variations au sein de ces champs pour en déduire des informations sur la composition et la structure géologique du sous-sol.

Géophysique appliquée

On désigne généralement par l'expression *géophysique appliquée* les sous-domaines de la géophysique qui s'intéressent majoritairement aux couches externes de la Terre, et que l'on peut mettre en relation avec des applications concrètes liées à des besoins ou des activités humains.

Un premier domaine d'application concerne la *prospection de ressources naturelles*. Aujourd'hui, la géophysique est probablement majoritairement utilisée pour la recherche et la caractérisation de réservoirs d'hydrocarbures. Les géophysiciens s'intéressent aussi à la détection et à la caractérisation de gisements miniers. Le fer, le nickel, le cuivre mais aussi l'uranium sont par exemple des minéraux très recherchés. Enfin, les ressources hydriques sont également une cible privilégiée. Le géophysicien s'attache alors à déterminer l'extension géométrique et les caractéristiques dynamiques des aquifères.

La géophysique de sub-surface, qui s'intéresse uniquement à l'étude des cents premiers mètres de la croûte terrestre, regroupe entre autres les *applications géotechniques*, liées à l'étude des sols pour leur aménagement et/ou leur exploitation lors d'ouvrages techniques (bâtiments, génie civil etc...) avec généralement une focalisation particulière sur la prévention de risques naturels (inondations, glissements et affaissements de terrain etc...). Les géophysiciens de subsurface s'intéressent bien entendu à la caractérisation des *ressources hydriques* souterraines et à leur exploitation. Ils sont également de plus en plus sollicités pour répondre à des *problématiques environnementales*, telles que la détection et le suivi de panaches de polluants souterrains, mais aussi l'étude de l'évolution des processus de décontamination des sols.

Enfin on peut également citer conjointement l'application de la géophysique à l'étude, la compréhension et la prédiction de phénomènes environnementaux importants (à l'échelle de la présence humaine sur Terre) tels que les séismes, les volcans ou encore la géothermie.

Les autres facettes de la géophysique

Les méthodes géophysiques permettent également d'approfondir nos connaissances sur le fonctionnement global de notre planète. On utilise par exemple les méthodes sismiques pour étudier la structure interne de la Terre, les différentes enveloppes qui la composent (Croûte, Manteau, Noyau), leur composition respective et les interactions qui les relient. Le paléo-magnétisme lui, concerne l'étude dans les roches de l'aimantation rémanente des minéraux ferrifères, dans le but d'obtenir des informations sur l'évolution du champ magnétique terrestre. Cette discipline est notamment le socle sur lequel s'est construit la théorie de la dérive des continents. La géodésie quant à elle, concerne l'étude de la forme et des dimensions de la Terre, principalement en étudiant le champ de pesanteur.

Beaucoup de méthodes géophysiques sont également appliquées à la compréhension et à l'étude des autres planètes qui composent notre système solaire. Par exemple, avec la multiplication des projets spatiaux à destination de Mars, de plus en plus de méthodes géophysiques sont appliquées à la compréhension de la structure interne et externe de notre planète voisine (e.g., projet Netlander, supervisé par le CNES).

2.2 Principales méthodes géophysiques

2.2.1 Description générale

Il existe de nombreuses techniques d'investigation géophysique. Chaque méthode s'attache à étudier un paramètre physique particulier.

Méthodes sismiques

Les méthodes sismiques permettent d'imager des formations géologiques à des grandes profondeurs (≈ 10 km), et sont ainsi particulièrement utilisées pour la prospection pétrolière et gazière. Elles sont basées sur l'étude de la propagation des ondes sismiques dans le sol. L'amplitude et la vitesse de propagation de ces ondes dépendent de la densité et des propriétés élastiques des matériaux dans lesquels elles se propagent.

Concrètement, ces méthodes consistent à générer une onde sismique suffisamment énergétique dans le sol, généralement à l'aide d'explosifs ou de camions vibrants, et à mesurer l'amplitude et le temps d'arrivée des ondes réfléchies au niveau des interfaces géologiques via un réseau de capteurs sismiques suffisamment étendu (géophones, accéléromètres). Il existe différents processus de mise en œuvre, d'acquisition et de traitement des données (sismique réflexion, sismique réfraction etc..). In fine, ces méthodes permettent de visualiser les interfaces séparant deux milieux de composition différentes, i.e., d'obtenir des informations sur la localisation et l'extension d'hétérogénéités géologiques.

Méthodes magnétiques

La magnétométrie est une méthode passive, qui consiste à mesurer les variations du champ magnétique terrestre. On s'intéresse particulièrement aux anomalies induites sur le champ magnétique par la présence de corps aimantés. Cette méthode permet la détection de masses métalliques enfouies dans le sous-sol, et est donc par exemple utilisée pour la détection de tuyaux lors de problématiques de travaux publics, ou la localisation de bidons enfouis, ou encore en archéologie. La magnétométrie est également utilisée en prospection minière, puisque les gisements suffisamment concentrés en minéraux, notamment ferriques, induisent localement des variations significatives sur le champ magnétique terrestre (Nabighian et al., 2005).

Méthodes gravimétriques

La gravimétrie est également une méthode passive. Elle consiste en l'étude des variations du champ de pesanteur. Le champ de pesanteur en un point à la surface de la terre est directement lié à la densité effective des matériaux qui composent le sous-sol. Analyser les variations du champ de pesanteur permet donc d'obtenir des informations sur les contrastes de densité du sol. Ces méthodes ont des applications diverses, pouvant aller de la caractérisation d'aquifères, de cavités souterraines, de glaciers, ou encore d'étudier la structure profonde d'une chaîne de montagnes.

Méthodes électromagnétiques

La prospection électromagnétique repose sur le principe d'induction électromagnétique de Faraday. Lorsqu'un champ magnétique variable est produit, il génère la naissance de courants
induits (également appelés courants de Foucault) dans tous les conducteurs situés dans la zone d'influence du champ. Ces courants induits vont eux-mêmes générer des champs magnétiques secondaires, possédant la même fréquence que le champ primaire mais déphasés par rapport à celui-ci. La mesure de ces champs secondaires permet de détecter les conducteurs impactés par le champ primaire.

A partir de ce principe, les méthodes électromagnétiques peuvent être mises en œuvre de multiples façons. Pour les méthodes actives, le champ primaire est généré par une bobine émettrice, et les champs secondaires sont mesurés par l'intermédiaire d'une bobine réceptrice. La résolution et la profondeur d'investigation atteintes avec ce type de configuration dépend alors de la distance entre les bobines, de leur orientation, et de la fréquence du champ primaire généré.

Les méthodes passives mesurent les champs secondaires induits dans le sol par des champs primaires non contrôlés par le géophysicien. Parmi les techniques utilisées, on peut citer la méthode « Très Basses Fréquences » (TBF), pour laquelle le champ primaire est celui généré par les antennes de communication d'origine anthropique, qui possède une fréquence de l'ordre de 10 à 30 kHz. La magnéto-tellurie (MT) utilise comme champ primaire le champ électromagnétique naturel induit par les courants électriques lointains circulant dans la ionosphère.

Méthodes électriques

Les méthodes électriques peuvent être considérées comme un sous-domaine des méthodes électromagnétiques, puisque leur mise en œuvre implique également la production ou au moins la mesure de champs électriques dans le sol. On peut distinguer trois méthodes électriques principales. La méthode de résistivité électrique, la méthode de potentiel spontané (PS) et la méthode de polarisation provoquée (PP). Les méthodes de résistivité électrique et de polarisation provoquée sont des méthodes actives, qui impliquent de générer un champ électrique dans le sol à travers des électrodes d'injection de courant, et de mesurer la différence de potentiel résultante entre deux électrodes de mesure. Nous proposons dans le chapitre suivant une description assez détaillée des principes théoriques liés à ces deux méthodes ainsi que leur mise en œuvre pratique.

La méthode du potentiel spontané est une méthode passive, qui consiste à mesurer les différences de potentiel créées naturellement par les champs électriques existant dans le sous-sol. De façon globale, cette méthode permet d'avoir accès à la répartition des circulations hydrauliques du sous-sol et de caractériser des écoulements de fluides souterrains. Une description plus détaillée des principes théoriques associés à la méthode et des domaines d'application peut être trouvée par exemple dans Guichet (2002) et (Maineult, 2004).

2.2.2 Application des méthodes géophysiques à la surveillance des sites de stockage.

Méthodes générales

Comme nous l'avons expliqué précédemment, la surveillance d'un site de stockage de CO_2 peut être déclinée selon plusieurs échelles. La méthode primaire de détection des fuites consiste à surveiller le panache de CO_2 injecté au sein de la zone de stockage. Si ce dernier présente une zone d'extension inattendue, ou si au contraire le panache n'évolue pas de façon corrélée avec les quantités de CO_2 injecté, on peut tirer des conclusions sur l'existence de fuites ou sur les mauvaises capacités de rétention de la formation géologique.

Pour réaliser ce type de monitoring, les méthodes géophysiques les plus couramment employées sont les méthodes sismiques 3D (e.g., Chadwick et al., 2006; Juhlin et al., 2007). Ces méthodes sont en effet bien maîtrisées par les compagnies d'exploration pétrolières et présentent une profondeur d'investigation adaptée. Leur défaut principal est qu'elles présentent des coûts d'acquisition très élevés qui excluent un monitoring satisfaisant en terme de discrétisation temporelle.

Pour cette raison, le développement de méthodes alternatives aux méthodes sismiques pour la surveillance du panache de CO_2 injecté fait l'objet de nombreuses études. Par exemple, Hoversten and Gasperikova (2004) analysent conjointement à travers des travaux de modélisation les capacités respectives des méthodes gravimétriques, électromagnétiques et de la méthode du potentiel spontané. Ils proposent des méthodes d'acquisition *a priori* capables de détecter avec suffisamment de précision des changements survenant dans la zone d'injection.

Certains auteurs s'intéressent également au développement de méthodes sismiques passives (e.g., Verdon et al., 2010). L'objectif général est de détecter les événements sismiques ou microsismiques induits par l'injection de CO_2 , et de caractériser le panache de CO_2 en appliquant des méthodes de relocalisation suffisamment précises (e.g., Noble et al., 2010; Jones et al., 2010).

Méthodes électriques

Au cours de cette thèse, nous avons étudié la capacité des techniques de tomographie de résistivité électrique (ERT) et de polarisation provoquée (PP) à détecter des transferts de CO_2 dans la subsurface. Ainsi, nos travaux ne s'inscrivent pas dans le contexte de la surveillance du panache de CO_2 injecté proprement dit, mais dans celui de la détection d'une circulation de CO_2 dans les premières dizaines de mètres du sous-sol. La profondeur d'investigation caractéristique des méthodes électriques ne permet pas d'accéder aux profondeurs des zones de stockage, à moins d'effectuer des mesures en puits.

Parmi les deux méthodes qui nous intéressent, c'est la méthode ERT qui, à ce jour, a été la plus étudiée dans le contexte de la surveillance de sites de stockage du CO₂. Certains auteurs ont développé des études en laboratoire sur le sujet (e.g., Nakatsuka et al., 2010; Breen et al., 2012; Vialle et al., 2014), d'autres ont construit leurs études autour de travaux de modélisation (e.g.,

Christensen et al., 2006; Lamert et al., 2012; Picotti et al., 2013), et le nombre non négligeable de sites tests ou de sites pilotes existant à ce jour a également permis de développer un certain nombre d'études sur le terrain (e.g., Xue et al., 2006; Kiessling et al., 2010; Girard et al., 2011; Bergmann et al., 2012; Carrigan et al., 2013; Auken et al., 2014; Sauer et al., 2014).

En revanche, à notre connaissance, la méthode de polarisation provoquée n'a été que très peu appliquée à la détection de transferts de CO₂. Dafflon et al. (2012) semblent être les premiers à s'être intéressés à la question. Ils ont observé l'impact sur les signaux PP d'une injection de fluide enrichi en CO₂ dans un aquifère situé en proche surface. Nous pouvons également citer Doetsch et al. (2014), dont les travaux sur la surveillance d'une injection de CO₂ par la méthode polarisation provoquée temporelle devraient être prochainement publiés.

Ainsi, à travers ces travaux de thèse, apportons-nous notre contribution à la compréhension générale du fonctionnement des méthodes ERT et PP, de leur capacité à détecter des transferts de CO_2 dans la subsurface, et donc à être appliquées à la surveillance des sites de stockage.

Chapitre 2

Description des méthodes ERT et PP

Introduction

L'objectif de ce chapitre est de décrire le fonctionnement des méthodes de tomographie de résistivité électrique et de polarisation provoquée. Pour chacune, nous présentons les bases théoriques élémentaires sur lesquelles elles ont été développés, les principales techniques de mise en œuvre pratique ainsi que quelques éléments concernant le traitement des données. Ce chapitre est donc organisé en deux sections, la première portant sur la méthode de tomographie de résistivité électrique, et la seconde sur la méthode de polarisation provoquée.

1 Tomographie de résistivité électrique (ERT)

1.1 Notion de résistivité électrique

La résistivité électrique d'un matériau représente sa capacité à s'opposer au passage d'un courant électrique. Elle s'exprime en $\Omega.m$ et est très généralement notée ρ . Selon le point de vue adopté, on peut également utiliser la grandeur inverse, appelée conductivité électrique, qui définit la capacité d'un matériau à laisser passer un courant électrique. Elle s'exprime en $S.m^{-1}$, est notée σ , et l'on a :

$$\rho = \frac{1}{\sigma} \tag{2.1}$$

La résistivité est une grandeur propre à l'état et à la nature d'un matériau. Par exemple, à une température de 20°C, la résistivité du cuivre est évaluée à 1,68.10⁻⁹ Ω .m (Giancoli, 2009), et celle du platine à 1,06.10⁻⁷ Ω .m (Gordon and Serway, 1998). La notion de résistivité électrique est largement employée en géophysique. Il convient tout de même de noter que le paramètre conductivité est une meilleure représentation physique du phénomène impliqué. En effet, le courant électrique circule dans les matériaux par déplacement de charges, c'est donc la capacité de *conduction* des charges que l'on évalue réellement lorsque l'on évoque la résistivité d'un matériau.

1.1.1 Eléments influençant la résistivité du sol

Mode de conduction

Le courant électrique circule dans les sols selon trois modes de conduction principaux :

• La conduction *ionique* ou *électrolytique*, liée au déplacement des ions présents dans la phase liquide, aussi appelée électrolyte. C'est généralement le mode de conduction prédominant dans les sols.

- La conduction électronique, liée au déplacement des électrons dans les matériaux qui composent la phase solide. Ce mode de conduction n'a donc lieu qu'en présence de métaux : sulfures, oxydes, ferrites, graphite.
- La conduction *surfacique*, qui résulte de la présence d'une double couche électrique à l'interface électrolyte-phase solide. Ce mode de conduction est particulièrement important en présence d'argiles.

Résistivité des roches et des minéraux

La résistivité est une des propriétés physiques qui montre les plus forts contrastes en géophysique. On peut par exemple comparer la résistivité de l'argent natif $(1, 6.10^{-8} \ \Omega.m)$ avec celle du soufre $(10^{16} \ \Omega.m)$. On observe une différence de 24 ordres de grandeur. Les roches, sédiments, ou roches sédimentaires qui sont présents dans le sous-sol pourront donc présenter des résistivités très variées selon la nature et la concentration des minéraux qui les composent.

De manière générale, les solides sont classés en trois groupes selon leur résistivité :

- 1. Conducteurs (10^{-8} à $10^{-5} \Omega$.m)
- 2. Semi-conducteurs (10^{-5} à $10^7 \Omega$.m)
- 3. Isolants (> $10^7 \Omega$.m)

La résistivité des minéraux et roches varie sur la plage $10^{-4} - 10^{14} \ \Omega$.m. La matrice des minérale des roches est globalement isolante. Seule la présence de graphite, de métaux, ou de sulfures permet une nette conduction électronique, c'est-à-dire une conduction électrique au travers des minéraux, par déplacement d'électrons.

Dans les autres cas, la conduction électrique se fait principalement au travers de l'eau présente dans l'espace poral, on parle alors de conduction électrolytique. Les critères dominants sont la dimension et la connectivité de l'espace poral, le degré de saturation en eau, et la salinité de l'eau saturante.

Porosité - connectivité - tortuosité

La porosité d'un milieu poreux désigne la fraction volumique de l'ensemble des espaces vides (pores) existants dans le milieu, rapportée au volume total du milieu en question. On a :

$$\phi = \frac{V_{pores}}{V_{total}} \tag{2.2}$$

La porosité des roches présente une forte variabilité, conséquence des conditions de température et de pression à laquelle elles ont été formées. Les roches denses comme par exemple le granite non altéré, peuvent présenter des porosités inférieures à 2%. Les processus de dégazage lors de la formation des roches volcaniques leur confèrent des porosités particulièrement élevées, pouvant atteindre 60% dans certains cas. Les roches sédimentaires se forment par agglomération de grains plus ou moins cimentés entre eux, et leur porosité peut varier entre quelques pourcents et 45% selon le degré de cimentation. Enfin la compaction géologique à également un impact non négligeable sur la porosité d'une roche.

Dans un milieu totalement saturé en eau, où la conduction électrolytique prédomine sur la conduction électronique (faibles concentrations en minéraux métalliques), la conductivité électrique de la roche est fortement influencée par ce que l'on appelle la porosité *effective* ou *efficace* de la roche. En effet, la porosité telle que définie plus haut (équation 2.2), dite porosité *totale*, ne permet pas d'appréhender correctement la quantité réelle de chemins de circulation du courant. De la même façon que pour la circulation d'un fluide dans un milieu poreux, si certains pores sont bouchés ou isolés du reste du milieu poreux (comme dans le cas de la pierre ponce), alors ces pores ne contribuent pas au passage du courant électrique. La notion de *connectivité* intervient alors, elle caractérise le nombre de voisins pour un pore, la présence de bras morts (pores bouchés) ou encore la topologie du volume des pores (Nicolas, 2003).

Un autre paramètre qui influence la capacité d'une roche à conduire le courant électrique est la *tortuosité* du milieu poreux. Elle représente le caractère non rectiligne des chemins de circulation du courant à travers l'espace poral. On définit classiquement la tortuosité comme étant le rapport entre la longueur effective du réseau poreux sur la distance entre ses deux extrémités (figure 2.1).

$$\tau = \frac{L}{l} \tag{2.3}$$

Si la tortuosité du réseau poreux est élevée, on comprend bien intuitivement que les chemins de circulation du courant électrique sont plus long, et que par conséquent la capacité de conduction de la roche s'en trouve diminuée.



FIGURE 2.1 – Représentation schématique du concept de tortuosité. Extrait de Giunta2015.

Toutefois, la définition de la tortuosité telle que donnée ci-dessus s'applique à un chemin de circulation en particulier. Appréhender la tortuosité globale d'une roche est une tâche plus complexe, qui fait l'objet de nombreuses études et discussions encore à ce jour (e.g., Epstein, 1989; Attia, 2005; Shen and Chen, 2007; Azar et al., 2008). De la même façon, la connectivité d'un roche n'est pas un paramètre facile à évaluer. C'est pourquoi on trouve finalement peu d'expressions empiriques ou théoriques qui relient directement la conductivité électrique d'une roche avec ces paramètres microstructuraux.

La célèbre relation semi-empirique d'Archie, aussi connue comme la première loi d'Archie (Archie, 1942) relie directement la résistivité de la roche avec sa porosité et la résistivité du fluide saturant. Pour une roche totalement saturée, elle s'écrit :

$$\rho_r = \rho_f \phi^{-m} \tag{2.4}$$

avec ρ_r la résistivité de la roche saturée (en Ω .m), ρ_f la résistivité du fluide saturant, et mun paramètre nommé facteur de cimentation, compris entre 1 et 5, qui peut être relié à l'état microstructural de la roche.

Le facteur de cimentation m, qui, à l'origine et jusqu'à il y a encore une vingtaine d'année, était simplement considéré comme un paramètre d'ajustement a aujourd'hui pris une signification physique plus concrète, liée à la microstructure de la roche. Certaines valeurs de m ont été obtenues analytiquement (m = 1 correspond à un réseau de tubes capillaires droits, et m = 1, 5est la solution analytique dans le cas d'un milieu composé de sphère parfaites (Sen, 1981; Mendelson and Cohen, 1982). L'ensemble des travaux effectués sur le sujet montrent qu'en général, le facteur de cimentation augmente lorsque le degré de connexion du milieu poreux diminue. Pour la plupart des roches sédimentaires, m est compris entre 1,5 et 2,5. Les valeurs les plus élevées (entre 2,5 et 5) sont observées pour des roches carbonatées ou volcaniques (Bernard et al., 2007), qui possèdent une faible connectivité (Glover, 2009). Récemment, Glover (2009) propose une nouvelle interprétation physique pour appréhender la signification du facteur de cimentation. Il l'interprète comme le taux de variation de la connexité (le facteur de formation exprimé du point de vue de la conductivité, définit par $G = \phi^m$) avec la porosité et la connectivité. Cette nouvelle approche permet de valider le facteur de cimentation comme étant un paramètre qui rend compte de l'état microstructural de la roche.

Cependant, il est important de souligner que la première loi d'Archie ne prend pas en compte l'influence du troisième mode de conduction électrique cité plus haut : *la conduction de surface*. Elle n'est donc pas applicable notamment aux roches qui contiennent de l'argile pour lesquelles le phénomène de conduction de surface peut être prépondérant si la concentration en argile est suffisante. Waxman et al. (1968) sont les premiers à proposer un modèle semi-empirique pour estimer la conductivité électrique d'une roche argileuse. Clavier et al. (1984) proposent un autre modèle nommé "Dual-Water", qui repose sur l'existence d'une double couche électrique à l'interface argile-eau. Depuis, les travaux sur le sujet ont été nombreux car le phénomène revêt une importance particulière lors de l'application de la méthode de polarisation provoquée ou du potentiel spontané, dont l'intérêt est grandissant, comme l'atteste de nombreuses études ayant pour objectif la compréhension et le développement des modèles de conductivité surfacique (e.g., Sen et al., 1987; De Lima and Sharma, 1990; Revil and Glover, 1998; Lunev et al., 2001; Devarajan et al., 2006; Cosenza et al., 2008) et de la double (ou triple) couche électrique (e.g., de Lima and Sharma, 1992; Leroy and Revil, 2004).

Saturation en eau

Lorsque la saturation en eau diminue, la conduction électrolytique diminue et la résistivité de la roche augmente. Archie (1942) donne également une relation semi-empirique incluant cette propriété, que l'on appelle souvent la deuxième loi d'Archie :

$$\rho_r = \rho_f \phi^{-m} S^{-n} \tag{2.5}$$

avec S la saturation en eau, et n l'exposant de saturation, ajustable, généralement compris entre 1,3 et 2 pour des roches non-consolidées et proche de 2 pour des roches consolidées.

Comme dans le cas du facteur de cimentation m, la signification physique de l'exposant de saturation n n'est pas à ce jour explicitement connue. A l'origine, n est un paramètre d'ajustement, et si l'on mesure pour la plupart des roches saturées en eau une valeur de ncomprise entre 1,3 et 2 selon leur degré de consolidation, de plus hautes valeurs (jusqu'à 5) sont obtenues pour des roches pour lesquelles le fluide mouillant est le pétrole (Sweeney and Jennings Jr, 1960; Montaron et al., 2009). Ainsi le degré de mouillabilité du système (selon la nature des phases qui le composent) semble jouer un rôle important sur la valeur de l'exposant de saturation (e.g., Morgan et al., 1964; Donaldson et al., 1989). Pour une même roche, on observe aussi que l'exposant de saturation augmente lorsque la saturation diminue, ce qui laisse à penser que la valeur de n est probablement reliée au degré de connectivité de la phase aqueuse au sein de la roche (Montaron et al., 2009). La signification physique de l'exposant de saturation nécessite donc d'être investiguée plus en profondeur par la communauté scientifique.

De manière générale, la deuxième loi d'Archie (équation 2.5) est valide pour une saturation en eau supérieures à 0,2. Pour des valeurs inférieures, la conduction de surface devient prédominante, et l'évolution de la résistivité en fonction de la saturation n'est plus linéaire (figure 2.2).



FIGURE 2.2 – Evolution de la résistivité électrique en fonction de la saturation pour différents types de sol. (Extrait de Samouëlian et al. (2005))

Composition du fluide saturant

La nature du fluide saturant l'espace por ljoue également un rôle important dans la réponse en résistivité d'une roche. La conductivité électrique du fluide dépend de la concentration en espèces ioniques présentes dans le fluide, et de la viscosité du fluide (Scollar et al., 1990; Fleury and Deschamps, 2009). Elle dépend aussi de la mobilité ionique des ions présents, qui peut varier sensiblement. La mesure de la résistivité électrique d'un sol peut donc s'avérer un outil puissant pour détecter des phénomènes impliquant un haut contraste de conductivité du fluide saturant, tels que la diffusion d'un panache de polluants chimiques, généralement hautement chargés en espèces ioniques (e.g., Gasperikova et al., 2012; Hamzah et al., 2008), ou l'intrusion d'eau salée dans des aquifères d'eau douce (e.g., Nguyen et al., 2009; Ogilvy et al., 2009; Satriani et al., 2011).

Température

Les mesures de résistivité sont également sensibles aux variations de température. Si la température augmente, la viscosité du fluide diminue, et la mobilité ionique des espèces dissoutes dans le fluide s'en trouve augmentée. Le courant électrique passe alors plus aisément dans le milieu, diminuant la résistivité de la roche. Pour donner un exemple, pour des roches totalement saturées en eau, une augmentation de la température de 25°C à 250°C induit une diminution de la résistivité d'à peu près un ordre de grandeur (Llera et al., 1990).

Si la température diminue, on observe l'effet inverse. Si l'on atteint le point où l'eau des pores est gelée (point relativement difficile à atteindre, les sels en solution abaissant considérablement le point de congélation de l'électrolyte), alors la résistivité de la roche est quasi-infinie.

A la suite de mesures en laboratoire, Campbell et al. (1948) ont montré qu'entre 15°C et 35°C, la conductivité électrique d'un sol augmentait de 2,02% par °C, et propose une relation permettant de calculer la valeur de la conductivité du fluide à partir de sa valeur standard à 25°C.

$$\sigma_T = \sigma_{25^{\circ}C} \left[1 + \alpha (T - 25) \right] \tag{2.6}$$

où σ_T est la conductivité du sol à une température T (en °C), $\sigma_{25^\circ C}$ la conductivité du sol à 25°C, et α un facteur correctif égal à 2,02%.

Cette équation a été investiguée et validée un an plus tard lors de nouvelles mesures en laboratoires conduites par Colman and Hendrix (1949) sur des sols possédant des textures variées.

1.1.2 Résistivité d'un échantillon de géométrie connue

Comme expliqué précédemment, la résistivité électrique représente la capacité d'un matériau à s'opposer au passage du courant électrique. C'est une grandeur propre à la nature du matériau en question.

La résistance électrique (en Ω) véhicule la même notion physique que la résistivité, mais rapportée à la géométrie de l'échantillon ou du milieu considéré. Ainsi, on est capable de déterminer la résistance électrique d'un échantillon de matériau en calculant le rapport entre l'intensité du courant électrique injecté I, et la différence de potentiel mesurée ΔV :

$$R = \frac{\Delta V}{I} \tag{2.7}$$

Pour en déduire la résistivité du matériau en question, il est nécessaire de connaître la géométrie de l'échantillon et celle du dispositif de mesure (i.e les positions des électrodes d'injection de courant et de mesure de potentiel).

Dans le cas d'un prisme droit d'un matériau homogène de surface A et de longueur L, traversé par un courant d'intensité I résultant de l'application à ses bornes d'une différence de potentiel ΔV (figure 2.3), la relation entre les deux grandeurs s'écrit :

$$\rho = \frac{A}{L}R\tag{2.8}$$

La résistivité et la résistance sont donc reliées entre elles par l'intermédiaire d'un facteur dit géométrique, généralement noté K (en m), qui dans le cas d'un prisme droit vaut :

$$K = \frac{A}{L} \tag{2.9}$$



FIGURE 2.3 – Représentation schématique d'un prisme droit à base carrée de section A traversé d'un courant d'intensité I.

1.1.3 Cas d'un demi-espace homogène infini

L'approximation première que l'on peut faire d'un sol est de le considérer comme un demiespace infini, homogène et isotrope. Le plus souvent, et ce sera toujours le cas dans cette thèse, lorsque l'on réalise une mesure de la résistivité électrique d'un sol ou d'un milieu, on injecte du courant continu (en réalité pseudo-continu car injecté sous la forme de créneaux) à travers deux électrodes d'injection et on mesure la différence de potentiel résultante entre deux électrodes de mesure.

Dans le cas d'un demi-espace infini, homogène et isotrope, le dispositif de mesure peut par exemple prendre la forme décrite sur la figure 2.4. La résistivité et la résistance mesurée sont alors également reliées par un facteur géométrique, qui, dans ce cas, dépend de la position des électrodes d'injection et de mesure. On a :

$$o = K.R \tag{2.10}$$

Avec :

$$K = \frac{2\pi}{\left(\frac{1}{AM} - \frac{1}{AN} - \frac{1}{BM} + \frac{1}{BN}\right)}$$
(2.11)

où AM, AN, BM et BN dénotent les distances entre les électrodes de mesure et les électrodes d'injection (figure 2.4).

Dans la section 1.1.4 ci-après, nous décrivons les éléments théoriques qui permettent d'établir l'expression du facteur géométrique dans le cas d'un demi-espace homogène et isotrope.

1.1.4 Eléments théoriques pour la mesure de la résistivité d'un sol

Cas d'une unique source de courant située au sein du milieu

Considérons un espace homogène et isotrope dans lequel circule un courant continu issu d'une seule source ponctuelle (figure 2.5). La loi d'Ohm sous sa forme générale s'écrit :

$$\overrightarrow{E} = \rho \overrightarrow{J} \tag{2.12}$$



FIGURE 2.4 – Schéma d'un dispositif classique (Schlumberger) utilisé pour la mesure de la résistivité électrique d'un sol. Approximation du sol à un demi-espace homogène infini et isotrope. Les électrodes nommées A et B sont utilisées pour l'injection de courant d'intensité I, et les électrodes M et N mesurent la différence de potentiel ΔV .

avec \overrightarrow{E} le champ vectoriel électrique en $V.m^{-1}$, \overrightarrow{J} le vecteur densité de courant en $A.m^{-2}$, et ρ la résistivité du milieu en $\Omega.m$.

Par définition, le champ électrique \overrightarrow{E} dérive du champ de potentiel scalaire V (en V) :



FIGURE 2.5 – Distribution du potentiel généré par une injection à une seule source de courant dans un espace homogène et isotrope. Le courant circule radialement. Les équipotentielles sont normales aux lignes de courant. L'approximation une seule source d'injection (en C1) est représentée en plaçant à l'infini l'électrode C2 qui ferme le circuit. Modifié d'après Chouteau and Giroux (2006).

$$\vec{E} = -\nabla V \tag{2.13}$$

En couplant 2.12 et 2.13 on obtient :

$$\rho \overrightarrow{J} = -\nabla V \tag{2.14}$$

D'après le théorème de Green-Ostrogradski, aussi appelé théorème du flux-divergence en analyse vectorielle, l'intégrale volumique de la divergence d'un champ vectoriel est égale au flux de ce champ à travers la surface délimitant ce volume.

Appliqué à l'électro-magnétisme, ce théorème s'appelle le théorème de Gauss. Concrètement, c'est une loi de conservation. Ce théorème implique que la dispersion d'une grandeur au sein d'un volume donné s'accompagne nécessairement d'un flux total équivalent de cette grandeur, à travers la surface qui délimite ce volume.

Pour le champ densité de courant f, on a :

$$\iiint\limits_{v} \nabla \overrightarrow{J}.dV = \oiint\limits_{s} \overrightarrow{J}.\overrightarrow{dS}$$
(2.15)

avec v le volume considéré, s la surface délimitant ce volume, et \overrightarrow{dS} le vecteur sortant normal à la surface.

Or, en l'absence de source de courant ou de puits de courant dans le volume considéré, on a conservation de la charge, et le flux de courant sortant à travers la surface délimitant le volume est nécessairement nul, on a donc :

$$\iiint\limits_{\upsilon} \nabla \overrightarrow{J} . dV = \oiint\limits_{s} \overrightarrow{J} . d\overrightarrow{S} = 0$$
(2.16)

Si l'on considère maintenant un volume v infinitésimal, englobant un point de l'espace, l'équation 2.16 devient pour le point en question :

$$\nabla \vec{J} = 0 \tag{2.17}$$

Avec 2.14, on obtient :

$$-\nabla \cdot \nabla \left(\frac{V}{\rho}\right) = 0 \tag{2.18}$$

ou:

$$-\nabla \cdot \nabla(\sigma V) = 0$$

Soit,

$$\nabla \sigma \cdot \nabla V + \sigma \nabla^2 V = 0$$

Si la résistivité (et donc la conductivité) est constante dans le milieu (approximation d'un terrain homogène), le terme est nul, et on obtient l'équation de Laplace :

$$\nabla^2 V = 0 \tag{2.19}$$

Le potentiel à un point donné d'un espace homogène et isotrope est donc régi par l'équation de Laplace. Le courant circule de façon radiale dans le sol (figure 2.5). Ainsi en coordonnées sphériques, les composantes angulaires sont nulles et l'équation 2.19 est ramenée à :

$$\frac{\partial^2 V}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial V}{\partial r} = 0.$$
(2.20)

On peut intégrer simplement cette équation en faisant le changement de variable :

$$u = \frac{\partial V}{\partial r}$$

On a alors :

$$\frac{du}{u} = -2\frac{dr}{r} \tag{2.21}$$

En intégrant, on obtient finalement :

$$u = Ar^{-2}$$

où A est une constante d'intégration. Avec le changement de variable inverse, on obtient :

$$\frac{\partial V}{\partial r} = \frac{A}{r^2}$$

Et en intégrant à nouveau :

Soit, à partir de 2.22 :

$$V = -\frac{A}{r} + B \tag{2.22}$$

où B est une deuxième constante d'intégration.

Le potentiel est nul si la distance r tend vers l'infini, donc la constante B est également nulle. Pour déterminer A, il nous faut déterminer l'expression du potentiel à une distance rde la source de courant. On peut pour cela relier le potentiel V à l'intensité du courant I à l'aide de la loi d'Ohm. Nous l'avons vu précédemment, cette dernière peut s'écrire sous la forme (équation 2.14) :

$$\rho \overrightarrow{J} = -\nabla V$$

$$\rho \overrightarrow{J} = -\frac{A}{r^2}$$
(2.23)

Comme le courant circule radialement, on peut visualiser à l'aide de la figure 2.5 qu'il se propage selon une surface sphérique, centrée sur la source d'injection, en tout point de laquelle l'intensité du courant est constante.

A une distance r de la source, l'intensité du courant correspond donc à la répartition de la densité de courant sur une surface sphérique de rayon r. On a alors :

$$I = 4\pi r^2 \overrightarrow{J} \tag{2.24}$$

Et 2.14 nous donne :

$$A = -\frac{\rho I}{4\pi} \tag{2.25}$$

Et donc finalement,

$$V = \frac{\rho I}{4\pi r} \tag{2.26}$$

Cas d'une unique source de courant située à la surface.

On rappelle que l'objectif de la section 1.1.4 est de résumer le cheminement théorique qui permet de déterminer la valeur du potentiel généré par l'injection d'un courant électrique dans un sol au travers de 2 électrodes d'injection (A et B).

Considérons alors le potentiel généré par une unique source de courant, positionné à la surface d'un demi-espace homogène et isotrope (figure 2.6).



FIGURE 2.6 – Distribution du potentiel généré par une seule source de courant située à la surface d'un demi-espace infini, homogène et isotrope. Extrait de Chouteau and Giroux (2006).

Le raisonnement exposé précédemment dans le cas d'une source située au sein du milieu reste valable. La différence pour le cas d'une source située à la surface est que la densité de courant n'est plus répartie sur une surface sphérique entière, mais sur la surface d'une demi-sphère $(2\pi r^2)$. Le potentiel dans ce cas s'écrit alors :

$$V = \frac{\rho I}{2\pi r} \tag{2.27}$$

Cas de deux sources de courant situées à la surface.

Lorsqu'on réalise une mesure de la résistivité du sol, on utilise souvent des configurations d'électrodes du type de celle représentée sur la figure 2.4. On est alors en présence de deux électrodes d'injection de courant, et donc de deux sources, situées toutes les deux à la surface. L'intensité du courant en A vaut $I_A = +I$, et en B on a $I_B = -I$.

Le potentiel en un point que lconque Q d'un demi-espace homogène et isotrope est donc affecté par les deux sources.

En utilisant 2.27, le potentiel en Q dû à l'électrode A vaut :

$$V_{A \to Q} = \frac{\rho I_A}{2\pi A Q} \tag{2.28}$$

Le potentiel en Q dû à l'électrode B :

$$V_{B\to Q} = \frac{\rho I_B}{2\pi BQ} \tag{2.29}$$

où AQ et BQ sont les distances entre les sources de courant A et B et le point de mesure du potentiel Q. Finalement, le potentiel étant additif, le potentiel total mesuré en Q vaut :

$$V_Q = V_{A \to Q} + V_{B \to Q} \tag{2.30}$$

Soit :

$$V_Q = \frac{\rho I}{2\pi} \left(\frac{1}{AQ} - \frac{1}{BQ}\right) \tag{2.31}$$

Dans le cas décrit sur la figure 2.4, on vient mesurer le potentiel en deux points notés M et N, situés à la surface de notre demi-espace. La différence de potentiel entre ces deux électrodes de mesure vaut alors :

$$\Delta V = \{ (V_{A \to M} + V_{B \to M}) - (V_{A \to N} + V_{B \to N}) \}$$
(2.32)

Soit :

$$\Delta V = \frac{\rho I}{2\pi} \left(\frac{1}{AM} - \frac{1}{AN} - \frac{1}{BM} + \frac{1}{BN}\right)$$
(2.33)

On retrouve bien l'expression du facteur géométrique donnée à l'équation 2.11.

1.1.5 Principe d'acquisition d'une tomographie de résistivité électrique.

Dans cette thèse, nous avons exclusivement réalisé des panneaux de tomographie de résistivité électrique 2D. Le principe de base consiste en la réalisation de mesures de résistivité en plusieurs endroits de la zone d'étude, afin d'obtenir une section 2D de la résistivité du sous-sol.

On effectue un certain nombre de mesures de résistivité en déplaçant le quadripôle d'électrodes ABMN à des intervalles de distance réguliers, le long d'une ligne droite. Ensuite, en augmentant l'écartement des électrodes, on augmente la profondeur d'investigation (voir figure 2.13 et explications ci-après). On obtient un quadrillage 2D de mesures de la résistivité apparente, avec une discrétisation le long du profil et en profondeur. On parle alors de *pseudo-section de résistivité apparente*. En pratique, on ne déplace pas physiquement le quadripôle de mesure. On met en place une ligne avec un nombre fixe d'électrodes, et l'on implémente dans le système d'acquisition (figure 2.7) des protocoles adaptés afin d'effectuer les mesures à différents endroits de la ligne, pour différents écartements d'électrodes.



FIGURE 2.7 – Schéma de principe de l'acquisition d'une pseudo-section de résistivité apparente le long d'un profil longitudinal. La profondeur d'investigation augmente avec l'écartement des électrodes. Le point de mesure de résistivité apparente est reporté par convention au centre du quadripôle ABMN.

Résistivité apparente

On parle de résistivité apparente car l'information effectivement mesurée ne représente pas la résistivité du milieu au point considéré sur la figure 2.7. La résistivité effectivement mesurée est impactée par l'ensemble du volume de terrain traversé par les lignes de courant, et représente donc une valeur intégrative. Ainsi, une même mesure de résistivité apparente peut correspondre à des réalités géologiques très différentes.

Le report du point de mesure au centre du dipôle d'injection et de mesure, comme illustré sur la figure 2.7, est une simple convention. De même, la position verticale de ce point de mesure sur une pseudo-section de résistivité apparente est une pseudo-profondeur. Elle ne représente pas la profondeur d'investigation de la mesure (voir ci-après).

Dispositifs d'électrodes

Il existe un certain nombre de dispositifs d'électrodes possibles pour acquérir une pseudosection de résistivité apparente. Ces dispositifs possèdent chacun des caractéristiques géométriques propres (figures 2.8, 2.9 et 2.10). Nous en présentons ici trois, classiquement utilisés, dont deux ont été utilisés lors de nos expériences sur le terrain (Wenner-Schlumberger et dipôledipôle).

Dispositif Wenner



FIGURE 2.8 – Géométrie d'électrodes pour le dispositif Wenner.

Dispositif Wenner-Schlumberger



FIGURE 2.9 - Géométrie d'électrodes pour le dispositif Wenner -Schlumberger, n est un nombre entier.

Dispositif dipôle-dipôle



FIGURE 2.10 – Géométrie d'électrodes pour le dispositif dipôle-dipôle, n est un nombre entier.

Sensibilité des dispositifs d'électrodes

Il est intéressant de comparer la sensibilité de ces différents dispositifs. Par sensibilité, on entend l'influence que va avoir un changement de résistivité sur le potentiel mesuré. On considère un espace homogène de résistivité ρ dans lequel une électrode C1 injecte un courant d'intensité 1 A. Ce courant génère à l'électrode de mesure P1 une distribution de potentiel φ . On considère ensuite un petit volume $d\tau$ dans lequel la résistivité varie de la quantité $\delta\rho$ (figure 2.11). On appelle fonction de sensibilité la fonction qui permet de quantifier la variation $\delta\varphi$ du potentiel mesuré à l'électrode P1 induite par la variation de résistivité $\delta\rho$.

Elle s'exprime par :





Roy and Apparao (1971) ont calculé les valeurs de la fonction de sensibilité pour plusieurs dispositifs. Plus les valeurs sont élevées, plus des changements de résistivité dans la zone en question influenceront sur la mesure du potentiel, autrement dit, plus la sensibilité sera bonne.

La figure 2.12 ci-dessous rend compte de la distribution des valeurs de sensibilité pour les dispositifs Wenner, Wenner-Schlumberger et dipôle-dipôle. La forme des distributions nous permet d'anticiper quels types de structures seront plus à même d'être détectés selon le dispositif utilisé.

- Pour le dispositif Wenner, on note que les contours des valeurs de la fonction de sensibilité sont quasiment horizontaux. Cela implique que ce dispositif sera plus enclin à détecter des changements de résistivité verticaux, et donc à détecter des structures horizontales.

- Le dispositif dipôle-dipôle, lui, présente des contours de sensibilité essentiellement verticaux, et est donc plus à même de détecter des changements de résistivité horizontaux, et donc des structures verticales.

- Le dispositif Wenner-Schlumberger présente une sensibilité équivalente aux variations verticales et horizontales. C'est donc un bon compromis lorsque l'on a peu d'informations sur le type de terrain étudié ou la forme des anomalies recherchées.

L'intensité du signal mesuré est également une caractéristique qui varie avec la disposition des électrodes. Ce critère peut devenir déterminant si l'on étudie un terrain possédant des bruits de fond élevés. Comme le montre l'équation 2.33, le voltage mesuré est inversement proportionnel au facteur géométrique K.

Il faut alors noter que le dispositif Wenner présente un plus petit facteur géométrique, et mesure donc un signal d'une plus grande intensité. Dans le dispositif dipôle-dipôle, les électrodes de mesure du potentiel M et N sont situées loin, en dehors des électrodes d'injection du courant. Cela a pour conséquence de grandes valeurs du facteur géométrique, et donc un signal mesuré plus faible. L'utilisation du dispositif dipôle-dipôle nécessite donc de bonnes conditions d'acquisition, peu de bruit de fond, un appareil de mesure suffisamment sensible et un bon contact des électrodes avec le sol.



FIGURE 2.12 – Représentation des valeurs de la fonction de sensibilité pour les dispositifs Wenner, Wenner-Schlumberger et dipôle-dipôle. Extrait de Roy and Apparao (1971).

Profondeur d'investigation

La profondeur d'investigation augmente avec l'écartement des électrodes situées aux positions extrêmes du dispositif (la plus à gauche et la plus à droite, figure 2.13)). Cela se comprend bien intuitivement. En effet, si les électrodes sont davantage écartées, le volume traversé par le courant électrique, et donc effectivement investigué, sera plus important. Comme le courant circule radialement dans le volume, la zone d'investigation est plus profonde si l'écartement est plus grand.



FIGURE 2.13 – Illustration de l'augmentation de la profondeur d'investigation avec l'écartement des électrodes. Exemple d'un milieu homogène et isotrope.

Il est important de noter que la profondeur d'investigation réelle dépend aussi de la résistivité du milieu étudié. Notamment, en présence d'interfaces entre deux couches de résistivité différentes, on observe une distorsion des lignes de courant, qui peut réduire ou augmenter le volume de terrain effectivement investigué (figure 2.14).

Définir la profondeur d'investigation d'une mesure de résistivité n'est donc pas un problème trivial. Dans la plupart des cas (logiciels d'inversion, de représentation des résistivités apparentes), et dans les définitions données ci-après, on fait ces estimations en considérant un milieu homogène et isotrope.

Evjen (1938) donne une première définition de la profondeur d'investigation comme étant la profondeur à laquelle une couche de faible épaisseur exprime sa contribution maximale au signal mesuré en surface.

Cette définition a ensuite été explorée pour différents dispositifs d'électrodes par Roy and Apparao (1971), Roy (1972) et Apparao and Roy (1974). En substance, ces auteurs ont calculé les contributions au signal mesuré d'un milieu homogène et isotrope, discrétisé en plusieurs couches de faible épaisseur. La valeur de la contribution de chaque couche en fonction de



FIGURE 2.14 – Illustration de la distortion des lignes de courant à l'interface d'un milieu tabulaire. Extrait de Chouteau and Giroux (2006).

leur profondeur forme une courbe nommée NDIC (normalized depth of investigation curve). La profondeur à laquelle la contribution de la couche est maximale correspond alors à la profondeur d'investigation de la mesure (figure 2.15).

Plus tard, Edwards (1977) propose d'estimer la profondeur d'investigation comme étant la profondeur à laquelle la portion de terrain supérieure possède la même influence sur le signal mesuré que la portion de terrain inférieure. On la nomme *profondeur d'investigation effective*. Barker (1989) et Oldenburg and Li (1999) ont montré que la définition donnée par Edwards (1977) semble être la manière la plus robuste d'estimer une valeur de la profondeur d'investigation.



FIGURE 2.15 – Courbe NDIC pour un dispositif d'électrode Wenner. 1 : Le maximum de la courbe nous donne la profondeur d'investigation selon Roy (1972). 2 : Profondeur d'investigation effective selon Edwards (1977). Extrait de Placencia (2004).

Niveau n	dipôle-fipôle	Wenner-Schlumberger
1	$0,416~{\rm d}$	$0{,}519~\mathrm{d}$
2	$0{,}697~\mathrm{d}$	$0{,}925~\mathrm{d}$
3	$0{,}962~{\rm d}$	$1,318 \mathrm{d}$
4	$1,\!220 \mathrm{d}$	$1,706~\mathrm{d}$
5	$1,476~{\rm d}$	$2{,}093~{\rm d}$
6	$1,730~\mathrm{d}$	$2,478~{\rm d}$

Le tableau 2.1 regroupe les coefficients obtenus par Edwards (1977) pour les trois dispositifs d'électrodes décrits précédemment, en fonction de l'espacement inter-électrodes.

TABLE 2.1 - Récapitulatif des coefficients obtenus d'après les considérations de Edwards (1977) pour les dispositifs dipôle-dipôle et Wenner-Schlumberger. d est la distance inter-électrode et n le niveau d'écartement.

Matériel d'acquisition

Il existe un certain nombre d'appareils permettant l'acquisition de tomographies de résistivité électrique. Dans cette thèse, toutes les données ERT présentées (expériences en laboratoire dans le chapitre 2, et expériences sur le terrain au chapitre 4) ont été obtenues en utilisant un Terramètre SAS 1000 connecté à un multiplexeur 64 canaux ES-1064 (ABEM). Le courant est injecté sous la forme d'un signal carré d'amplitude 20 mA, de polarité alternée. La durée totale d'une mesure est de 2.6 s. Elle se compose de deux cycles de mesure en créneaux de période 0.3 s (figure 2.16). Un délai de 0,2 s est respecté entre chaque cycle. Les électrodes utilisées pour les acquisitions ERT sont des tiges d'acier inoxydables de 30 cm de long et de 1,5 cm de diamètre.



FIGURE 2.16 - a) Photo représentant le résistivimètre « Terrameter SAS 1000 » et le multiplexeur 64 canaux « ES-1064 » (ABEM) lors d'une utilisation sur le terrain. b)représentation d'un cycle de mesure.

Qualité des données - Suppression des données aberrantes

Plusieurs critères de sélection peuvent être appliqués aux données de résistivité apparente brutes. On peut par exemple supprimer les points d'une pseudo-section pour lesquels la différence de potentiel mesurée ou l'intensité du courant injecté sont inférieures à un certain seuil (par exemple 0,1 V et 5 mA) en dessous duquel on considère que le rapport signal/bruit est trop faible pour garantir une mesure de qualité. Certains logiciels d'inversion des données proposent également des options de suppression des données aberrantes. Par exemple, le logiciel Res2DInv (Loke and Barker, 1996), que nous utilisons pour l'inversion des données, propose une option nommée « exterminate bad datum points ». Elle permet de visualiser les données de résistivité apparente sous la forme de profils pour chaque niveau de profondeur associé aux mesures. Les points qui présentent des valeurs de résistivités apparentes manifestement beaucoup plus faibles ou plus fortes que les points voisins situés sur le même niveau de données sont supprimés. Ces sauts des valeurs de résistivités apparentes peuvent être dus à un mauvais contact entre l'électrode et le sol, ou à des problèmes de courts-circuits au niveau des zones de câblage qui se produisent généralement lorsque les conditions de l'acquisition sont particulièrement humides (Manuel Res2DInv).



a) Distribution des points de mesure initiale.

FIGURE 2.17 – Exemple d'application de l'option « exterminate bad datum points » du logiciel Res2DInv. Le diagramme a) montre la distribution initiale des points d'acquisition et leur répartition latérale et en profondeur. Des fluctuations sur une ligne de niveau indique des disparités prononcées entre deux mesures de résistivité voisines. On supprimer alors certains points afin de rendre le diagramme le plus lisse possible, à chaque niveau (diagramme b)).

1.1.6 Méthodes d'inversion

La théorie des problèmes inverses s'applique à de nombreux problèmes scientifiques, aussi bien liés aux géosciences (géomagnétisme, sismique, méthodes électromagnétiques dans leur globalité) qu'à des domaines tels que la médecine, pour l'analyse des données d'éléctroencéphalographie, l'échographie et bien d'autres. C'est un problème mathématique à part entière, vaste, qui fait donc l'objet d'évolutions théoriques et pratiques constantes. Ici, nous ne présenterons que très grossièrement comment le problème inverse s'applique à l'interprétation des données issues d'une tomographie de résistivité électrique.

Principes de base

Lors d'une acquisition de tomographie de résistivité électrique 2D, on mesure des *résistivités* apparentes, c'est-à-dire des valeurs de résistivité qui prennent en compte un volume de sol hétérogène et qui intègrent l'ensemble des contributions des zones de différentes résistivités qui composent ce volume.

L'objectif de la procédure d'inversion est d'utiliser les valeurs des résistivités apparentes pour estimer la valeur des résistivités dites vraies, c'est-à-dire les résistivités réelles en tout point de la section 2D étudiée. Il est important de noter que la solution du problème inverse n'est jamais unique, qu'elle constitue simplement la meilleure approximation possible de la résistivité du sous-sol (si tant est que le processus d'inversion se déroule correctement). Par opposition, on parle de résoudre le problème direct lorsque, à partir d'une distribution de résistivités connue, on utilise les lois régissant la distribution du potentiel dans le sol pour prédire quelles seront les résistivités apparentes mesurées en surface. Le problème direct peut être résolu relativement facilement (e.g., Pessel, 2000; Marescot, 2004).

Le principe de base d'une inversion est le suivant : on part d'un modèle de résistivité dit a priori (souvent construit à partir des valeurs des résistivités apparentes), et l'on résout le problème direct. On définit alors une fonction « coût » qui quantifie l'écart entre les résistivités apparentes modélisées (issues de la résolution du problème direct) et les résistivités apparentes mesurées. On répète ce processus en faisant varier de façon intelligente les valeurs de résistivité du modèle *a priori*, avec pour objectif de minimiser cette fonction coût.

Une des difficultés majeures de la résolution du problème inverse réside dans la non-unicité de la solution (e.g., Tarantola, 1987; Pessel, 2000; Marescot, 2004). L'ensemble des données disponibles (mesurées) est nécessairement fini, et l'on essaie d'évaluer un modèle qui possède en théorie une infinité de degrés de liberté. Il existe donc nécessairement plusieurs modèles capables d'expliquer les données observées, et il est important d'essayer d'évaluer la fiabilité du modèle obtenu après inversion.

Il existe différentes approches mathématiques pour résoudre le problème inverse. Une des plus classiques, principalement utilisée dans les travaux décrits ici, est une méthode de descente de gradient. C'est une approche itérative, qui nécessite un modèle de départ. Un des inconvénients de ce type d'inversion est la possibilité de converger vers un minimum local, qui peut parfois être très éloigné du minimum global, auquel cas le résultat de l'inversion sera éloigné d'autant de la réalité. Ainsi, les méthodes stochastiques (inversion bayésienne, méthodes de Monte-Carlo) peuvent être utilisées pour s'affranchir de cette difficulté. Cependant, elles sont bien plus coûteuses en temps de calcul.

Logiciels d'inversion

Il existe plusieurs logiciels permettant de résoudre le problème direct et inverse appliqué à la tomographie de résistivité électrique. Nous présenterons ici plus en détail les deux logiciels que nous avons utilisés au cours de ces travaux de thèse : (i) Res2dInv, un logiciel commercial couramment utilisé (Loke and Barker, 1996). (ii) R3T est un logiciel open-source développé par (Binley and Kemna, 2005), qui présente des fonctionnalités variées.

• Res2DInv (Geotomo Software) :

Ce logiciel, développé par Loke and Barker (1996), est un des logiciels d'inversion les plus couramment utilisés. De ce fait, il est régulièrement réédité en de nouvelles versions dans lesquelles de nouvelles fonctionnalités sont apportées, mais le fonctionnement de base reste le même.

Res2DInv utilise comme modèle initial *a priori* un modèle en blocs dont la taille augmente avec la profondeur. A chaque bloc est attribuée une valeur de résistivité apparente mesurée. La fonction coût est minimisée par application d'une linéarisation de Taylor du premier ordre. Les paramètres ainsi linéarisés donnent accès à une matrice de dérivées secondes qui est ensuite utilisée pour le calcul de la matrice des résistivités vraies. Res2DInv donne ensuite accès aux modèles maximum et minimum calculés à chaque résultat d'itération.

• R3T :

L'intérêt de R3T réside dans le fait qu'il ne se limite pas à la résolution du problème direct ou inverse sur un demi-espace homogène (comme c'est le cas pour Res2DInv) mais permet aussi de travailler sur des géométries variées, avec des conditions aux limites adaptées. Nous avons donc particulièrement utilisé R3T pour modéliser des expériences en laboratoire, au cours desquels nous avons étudié la réponse ERT de sables saturés en eau, placé dans un porte-échantillon cylindrique.

R3T permet en effet d'implémenter un maillage 3D représentant la géométrie du problème. Des conditions aux limites de type Neumann (flux de courant nul) sont appliquées aux frontières du maillage, et, en utilisant la méthode des éléments finis, R3T résout le problème inverse en se basant sur une fonction objectif régularisée, combinée à une pondération par moindres carrés (solution de type Occam).

2 Polarisation provoquée (PP)

2.1 Bref historique de la méthode

Origines

Le principe de la méthode Polarisation Provoquée (PP) appliqué à la prospection géophysique a été décrit en 1913, soit il y a maintenant plus d'un siècle, par Conrad Schlumberger (Schlumberger, 1920). Il fut le premier à observer que, si l'on injecte un courant électrique dans le sol et que l'on interrompt brusquement l'injection, la tension résultante mesurée ne tombe pas à 0 instantanément, mais décroit progressivement dans le temps. C. Schlumberger attribue ce comportement à un phénomène de polarisation du sous-sol, qui met un certain temps à retrouver son état d'équilibre. Le processus est tout à fait comparable à la charge et à la décharge d'un condensateur ou d'une batterie. Quelques chercheurs étudièrent ces phénomènes d'un point de vue pratique et théorique dans les années qui suivirent, mais c'est surtout après la guerre que survinrent les premiers développements importants.

Premiers développements

Bleil (1953) démontre que les réponses en polarisation provoquée peuvent être corrélées quantitativement à la présence de minerais disséminés dans le sous-sol. L'industrie minière met donc à profit cette découverte pour la détection et l'exploration de gisements miniers disséminés (Sumner, 1976). On parle alors de *polarisation d'électrode*.

Vacquier et al. (1957) sont probablement les premiers à utiliser la méthode PP pour l'exploration des ressources hydriques souterraines. Au travers de mesures en laboratoire, ils observent et étudient la dépendance de la réponse PP avec : le type d'argiles présent dans le milieu et les différentes espèces ioniques composant l'eau saturante, et relient la vitesse de décroissance de la courbe de décharge PP à la granulométrie du milieu. Un an plus tard, Madden and Marshall (1958) font des observations similaires au cours d'expériences en laboratoire. Ces deux études sont probablement les premières à identifier la deuxième origine du phénomène de polarisation, notamment liée à la présence d'argiles : *la polarisation de membrane*.

Par la suite, Schwarz (1962) étudie les très hautes constantes diélectriques mesurées sur des particules colloïdales en suspension dans un électrolyte. Le mécanisme proposé pour expliquer le phénomène implique le mouvement de charges adsorbées à la surface de la phase solide composant le milieu. Il est ainsi le premier à décrire ce que l'on appelle aujourd'hui *la polarisation de la couche Stern*. Plus tard, Shilov and Dukhin (1970) développent le concept de *polarisation de la couche diffuse*, qui décrit le mouvements des contre-ions qui composent la partie diffuse de la double couche électrique.

Extension au domaine fréquentiel

Jusque dans les années 1950, le phénomène de polarisation du sous-sol était exclusivement observé et mesuré dans le domaine temporel. C'est Harold Seigel qui, le premier, observe que les signaux mesurés évoluent avec la fréquence du signal injecté. Il montre que la résistivité apparente d'une roche contenant des sulfures disséminés diminue lorsque la fréquence du signal injecté augmente. Ces travaux marquent le début du développement de la méthode polarisation provoquée dans le domaine fréquentiel.

Par la suite, Wait (1959) et Madden and Cantwell (1967) observent que lorsque le courant est injecté sous la forme d'un signal sinusoïdal, la signature du phénomène de polarisation se traduit par un déphasage dans le temps entre le signal injecté (courant) et le signal mesuré (potentiel). Ils remarquent également que ce déphasage peut varier avec la fréquence du signal injecté, et qu'il évolue de différente manière selon le type de milieu étudié. Fraser et al. (1964) parviennent à discriminer différents types de minéralisations en étudiant la dépendance fréquentielle du déphasage sur une gamme allant de 0,1 Hz à 1000 Hz. Ils observent des spectres différents selon le type de minéraux qui composent le milieu et leur degré d'interconnexion. Lorsque l'on étudie les spectres fréquentiels du déphasage pour une gamme de fréquences suffisamment large, on parle alors de *polarisation provoquée spectrale (PPS)*.

Développements au cours des 30 dernières années

Le développement d'instruments de mesure plus précis, plus performants (mesures multiélectrodes, acquisition multi-canaux), la disponibilité croissante d'ordinateurs de plus en plus puissants permettant de résoudre des problèmes numériques plus complexes, ainsi que le développement de modèles spécifiques de polarisation, sont autant de progrès qui ont permis un élargissement considérable du champ d'application de la méthode PP. Ainsi, après avoir débuté par des études principalement orientées vers le domaine minier, la méthode a connu un nouvel essor à partir des années 80. Le domaine d'application s'est notamment étendu à la prospection pétrolière pour la détection des hydrocarbures et à des applications environnementales diverses : Olhoeft (1985) étudie l'influence de l'interaction entre molécules organiques et argiles sur la réponse PP. Vanhala et al. (1992) introduisent l'utilisation de la méthode PP pour l'étude de sites contaminés, et Ward et. al (1995) étudient la corrélation entre les signaux de polarisation et les caractéristiques pétrophysiques et chimiques des sols.

A partir des années 2000, les efforts de la communauté scientifique se focalisent particulièrement sur les relations existants entre les paramètres PP mesurés et les propriétés de transport et structurales des roches. Les auteurs étudient notamment l'évolution des réponses PP en fonction de la *perméabilité* du milieu (e.g., Börner et al., 1996; De Lima and Niwas, 2000; Slater and Lesmes, 2002; Binley et al., 2005; Hördt et al., 2009; Tong et al., 2006b; Revil and Florsch, 2010; Weller et al., 2010a; Zisser et al., 2010b; Attwa and Günther, 2013), et des *paramètres structuraux des roches* (e.g., Scott and Barker, 2003; Slater et al., 2006; Kruschwitz et al., 2010; Weller et al., 2010b; Revil et al., 2012). Paramètres structuraux et propriétés hydrauliques étant étroitement liés, certains auteurs étudient conjointement ces propriétés et leur influence sur les réponses PP (e.g., Tong et al., 2006a; Koch et al., 2011, 2012).

Un nombre important d'auteurs étudie la dépendance des réponses PP avec d'autres observables physico-chimiques tels que *l'état de saturation* du milieu (e.g., Ulrich and Slater, 2004; Cosenza et al., 2007; Ghorbani et al., 2009b; Jougnot et al., 2010; Breede and Kemna, 2012), la *composition chimique du fluide poral* (e.g., Garrouch and Sharma, 1994; Lesmes and Frye, 2001; Skold et al., 2011; Revil and Skold, 2011a; Vaudelet et al., 2011, 011b; Weller et al., 2011a; Weller and Slater, 2012a), *la température* (e.g., Binley et al., 2010; Zisser et al., 2010a; Martinez et al., 2012), la présence de *phases non-aqueuses* (e.g., Cassiani et al., 2009; Schmutz et al., 2010), ou encore l'activité microbienne (e.g., Atekwana and Slater, 2009; Abdel Aal et al., 2010).

Au fil des années de nouveaux domaines d'étude commencent à être investigués plus avant, comme par exemple l'étude et le suivi des signatures PP des matériaux organiques (racines, bois), pour des applications potentielles dans le domaine agricole (e.g., Martin, 2012; Zanetti et al., 2011).

2.2 Origines des signaux PP

De façon générale, pour des fréquences inférieures à 1 kHz, la polarisation d'un géo-matériau résulte de l'accumulation de charges ioniques ou électroniques qui sont mises en mouvements lors de l'injection d'un courant électrique. Cette accumulation résulte en la formation de nombreux dipôles électriques locaux, qui, pris dans leur ensemble, sont responsables de l'apparition d'un voltage secondaire, noté Vs, dont l'amplitude décroît progressivement après la coupure du courant, ce qui donne lieu à l'observation des courbes de décroissance caractéristiques de l'effet PP dans le domaine temporel. Ces phénomènes de polarisation résultent de l'existence à l'équilibre d'une double (ou triple) couche électrique aux interfaces entre les différentes phases qui composent le milieu. On distingue alors des phénomènes de polarisation variés selon les processus mis en jeu, dont les effets peuvent être superposés au sein d'une même réponse PP.

2.2.1 Description de la double couche électrique

La concept de double couche électrique est attribué initialement à Helmholtz (1879) (traduction par Bouty (1879)). Il fut le premier à théoriser l'existence d'une couche compacte d'ions en contact avec une surface métallique chargée. Plus tard, Gouy (1910) et Chapman (1913) développent le concept de double couche diffuse, et Stern (1924) propose une approche incluant à la fois la couche compacte et la couche diffuse de Gouy-Chapman. Pour une description plus détaillée de ces modèles et des développements qui ont suivi les travaux de Otto Stern, on pourra se référer par exemple à Parsons (1990) et Wieckowski (1999).

De façon générale, la formation d'une double couche est un phénomène qui se produit à

l'interface entre deux milieux de conductivité (ou de permittivité) électrique différente. L'un de ces milieux est assez souvent un électrolyte liquide. On peut par exemple observer la formation de doubles couches électriques sur des colloïdes en suspension dans un électrolyte, un sujet très étudié dans la littérature.

En géophysique, on décrit classiquement le concept de double couche électrique à travers le cas d'un grain minéral plongé dans un électrolyte (figure 2.18). La formation de la double couche électrique est la conséquence de l'existence d'un déficit ou excès de charges (selon le point de vue) à la surface du grain. Afin de conserver l'électro-neutralité, ces déséquilibres sont contre-balancés par des contre-ions de signe opposés (initialement présents dans l'électrolyte) qui s'accumulent à la surface des minéraux, constituant ce qu'on appelle aujourd'hui la *couche de Stern*.



FIGURE 2.18 – Modèle de double couche électrique. M représente les cations adsorbés à la surface du minéral et en concentration majoritaire dans la couche diffuse, et A représente les anions. Si l'on considère le plan β qui subdivise la couche de Stern en deux sous-couches, on est dans le cas d'un modèle de triple couche électronique (c.f. Leroy and Revil (2004)). Extrait de Blondel (2014).

Dans le cas de minéraux métalliques, c'est l'accumulation d'électrons d'un côté de la particule métallique et le défaut d'électrons de l'autre côté (selon la direction du champ électrique appliqué) qui permet la formation d'une double couche électrique. On parle de polarisation d'électrode (voir section 2.2.2).

Pour la plupart des autres minéraux, l'existence de cette double couche électrique est la conséquence de réactions de surface qui surviennent lorsque le minéral est mis en contact avec un électrolyte. Dans le cas de la silice, c'est la dissociation des molécules de surface qui crée le déficit de charge. A pH neutre, les groupements silanols SiOH peuvent libérer des protons H+, laissant ainsi des groupements SiO- sur la surface du grain, qui se voit alors attribuer une charge globale négative. Dans le cas des argiles, ce sont des réactions de substitutions isomorphiques dans la maille cristalline qui résulte en un excès de charges négatives en surface (Leroy, 2005).

Afin de conserver l'électroneutralité du milieu, des réactions de complexation et d'adsorption faisant intervenir les ions présents dans l'eau porale forment la couche de Stern.

La couche de Stern ne compense pas totalement l'excès de charge négatif formé à la surface du minéral, il se forme également *une couche diffuse* (ou couche de Gouy-Chapmann) qui contribue à combler cet excès de charge. Au sein de la couche diffuse, la concentration en contreions est prédominante et suit une distribution de Boltzmann. Elle est maximale à l'interface avec la couche de Stern et décroît exponentiellement jusqu'à atteindre l'électrolyte libre où les conditions d'électroneutralité sont respectées (figure 2.18).

2.2.2 Polarisation d'électrode

La polarisation d'électrode a lieu en présence de particules métalliques dans le milieu poreux, ou plus généralement lorsque le courant passe d'un mode de conduction ionique à un mode de conduction électronique. L'application d'un champ électrique entraîne alors une répartition dissymétrique des électrons dans le corps métallique et les charges ioniques s'accumulent à sa surface.

Ce processus est illustré sur la figure 2.19. Les électrons se déplacent dans la direction opposée au champ électrique E, s'accumulent dans la partie gauche du grain métallique. Il en résulte un déficit d'électrons dans la partie droite, soit une charge globale positive. Les charges ioniques présentes dans l'électrolyte vont alors s'accumuler à la surface du grain métallique, créant deux dipôles électriques dont l'intensité dépend de la dimension du corps métallique. Lorsque l'injection de courant est interrompue, le retour progressif des charges à leur état d'équilibre initial implique la décroissance progressive du voltage secondaire induit par ces dipôles.



FIGURE 2.19 – Représentation schématique du phénomène de polarisation d'électrode (ou polarisation métallique). Modifié d'après Chouteau and Giroux (2006).

Remarque : Dans le processus de polarisation d'électrode, c'est la vitesse de rétro-diffusion des anions et cations dans l'électrolyte qui gouverne l'effet PP observé, car le retour à l'équilibre des charges électroniques se fait bien plus rapidement.

Remarque 2: Le schéma simplificateur de la figure 2.19 suggère que la particule métallique bloque l'espace poral, et que ce blocage est nécessaire pour observer une polarisation d'électrodes. Il convient de préciser que ceci est faux. Récemment, Slater et al. (2006) ont étudié la réponse PP de mélanges synthétiques grains métalliques-sable, et ont montré que la polarisation du milieu n'était pas due au blocage éventuel des pores, mais bien à la quantité d'interfaces existant entre les grains métalliques et l'électrolyte (Okay, 2011).

2.2.3 Polarisation de la double couche électrique

Polarisation de la couche de Stern

Lors de l'application d'un champ électrique, les charges ioniques sont mises en mouvement. Les cations qui forment la couche de Stern vont se déplacer dans la direction du champ appliqué. Toutefois, dans la gamme de fréquences ou de périodes d'injection utilisée, les cations n'ont pas le temps de se désorber de la surface du minéral afin de poursuivre leur mouvement. Ils vont donc migrer tangentiellement à la surface du grain, dans la direction du champ appliqué, ce qui résulte en l'apparition d'un gradient de concentration de charge dans la couche de Stern (figure 2.20). Ce gradient constitue alors un dipôle électrique qui participe à la polarisation du milieu. À l'interruption de l'injection de courant, il se produit un phénomène de rétro-diffusion des charges de la couche de Stern vers leur position initiale (Revil et Florsch, 2010). C'est l'intensité du voltage secondaire induit par ces dipôles, et le temps caractéristique de ce retour à l'équilibre, que l'on tente de quantifier en mesurant les paramètres PP du milieu.

En effet, le temps de relaxation, ou la constante de temps de la polarisation, est un paramètre qui peut permettre d'appréhender la taille des grains composant le milieu. Il correspond au temps mis par un porteur de charge pour couvrir le trajet maximal autour d'un grain, soit la demi-circonférence du grain. Pour un même porteur de charge, plus le grain est grand, plus le temps de relaxation est élevé, et plus la fréquence du signal nécessaire pour atteindre la polarisation maximale du grain est faible, et inversement, plus la période d'injection doit être longue (Revil et Florsch, 2010).

Polarisation de la couche diffuse

À notre connaissance, Shilov and Dukhin (1970) sont les premiers à développer les concepts théoriques liés à la polarisation de la seule couche diffuse. Dans ces travaux, ils déterminent pour des fréquences qu'ils qualifient de "moyennes", que le déplacement électroosmotique de la couche diffuse (i.e. induit par l'application d'un champ électrique) est quasi-stationnaire, et que la répartition des charges dans la couche diffuse peut être décrite par une distribution de Boltzmann. Ils développent alors la théorie de la polarisation de la couche diffuse pour cette gamme de fréquences et identifient pour un grain sphérique en suspension la fréquence caractéristique pour laquelle la polarisation présente un déphasage maximal par rapport au champ électrique alternatif appliqué. Ces premiers pas théoriques ont ensuite été approfondis



FIGURE 2.20 – Représentation schématique de la polarisation de la double couche électrique dans le cas d'un grain en suspension dans un électrolyte. Modifié d'après Revil and Florsch (2010).

et généralisés à la double couche électrique, à travers de nombreuses études (e.g., Dukhin et al., 1974; Shilov et al., 2001).

En adoptant une approche qualitative, la couche diffuse est sujette au mêmes types de processus qui ont lieu dans la couche de Stern, les cations majoritaires migrent dans la direction du champ appliqué, ce qui résulte en la formation d'une zone davantage concentrée en cations d'un côté de la particule. Cependant, dans la couche diffuse les ions sont simplement maintenus par les forces électrostatiques en présence, plus faibles que les forces impliqués dans les réactions de sorption-désorption qui peuvent se produire dans la couche de Stern. On pourra alors observer des phénomènes additionnels impliquant des échanges d'ions entre la couche diffuse et l'électrolyte libre et la génération de potentiels de diffusion transitoires, en retard par rapport au champ électrique appliqué, et donc responsables d'un effet PP additionnel (Chelidze and Gueguen, 1999).

2.2.4 Polarisation de membrane

La figure 2.21 représente le processus responsable de la polarisation de membrane. Lorsque la distance entre deux surfaces minérales est suffisamment petite pour que les couches diffuses se chevauchent, il se créé des zones sélectives et non-sélectives dans lesquelles les mobilités des cations et des anions sont différentes (Revil and Leroy, 2004). Les cations présents en majorité dans la double couche électrique (dans le cas de minéraux possédant une charge de surface négative) font entrave à la circulation des anions (généralement plus volumineux). Il en résulte une accumulation des ions et la formation d'un dipôle électrique qui participe à la polarisation du milieu.



FIGURE 2.21 – Représentation schématique de la polarisation de de membrane. Sous l'action d'un champ électrique **E**, la différence de mobilité des anions et cations dans la zone où les couches diffuses de chaque grain se chevauchent provoque une accumulation de charges de part et d'autre de cette zone sélective. Extrait de Vaudelet (2011).

La polarisation dépend donc de deux facteurs principaux :

- 1. La dimension de l'espace poral.
- 2. L'épaisseur de la couche diffuse qui entoure les grains, caractérisée par ce qu'on appelle la *longueur de Debye*.

La polarisation de membrane est donc particulièrement importante en présence d'argiles, lesquels impliquent généralement des espaces poreux très réduits. C'est d'ailleurs dans ce contexte que le concept a été proposé pour la première fois (Madden and Marshall, 1959). Elle peut cependant exister dans n'importe quel milieu pourvu que les dimensions de l'espace poral soient suffisamment faibles par rapport l'épaisseur de la couche diffuse pour provoquer le chevauchement des doubles couches électriques.

La longueur de Debye χ_D correspond à la distance à partir de laquelle les perturbations associées à la surface chargée du minéral sont négligeables. Elle s'exprime par :

$$\chi_D = \sqrt{\frac{\varepsilon_r \varepsilon_0 k_b T}{2e^2 N_A I}} \tag{2.35}$$

avec ε_0 la permittivité diélectrique du vide, ε_r la permittivité diélectrique relative, k_b la constante de Botzmann, T la température (K), e la charge élémentaire de l'électron, N_A le nombre d'Avogadro et I la force ionique de l'électrolyte qui dépend de la concentration et du type d'ions en présence :

$$I = \frac{1}{2} \sum_{i} z_i^2 C_i$$
 (2.36)
avec C_i la concentration molaire de l'espèce ionique i (mol.L⁻¹) et z_i sa valence.

La longueur de Debye est inversement proportionnelle à la racine carrée de la force ionique, elle-même proportionnelle aux concentrations des ions en solution. La polarisation de membrane est donc plus marquée lorsque le fluide poral est faiblement chargé en ions. (Revil and Glover, 1997; Vanhala, 1997; Titov et al., 2002).

2.2.5 Polarisation de Maxwell-Wagner

La polarisation de Maxwell-Wagner intervient pour les gammes de fréquences généralement supérieures ou égales au kHz (Leroy et al., 2008). Elle résulte des contrastes de permittivité diélectrique et de conductivité électrique existant dans le milieu (Chelidze and Gueguen, 1999).

Lorsqu'un champ électrique est appliqué à travers un sol, la composante normale de ce champ doit être égale des deux côtés de l'interface séparant deux constituants de permittivités diélectriques et de conductivités électriques différentes. Cette condition est responsable d'une accumulation de charges libres à l'interface des constituants (figure 2.22), qui entraîne une augmentation de la permittivité diélectrique effective du milieu. La permittivité diélectrique du milieu est alors plus grande que la somme des permittivités diélectriques de ses constituants, (Chen and Or, 2006).



FIGURE 2.22 – Modèle électrique de Maxwell représentant un milieu composé de deux diélectriques d'épaisseur d_1 et d_2 , de conductivité σ_1 et σ_2 et de permittivités diélectriques ε_1 et ε_2 . Modifié d'après Comparon (2005).

Ce type de polarisation résulte donc du nombre de discontinuités qui sépare les différentes phases (liquide-solide-gaz) qui composent le milieu, et du nombre de porteurs de charges qui peuvent se déplacer au sein de ce milieu.

L'effet Maxwell-Wagner porte son nom d'après le physicien Ecossais James Clerk Maxwell, qui fut le premier à décrire cette accumulation de charges à l'interface entre deux milieux de propriétés électriques différentes (Maxwell, 1891). Il propose également un modèle électrique permettant de reproduire cet effet, en représentant chacun des deux milieux par deux circuits RC parallèles, montés en série (figure 2.23).



FIGURE 2.23 – Modèle électrique de Maxwell représentant un milieu composé de deux diélectriques d'épaisseur d_1 et d_2 , de conductivité σ_1 et σ_2 et de permittivités diélectriques ε_1 et ε_2 . Extrait de Comparon (2005).

Cette approche a ensuite été étendue au cas d'une particule en suspension dans un électrolyte par Wagner (1914), ce qui valu à son auteur l'ajout de son nom à la nomination de cet effet de polarisation aux interfaces.

2.2.6 Phénomènes perturbateurs potentiels des mesures PP

Le couplage électromagnétique

Avec le développement de la PPS, de nombreux auteurs commencent à étudier plus en profondeur le phénomène de *couplage électromagnétique* (EM) (e.g., Hallof, 1974; Zonge and Wynn, 1975; Pelton, 1977). Au delà de la réponse du sous-sol seul, le signal mesuré contient aussi des composantes issues du couplage inductif entre les câbles de mesure du potentiel et d'injection du courant qui composent le dispositif, qui peut être accru en présence d'hétérogénéités géologiques (milieu fortement stratifié) ou d'éléments perturbateurs dans le voisinage du milieu d'étude (lignes électriques, pipelines, barrières métalliques etc...). Ces composantes peuvent parfois être largement supérieures à la réponse réelle du sol, qui est généralement celle recherchée par les géophysiciens. Réduire au maximum la part de ces composantes dans le signal mesuré et déconvoluer de la meilleure façon les deux parties du signal sont donc des enjeux cruciaux pour la bonne caractérisation et la bonne compréhension des études géophysiques en PPS. Cet enjeu est devenu de plus en plus important avec l'utilisation grandissante de la méthodes PPS pour des applications environnementales, où les réponses observées et attendues du milieu sont particulièrement faibles.

Sur le terrain, les effets du couplage EM qui s'ajoutent à la réponse PP du milieu sont donc principalement issus de phénomènes de couplage inductifs entre le milieu, les câbles d'injection et les câbles de mesure. De façon générale, les effets du couplage EM augmentent avec l'écartement inter-électrodes, la conductivité du milieu étudié, et la fréquence (Okay, 2011). Pour réduire ces effets au maximum, certains choix de matériel et précautions lors de la mise en place du dispositif de mesure sont possibles :

• La séparation des câbles de mesure et d'injection. Pour beaucoup d'appareils d'ac-

quisition, notamment en PPS (e.g., GDP-32 de Zonge, SIP FUCHS de Radic Research, etc..), cette séparation existe de fait. Cette précaution est à appliquer notamment lors d'études en polarisation provoquée temporelle (PPT), au cours desquelles on procède souvent à des acquisitions tomographiques 2D avec la possibilité procéder à l'injection du courant et à la mesure du potentiel avec un seul et même câble. Dahlin and Leroux (2012) ont montré très clairement l'amélioration des mesures en PPT apportée par cette précaution.

- Le type de câbles utilisés. Les câbles coaxiaux par exemple, parfois appelés blindés, sont composés d'un brin central conducteur entouré d'un matériau diélectrique isolant, lui même entouré d'une tresse conductrice. Leur utilisation exclu les éventuels effets dus au couplage EM car leur structure particulière empêche l'émission ou la réception de tout flux EM extérieur. Leur coût élevé limite malheureusement leur emploi à des petites dispositifs. L'utilisation de câbles d'acquisition en fibre optique (e.g., SIP FUCHS III, Radic Research), de par leur nature isolante, limite également les effets du couplage EM. Ces derniers ne servent toutefois qu'à la transmission du signal, et des câbles métalliques doivent nécessairement être utilisés pour l'injection de courant et la mesure de potentiel proprement dite.
- La disposition des câbles. La disposition géométrique des câbles sur le sol a également une influence forte sur l'amplitude des phénomènes de couplage EM. Les dispositions en rectangle semblent être à privilégier (Schmutz et al., 2014). Le code publié par Ingeman-Nielsen and Baumgartner (2006) permet d'évaluer le couplage EM induit pour une disposition des câbles donnée et un modèle 1D des couches de conductivité qui composent le sol défini par l'utilisateur.
- La résistance de contact des électrodes. Les effets du couplage EM sont exacerbés lorsque la résistance de contact des électrodes augmente. Zonge et al. (1985) avaient déjà observé et étudié ce phénomène lors de prospections CSAMT (Controlled Source Audio Magneto-Telluric). Plus récemment, Ingeman-Nielsen (2005) a étudié à son influence sur le couplage EM dans le contexte de la polarisation provoquée, et confirmé l'importance de veiller à conserver une résistance de contact la plus basse possible pour réduire les effets de couplage.

Lors d'études en laboratoire, les effets de couplage majoritaires sont ceux induits par l'environnement du laboratoire (appareils électroniques en fonctionnement etc...), voir par l'électronique de l'appareil d'acquisition lui-même (Blondel, 2014). Pour supprimer les effets de ce bruit ambiant, la plupart des appareils d'acquisition permettent d'effectuer un étalonnage de l'appareil, qui consiste généralement à la mesure du signal PP sur une résistance, ou un circuit électronique connu. Les mesures ainsi effectuées sont directement retranchées du signal mesuré lors de l'expérience proprement dite.

Cette approche revient finalement à déconvoluer la composante du signal induite par le

couplage EM de la réponse intrinsèque du milieu d'étude à partir de mesures de référence. Ce processus de déconvolution "par soustraction" peut également être envisagé par le calcul et la modélisation de la composante due au couplage. Millett (1967) présente *a priori* la première solution analytique générale permettant de calculer la réponse EM induite par un dispositif d'électrode dipôle-dipôle sur un demi-espace homogène. Dey and Morrison (1973) sont eux les premiers à publier les aspects théoriques relatifs à un problème multi-couche. Sunde (1968) propose de calculer le couplage EM entre deux câbles arbitrairement disposés à la surface du sol en en considérant l'impédance mutuelle entre deux dipôles électriques virtuels, intégrée le long des chemins définissant chaque câble.

$$Z = \int_{A}^{B} \int_{\alpha}^{\beta} \left[P(r) \cos \zeta + \frac{\partial^{2} Q(r)}{\partial S \partial s} \right] ds dS$$
(2.37)

où dS et ds représentent une portion infinitésimale des câbles d'injection et de mesure, r et ζ représentent la distance et l'angle entre les câbles, et P et Q sont des fonctions complexes qui dépendent de la composition du sol.

Un certain nombre d'autres auteurs étudient la modélisation directe de ces effets de couplage (e.g., Hohmann, 1973; Wynn and Zonge, 1975).

Une autre méthode de déconvolution, généralement nommée « three point decoupling » consiste à appliquer une équation linéaire ou quadratique à 2 ou 3 déphasages mesurés à bassses fréquences (e.g., Hallof, 1974; Coggon, 1984), afin de réduire le spectre en une phase supposée découplée, équivalente à une phase de courant continu. Cette méthode est toutefois limitée, puisqu'elle ne permet pas d'évaluer la dépendance fréquentielle de la resistivité (Ingeman-Nielsen, 2005). Elle s'avère particulièrement inefficace à reproduire le couplage EM observé aux hautes fréquences (f > 1 kHz).

Enfin, une troisième méthode assez répandue, introduite par Pelton et al. (1978), consiste à décomposer le signal en deux termes de dispersion chacun décrit par un modèle de type Cole-Cole. L'un est utilisé pour décrire la réponse à basse fréquence du milieu, et l'autre pour représenter la réponse due au couplage EM du système. La définition des paramètres de ce modèle dit "Double Cole-Cole" est encore aujourd'hui le sujet de nombreux travaux de recherche.

Ainsi, le développement de méthodes de déconvolution et/ou de modélisation du couplage EM ou de techniques d'acquisition permettant sa réduction dans les mesures est un sujet crucial en PP, encore étudié activement aujourd'hui (e.g., Routh and Oldenburg, 2001; Radic, 2004; Ingeman-Nielsen and Baumgartner, 2006; Dahlin and Leroux, 2012; Schmutz et al., 2014).

Polarisation des électrodes.

Une autre problématique importante en PP concerne l'influence sur le signal mesuré de la polarisation des électrodes. La circulation du courant peut entraîner l'accumulation de charges à l'interface électrode/ électrolyte, la formation de doubles couches électriques et la modification

significative du potentiel mesuré, et donc de la réponse PP, par rapport à la réponse réelle du milieu (figure 2.24).



FIGURE 2.24 – Représentation schématique de la formation d'une double couche électrique à l'interface électrode/électrolyte lors de l'application d'un champ électrique. Extrait de Ishai et al. (2013).

Cette problématique a été très étudiée dans le domaine médical, où l'application de la spectroscopie diélectrique est particulièrement développée pour l'étude des fluides et tissus biologiques. Les chercheurs de ce domaine ont besoin d'électrodes qui permettent un bon contact avec le tissu biologique, généralement souple, et ont donc rapidement cherché des alternatives aux électrodes métalliques. Ils ont grandement participé à la compréhension du phénomène de polarisation d'électrode et au développement d'électrodes impolarisables. Schwan (1963) propose une description détaillée des méthodes utilisées en biologie médicale pour s'affranchir au maximum des effets de polarisation des électrodes. Ces méthodes peuvent êtres appliquées sans distinction aux problématiques géophysiques (Chelidze et al., 1999). Toujours dans le contexte de la biologie médicale, Ishai et al. (2013) ont publié une excellente review où ils résument les modèles les plus utilisés développés durant les dernières décennies pour décrire les effets de polarisation des électrodes. Ils proposent également une présentation assez exhaustive des techniques existantes pour tenter de corriger ces effets, certaines déjà exposées par Schwan (1963) et d'autres développées plus récemment.

2.3 Eléments d'électromagnétisme

Les processus de polarisation relèvent du comportement du champ électromagnétique et de ses interactions avec les milieux considérés. Il convient donc de rappeler brièvement les théorèmes et paramètres qui permettent de décrire ce comportement, et donc de quantifier ces effets de polarisation.

En 1865, Maxwell (1865) propose un système de 20 équations différentielles à 20 inconnues afin d'unifier les théories de l'électrostatique, de l'induction et du magnétisme, jusque-là considérées indépendantes, autour d'un cadre mathématique précis. Huit ans après, il réécrit sa théorie sous la forme de 8 équations (Maxwell, 1873). C'est ensuite Heaviside (1893) qui a ramené ce système aux 4 équations sous la forme vectorielle que l'on connaît bien aujourd'hui.

En milieu homogène, localement, en dehors des sources, les équations de Maxwell s'écrivent :

Equation de Maxwell-Gauss

$$div(\vec{d}) = q_v \tag{2.38}$$

Equation de Maxwell-Thomson

$$div(\vec{b}) = 0 \tag{2.39}$$

Equation de Maxwell-Faraday

$$\overrightarrow{rot}(\overrightarrow{e}) = -\frac{\partial \overrightarrow{b}}{\partial t}$$
(2.40)

Equation de Maxwell-Ampère

$$\overrightarrow{rot}(\overrightarrow{h}) = \overrightarrow{j_c} + \frac{\partial \overrightarrow{d}}{\partial t} = \overrightarrow{j_c} + \overrightarrow{j_d}$$
(2.41)

avec \overrightarrow{d} le vecteur déplacement diélectrique (C.m⁻²), q_v la densité volumique de charges électriques (C.m⁻³), \overrightarrow{e} le champ électrique (V.m⁻¹), \overrightarrow{h} le champ magnétique (A.m⁻¹), \overrightarrow{b} l'induction magnétique (en Tesla), $\overrightarrow{j_c}$ le vecteur densité de courant de conduction (A.m⁻²) et $\overrightarrow{j_d}$, le vecteur densité de courant de déplacement.

N.B: Les développements de ces équations, ci-après, suivent un cheminement inspiré de la thèse de Kessouri (2012).

On peut définir le vecteur densité de courant totale comme la somme du courant de déplacement et du courant de conduction :

$$\overrightarrow{j}_t = \overrightarrow{j}_c + \overrightarrow{j}_d \tag{2.42}$$

Pour résoudre entièrement le système des équations de Maxwell, on a besoin d'introduire des relations constitutives qui permettent de décrire le comportement des différents champs en fonction des différents paramètres régissant la réalité (ou le modèle) physique dans lequel on se place, comme la position du point de mesure, la fréquence et l'amplitude du champ appliqué, ou les paramètres relatifs aux propriétés physiques du milieu (pression, température etc...).

Ces relations constitutives sont au nombre de 3. Pour un milieu homogène et isotrope, où la position du point de mesure n'a pas d'influence, elles relient :

• La densité de courant de conduction et le champ électrique :

$$\overrightarrow{J_c} = \sigma^*(\omega).\overrightarrow{E} \tag{2.43}$$

Où le paramètre constitutif σ^* s'appelle la conductivité électrique complexe. Elle peut donc s'écrire sous la forme $\sigma^* = \sigma' + i\sigma''$ avec σ' et σ'' en S.m⁻¹.

On peut aussi introduire sa quantité inverse, la résistivité électrique complexe $\rho^* = \rho' + i\rho''$ (en $\Omega.m$), bien que dans ces travaux (et de façon générale dans la littérature), on utilise principalement la grandeur conductivité.

• L'induction électrique et le champ électrique :

$$\overrightarrow{D} = \varepsilon^*(\omega).\overrightarrow{E} \tag{2.44}$$

Où ε^* est la permittivité diélectrique complexe : $\varepsilon^* = \varepsilon' - i\varepsilon''$ avec ε' et ε'' en F.m⁻¹. La partie réelle de la permittivité diélectrique est généralement exprimée en termes de permittivité diélectrique relative à la permittivité diélectrique du vide : $\varepsilon' = \varepsilon_0 \varepsilon'_r$ où ε_0 est la permittivité diélectrique du vide, et vaut 8,85.10⁻¹² F.m⁻¹. La partie imaginaire traduit la dissipation d'énergie liée au déplacement ou à la réorientation des porteurs de charges. On parle de pertes diélectriques. Le signe moins dans l'expression de la permittivité diélectrique complexe est introduit par convention, de façon à ce que σ' , ε'' , σ' et σ'' soient toujours positifs.

• L'induction magnétique et le champ magnétique :

$$\overrightarrow{B} = \mu^*(\omega).\overrightarrow{H}$$
(2.45)

Où μ^* est la perméabilité magnétique complexe : $\mu^* = \mu' + i\mu''$ avec μ' et μ'' en H.m⁻¹. On peut aussi l'exprimer en termes de susceptibilité magnétique $\mu^* = \mu_0 \mu_r^* = \mu_0 (1 + \kappa^*)$ avec κ^* la susceptibilité magnétique complexe, et μ_0 la perméabilité magnétique du vide $(\mu_0 = 4\pi . 10^{-7} \text{ H.m}^{-1})$. Dans ces travaux, on considère la perméabilité magnétique des milieux étudiés comme étant égale à celle du vide.

Si l'on réécrit les équations de Maxwell en introduisant les relations constitutives présentées précédemment on obtient :

Equation de Maxwell-Gauss

$$\varepsilon^*(\omega).div(\overrightarrow{E}) = 0 \tag{2.46}$$

(A l'échelle macroscopique, on est en présence d'autant de charges négatives que de charges positives, et la densité volumique de charge électrique q_v est estimée nulle $(q_v = 0)$).

Equation de Maxwell-Thomson

$$\mu_0.div(\overrightarrow{H}) = 0 \tag{2.47}$$

Equation de Maxwell-Faraday

$$\overrightarrow{rot}(\overrightarrow{E}) = -i\omega\mu_0.\overrightarrow{H}$$
(2.48)

Equation de Maxwell-Ampère

$$\overrightarrow{rot}(\overrightarrow{H}) = \sigma^*(\omega).\overrightarrow{E} + i\omega\varepsilon^*(\omega).\overrightarrow{E}$$
(2.49)

Après ce développement, on peut exprimer la densité totale de courant en fonction de la conductivité et de la permittivité complexe, on a :

$$\overrightarrow{J}_t = \overrightarrow{J}_c + \overrightarrow{J}_d = \left[\sigma^*(\omega) + i\omega\varepsilon^*(\omega)\right].\overrightarrow{E}$$
(2.50)

Cette expression décrit le comportement du champ électrique en fonction de la densité de courant de laquelle il résulte, au travers des paramètres complexes permittivité et conductivité. En développant les grandeurs complexes en partie réelles et imaginaires, l'équation 2.50 donne :

$$\overrightarrow{J}_{t} = \left[(\sigma'(\omega) + i\sigma''(\omega)) + i\omega(\varepsilon'(\omega) - i\varepsilon''(\omega)) \right] . \overrightarrow{E}$$
(2.51)

Soit :

$$\vec{J}_t = \left[(\sigma'(\omega) + \omega \varepsilon^{''}(\omega)) + i\omega(\varepsilon'(\omega) + \frac{\sigma^{''}(\omega)}{\omega}) \right] \cdot \vec{E}$$
(2.52)

Dans la pratique, lorsque l'on mesure le déphasage et le rapport des amplitudes entre le signal d'injection et le signal de mesure, c'est-à-dire lorsque l'on réalise une mesure de polarisation provoquée spectrale, la quantité complexe que l'on peut calculer à partir de ces paramètres correspond à la quantité complexe entre crochets dans l'équation 2.52. Les valeurs mesurées dépendent de la densité totale de courant (influence de la densité de courant de conduction et influence de la densité de courant de déplacement). On doit alors introduire des grandeurs effectives pour exprimer le résultat des mesures en fonction des grandeurs théoriques.

Le terme entre crochets de l'équation 2.52 peut alors être exprimé en tant que conductivité effective complexe σ_{eff}^* ou en tant que permittivité diélectrique effective complexe ε_{eff}^* :

$$\overrightarrow{J}_t = \sigma_{eff}^*(\omega).\overrightarrow{E}$$
(2.53)

ou

$$\overrightarrow{J}_t = i\omega\varepsilon^*_{eff}(\omega).\overrightarrow{E}$$
(2.54)

 avec

$$\sigma'_{eff}(\omega) = \sigma'(\omega) + \omega \varepsilon''(\omega)$$
(2.55)

$$\sigma_{eff}^{''}(\omega) = \omega \varepsilon_{eff}^{'}(\omega) = \sigma^{''}(\omega) + \omega \varepsilon^{\prime}(\omega)$$
(2.56)

$$\varepsilon_{eff}^{'}(\omega) = \varepsilon^{\prime}(\omega) + \frac{\sigma^{''}(\omega)}{\omega}$$
(2.57)

$$\varepsilon_{eff}^{''}(\omega) = \frac{\sigma_{eff}^{'}(\omega)}{\omega} = \varepsilon^{''}(\omega) + \frac{\sigma^{'}(\omega)}{\omega}$$
(2.58)

Les deux grandeurs complexes, permittivité ou conductivité, peuvent être employées indifféremment. Dans la pratique, on utilise généralement la conductivité effective complexe lorsqu'on travaille aux basses fréquences (< 1 kHz), puisque dans ce cas on a $\sigma_{eff}^{''}(\omega) \approx \sigma^{''}(\omega)$ et $\sigma_{eff}^{'}(\omega) \approx \sigma^{'}(\omega)$, et la permittivité diélectrique effective complexe lorsque l'on travaille aux hautes fréquences puisque quand ω est élevé, on a $\varepsilon_{eff}^{'} \approx \varepsilon^{'}(\omega)$ et $\varepsilon_{eff}^{''} \approx \varepsilon^{''}(\omega)$.

2.4 Polarisation Provoquée Temporelle (PPT)

2.4.1 Principe - paramètres caractéristiques

Dans le domaine temporel, les mesures de polarisation provoquée suivent le principe suivant : On applique un courant pseudo-continu en créneaux d'intensité I dans le milieu. Le voltage total V_0 mesuré une fois le système stabilisé est la somme du voltage induit par l'injection de courant et du voltage secondaire induit par l'existence de phénomènes de polarisation (V_s) (figure 2.25).



FIGURE 2.25 – Principe d'acquisition d'un mesure en polarisation provoquée temporelle. Lors d'une injection de courant en créneaux, on étudie la forme de la courbe de décroissance du potentiel secondaire V_s . Modifié d'après Blondel (2014).

Le temps caractéristique de décroissance du potentiel secondaire V_s (le temps de retour à un potentiel nul) est généralement de l'ordre de la seconde, mais peut parfois atteindre plusieurs minutes. C'est en étudiant la forme et l'amplitude de cette courbe de décharge que l'on obtient des informations sur l'amplitude des phénomènes de polarisation qui surviennent dans le milieu, on parle de *chargeabilité* du milieu.

Plusieurs définitions ont été proposées dans la littérature, la chargeabilité apparente au sens de Seigel (1959) s'écrit :

$$M_a = \frac{V_s}{V_0} \tag{2.59}$$

avec M_a la chargeabilité apparente (exprimée en mV.V⁻¹), V_s l'amplitude du potentiel secondaire (en mV car généralement très faible) mesurée après la coupure de l'injection de courant, et V_0 le potentiel total (en V) mesuré au cours de l'injection de courant, en théorie à un instant t où le potentiel est stabilisé. Dans la pratique, il est difficile d'obtenir une véritable estimation du potentiel secondaire V_s . En théorie il devrait être mesuré à l'instant immédiatement après la coupure de l'injection de courant. Cependant, l'ouverture brutale du circuit provoque l'apparition de nombreux courants transitoires d'intensité variable au sein du circuit électrique et dans le sol, qui viennent bruiter les mesures. Il est donc nécessaire d'attendre un certain temps (généralement 0,1 s suffisent) avant de commencer à mesurer le voltage secondaire. Nécessairement, les valeurs mesurées ne prenent pas en compte l'amplitude maximale de V_s . Pour s'affranchir de ce problème, il est possible de mesurer la courbe voltage-temps sur une fenêtre temporelle pour laquelle les courants transitoires sont absents, et d'extrapoler cette courbe vers le temps t correspondant à la coupure de l'injection. Toutefois cette approche n'est que rarement utilisée à notre connaissance. Dans la plupart des cas, la mesure de V_s avec un léger retard permet tout de même d'appréhender l'ampleur des contrastes de chargeabilité existant dans le sous-sol, information principale recherchée par le géophysicien. Il est rarement nécessaire de déterminer les valeurs "absolues" de la chargeabilité.

Aujourd'hui, une définition communément rencontrée dans la littérature est la chargeabilité apparente intégrée définie par :

$$M = \frac{1}{V_0} \int_{a}^{b} V(t) dt$$
 (2.60)

avec V_0 le potentiel total mesuré pendant l'injection lorsque le signal est stable (en V), V(t)le potentiel mesuré à un instant t (en V), [a, b] l'intervalle de temps sur lequel est calculée cette intégrale (en s), et M la chargeabilité apparente intégrée (ms).(Figure 2.26). Comme dans le cas des résistivités apparentes, on parle ici de chargeabilité apparente car la valeur effectivement mesurée est le résultat de l'ensemble des contributions en chargeabilité du milieu, qui sont aussi nombreuses et variées que le milieu est hétérogène. La valeur de chargeabilité mesurée correspondrait à la chargeabilité réelle du milieu uniquement si celui-ci était parfaitement homogène.



FIGURE 2.26 – Principe de mesure de la chargeabilité apparente intégrée.

Les valeurs de chargeabilité mesurées dépendent donc de l'instant où l'on débute la mesure, du nombre et de la largeur des fenêtres temporelles choisies, et de l'instant où l'on termine la mesure. Il est donc important d'utiliser les mêmes définitions de la chargeabilité si l'on désire comparer des valeurs issues de campagnes de mesure distinctes. De la même façon, dans la pratique, la valeur de chargeabilité calculée n'est pas la valeur exacte de l'intégrale sur l'intervalle de temps choisi, mais le résultat d'un calcul approché de l'intégrale, obtenu généralement par une discrétisation du signal en rectangles. Les paramètres de discrétisation du signal influeront donc également la valeur de chargeabilité obtenue, et doivent également être pris en compte lors d'une éventuelle comparaison.

Dans un certain nombre d'études (e.g., Ustra et al., 2012; Blondel, 2014), les auteurs choisissent d'exprimer les valeurs de chargeabilité en les normalisant par les valeurs de résistivité du milieu (ρ), on parle alors de chargeabilité normalisée, généralement notée M_n .

$$M_n = \frac{M}{\rho} \tag{2.61}$$

Cette approche permet de s'affranchir des variations de résistivité du milieu et de manipuler une grandeur qui représente exclusivement l'amplitude de la polarisation du milieu (Slater and Lesmes, 2002), et qui est donc particulièrement indiquée pour comparer des chargeabilités issues de campagnes de mesures différentes, ou lors d'un suivi temporel.

2.4.2 Mise en œuvre sur le terrain

De la même façon que pour la mesure de la résistivité électrique, on mesure la chargeabilité d'un milieu en utilisant deux électrodes pour l'injection du courant et deux électrodes pour la mesure du potentiel. En déplaçant ce quadripôle et en faisant varier l'écartement respectif des électrodes, on peut réaliser des tomographies de chargeabilité, selon le même mode opératoire que pour une tomographie de résistivité électrique (c.f. section 1.1.5). Dans la pratique, comme en ERT, les instruments de mesure en PPT possèdent un système d'acquisition multi-canal et permettent donc la mise en place de lignes d'électrodes et l'utilisation de protocoles de mesures tomographiques.

Dans cette thèse, nous avons réalisé les mesures de PPT sur le terrain à l'aide du même appareil d'acquisition utilisé pour l'ERT, développé par ABEM (figure 2.16).

Paramètres d'acquisition

Comme expliqué précédemment, il est nécessaire d'observer un délai après la coupure du courant avant de débuter la mesure de chargeabilité, afin de s'affranchir des courants transitoires qui se produisent dans le circuit et le sol au moment de la coupure. La valeur de ce délai doit être choisie avec précaution selon le type de polarisation rencontrée dans le milieu. Si ce délai est trop long et que le milieu est peu polarisant, la partie significative de la courbe de décroissance ne sera pas prise en compte et l'on perdra en information. Sur cet appareil d'acquisition, le délai peut être choisi sur la plage [0,01s - 10 s].

La mesure de la chargeabilité se fait alors en discrétisant la courbe de décroissance selon 10 fenêtres temporelles de largeur variables. Concrètement, l'appareil réalise 11 mesures de potentiel, et intègre les valeurs obtenues sur chacune des 10 fenêtres temporelles. On obtient ainsi 10 valeurs de chargeabilité dites « partielles », qui, additionnées, nous donnent la valeur de chargeabilité « totale ». La largeur des fenêtres peut être choisie constante ou suivre une augmentation logarithmique, et doit être adaptée à la problématique de l'étude, en privilégiant les temps longs si l'on espère rendre compte de l'ensemble des phénomènes de polarisation qui se produisent dans le milieu, puisque certains processus sont caractérisés par un temps de polarisation et de relaxation plus long que d'autres.

Précautions de mise en œuvre

Il existe deux types de précautions particulièrement importantes à prendre lors de la mise en œuvre d'une mesure en PPT.

Tout d'abord, on essaie de minimiser autant que possible les effets liés à la polarisation des électrodes (c.f. section 2.2.6). Dans ce sens, il est conseillé d'utiliser deux jeux d'électrodes distincts pour l'injection du courant et la mesure du potentiel. On évite ainsi le risque d'effectuer une mesure de potentiel sur une électrode récemment polarisée par l'injection du courant. Il est également conseillé d'utiliser des électrodes impolarisables pour la mesure du potentiel, par exemple de type Pb/PbCl₂ ou Cu/CuSO₄. Dahlin et al. (2002) ont bien montré qu'il était possible d'utiliser des électrodes métalliques, dans la mesure où le bruit sur ces électrodes ne variait pas dans le temps, et pouvait donc ainsi être corrigé (tout du moins dans leur cas d'étude). On conseillera cependant l'utilisation d'électrodes impolarisables puisqu'elles présentent une meilleure continuité avec le milieu, ne dérivent pas à l'échelle de temps de la mesure et ne nécessitent pas de correction post-acquisition (Dahlin et al., 2002). Dans notre cas, nous avons utilisé pour les mesures PPT des électrodes impolarisables de type Cu/CuSO₄, développées à l'origine par Ghorbani (2007). Ces électrodes, fabriquées à la main, ont l'avantage d'être peu coûteuses. Elles sont constituées d'une céramique poreuse présentant une surface de contact d'à peu près 50 cm², remplie d'une solution de sulfate de cuivre sursaturée dans laquelle est plongé un fil de cuivre sur lequel on vient connecter les câbles de mesure du potentiel (figure 2.27).

Une deuxième précaution vise à réduire au maximum les effets liés au couplage électromagnétique (c.f. section 2.2.6). Pour ce faire, il est conseillé d'utiliser des câbles différents pour la mesure du potentiel et l'injection du courant, et de les éloigner autant que possible l'un de l'autre. Cette précaution peut parfois compliquer légèrement la mise en œuvre du dispositif sur le terrain, mais améliore sensiblement la qualité des mesures et donc la pertinence et la quantité d'informations issues de l'étude, comme l'ont notamment montré Dahlin and Leroux (2012).



FIGURE 2.27 – a) Exemple de la mise en place d'une électrode sur le terrain. b) Représentation schématique du mode de fabrication des électrodes impolarisables $Cu/CuSO_4$ utilisées pour les mesures de PPT sur le terrain. Modifié d'après Ghorbani (2007).

2.4.3 Traitement des données

Suppression des données aberrantes

Lors d'une acquisition en PPT, on mesure simultanément la résistivité apparente et la chargeabilité apparente. On applique donc en premier lieu la même démarche sélective qu'en ERT (détaillée à la section 1.1.5), c'est-à-dire l'élimination des points présentant de trop faibles différences de potentiel (< 0,1 V) et la suppression des données aberrantes à l'aide de l'option "exterminate bad datum points" du logiciel Res2Dinv (Loke and Barker, 1996), utilisé *a posteriori* pour l'inversion des données.

Du point de vue de la chargeabilité, on peut également éliminer les points aberrants en examinant la forme des courbes de décroissance correspondant à chaque point de mesure. En théorie les courbes de décroissance doivent présenter une forme monotone décroissante. Certaines d'entre elles peuvent avoir un comportement anormal possiblement lié à un bruit environnant, comme des oscillations (figure 2.28). On supprime alors les points de mesure qui présentent des courbes de décroissance non satisfaisantes. N.B : si des anomalies sont observées uniquement en fin de courbe de décroissance, le point de mesure n'est pas forcément à exclure. Cela peut simplement signifier que le signal à suffisamment diminué et qu'il se trouve désormais confondu dans le bruit naturel.

Inversion des données

Les processus mis en jeu pour l'inversion des données sont les mêmes que ceux utilisées lorsqu'on inverse une pseudo-section de résistivité apparente. On cherche à estimer de la meilleure façon la distribution de chargeabilités *vraie* du milieu, en résolvant le problème direct sur un modèle qui évolue au fil des itérations, de manière à minimiser une fonction coût.



FIGURE 2.28 – Exemples de courbes de décroissance observables sur une jeu de données de chargeabilité partielles. Les courbes présentant des comportements anormaux (en rouge) sont supprimées du jeu de données. Extrait de Blondel (2014).

Dans notre cas, nous avons utilisé à nouveau le logiciel Res2Dinv (Loke and Barker, 1996). Pour l'inversion des données de PPT, Res2Dinv s'appuie sur les travaux de thèse de Kemna (2000) qui propose des développements théoriques et appliqués pour l'inversion tomographique de la résistivité complexe. Le programme propose alors plusieurs options propres à l'inversion des données en PPT, notamment la possibilité d'inverser les données de résistivité et de chargeabilité conjointement ou séparément.

2.4.4 Exemples d'applications

Nous présentons ici quelques cas pratiques d'application de la méthode PPT à des problématiques environnementales de terrain.

Cartographie et surveillance de sites d'enfouissement de déchets.

La mise en décharge des déchets solides soulève des problématiques environnementales sérieuses car les processus de dégradation des déchets libèrent des produits polluants sous phase solide, liquide ou gazeuse. Dans ce contexte, Gazoty et al. (2012) ont appliqué la méthode PPT à la délimitation et la caractérisation d'une décharge abandonnée à Eskeelund au Danemark. À partir de 13 profils longitudinaux de PPT, les auteurs ont appliqué aux données un algorithme d'inversion latéralement contrainte (Fiandaca et al., 2012), afin de recouvrir les paramètres du modèle Cole-Cole (c.f. section 2.5.2) dans le domaine temporel au sens de Pelton et al. (1978). Ces paramètres sont : la chargeabilité M_0 mesurée au début de la courbe de décroissance, la constante de relaxation τ et le facteur fréquence c. À partir de ces paramètres, les auteurs sont parvenus à localiser la couche de déchets enfouis avec précision, bien que celle-ci présente une forte variabilité horizontale et ont pu confirmer la qualité de leurs résultats par des forages *in-situ*. La couche de déchets est ainsi localisée par des valeurs des paramètres Cole-Cole particulièrement élevées (figure 2.29), confirmant des observations faites lors d'études précédentes sur des problématiques similaires (e.g., Carlson et al., 2001; Johansson et al., 2007; Leroux et al., 2010). En s'appuyant sur les résultats de ces études, et sur les travaux de Pelton et al. (1978) et Seigel et al. (1997), il semble que la mesure des paramètres PPT permettent non seulement de délimiter la zone contenant les déchets, mais également de discriminer les différents types de déchets au sein de cette zone (concentration en matière organique, nature des particules métalliques disséminées, présence de boue, de charbon).



FIGURE 2.29 – Exemple d'un profil de résistivité (en haut) et de chargeabilité M_0 (en bas), obtenu après inversion par Gazoty et al. (2012). La couche de déchets enfouis est bien localisée dans la zone attendue. Elle est caractérisée par de plus hautes valeurs de chargeabilité M_0 , qui permettent également d'estimer son épaisseur. Extrait de Gazoty et al. (2012).

Détection et suivi de panaches de polluants

Sogade et al. (2006) utilisent la méthode PPT pour localiser et caractériser un panache polluant, conséquence d'une rupture dans les années 1970 aux Etats-Unis d'un pipeline transportant du carburant, qui a résulté en un déversement d'à peu près 265 m³ de fuel qui s'est ensuite infiltré dans le sous-sol. Ce panache est composé principalement de benzène et d'éthylène dibromure. Cet accident a fait l'objet d'un suivi régulier depuis les années 1990, notamment lors de programme de recherche initiés par l'équivalent du ministère de l'énergie aux E.U (DOE, "Department of Energy), si bien que le panache a été raisonnablement bien caractérisé grâce à des prélèvements *in-situ* qui ont permis d'identifier notamment les zones de hautes concentration en benzène ainsi qu'en éthylène dibromure (figure 2.30).



FIGURE 2.30 – Extrapolation des concentrations en benzène et éthylène dibromure (EDB) basé sur les mesures *in-situ* réalisées dans les puits de surveillance GMW30, GMW32 et GMW33, mis en place dans les années 1990 par le DOE ("Departement of Energy"). Extrait de Sogade et al. (2006).

Sogade et al. (2006) ont alors réalisé un profil de mesure en PPT qui traverse partiellement la zone contaminée par le panache, selon une direction parallèle à celle définie par les puits de mesure *in-situ* GMW30, GMW32 et GMW33 de la figure 2.30. Les résultats obtenus (figure 2.31) montrent que la méthode PPT est en effet capable de localiser de façon satisfaisante la zone de haute concentration en polluants, qui est caractérisée par une anomalie de haute chargeabilité. Les auteurs ne proposent pas d'explication phénoménologique poussée, mais supposent que ces hautes valeurs observées résultent de l'adsorption sur la surface des minéraux des polluants dissouts qui composent le panache, amplifiant ainsi la polarisabilité du milieu. Le point particulièrement intéressant dans cette étude est que les mesures de chargeabilité permettent de localiser le coeur du panache, alors que les résistivités inversées ne le permettent pas. La tomographie de résistivité électrique détecte généralement les panaches de polluants grâce aux variations de conductivité électrique du fluide poral qu'ils induisent. Dans le cas présent, ces variations sont masquées par la présence d'une zone fortement conductrice en dessous d'une profondeur de 50 m, probablement due à la présence d'argiles selon les auteurs. Cette étude illustre bien la complémentarité des méthodes de résistivité classiques et ses mesures en polarisation provoquée. La question de la complémentarité est également mise en valeur dans les travaux de Leroux et al. (2010), cités dans l'exemple précédent.



FIGURE 2.31 – Extrapolation des concentrations en benzène et éthylène dibromure (EDB) basé sur les mesures *in-situ* réalisées dans les puits de surveillance GMW30, GMW32 et GMW33, mis en place dans les années 1990 par le DOE ("Departement of Energy"). Extrait de Sogade et al. (2006).

2.5 Polarisation Provoquée Spectrale (PPS)

2.5.1 Principe - paramètres caractéristiques

Le principe d'une mesure de polarisation provoquée dans le domaine fréquentiel consiste à injecter un courant électrique non plus sous la forme d'un signal pseudo-continu en créneaux, mais un courant alternatif, de forme sinusoïdale, à une fréquence donnée. La différence de potentiel mesurée est alors également un signal sinusoïdal, de fréquence identique au signal d'injection, mais décalé dans le temps par rapport à celui-ci. C'est ce décalage temporel entre les deux signaux - qu'on appelle le *déphasage* ou la *phase* - qui traduit les phénomènes de polarisation et de relaxation du milieu dans le domaine fréquentiel (figure 2.32). Les signaux étant sinusoïdaux, le déphasage est considéré par convention comme un angle (on illustre le phénomène sur un cercle trigonométrique), et s'exprime donc en degrés ou en radians. Le rapport d'amplitude des signaux mesurés et d'injection, corrigé du facteur géométrique, donne accès à la résistivité apparente du milieu. En PPS, on parle alors d'*amplitude* de la mesure. L'amplitude intervient dans la définition des paramètres complexes définis ci-dessous, et est généralement notée $|\rho|$.

Le principe des mesures en PPS consiste alors à effectuer des mesures sur une gamme de fréquences plus ou moins large, généralement comprise entre 1 mHz et quelques kHz, afin d'étudier la dépendance fréquentielle de la phase, de l'amplitude et des paramètres complexes définis ci-après.



FIGURE 2.32 – Principe d'acquisition d'une mesure en PPS. Le décalage temporel entre le signal injecté et le signal de mesure Δt , rapporté à leur fréquence angulaire ω permet de calculer le déphasage ϕ , et le rapport des amplitudes des 2 signaux permet d'accéder à la résistivité apparente du milieu (après correction par le facteur géométrique), que l'on définit comme l'amplitude du signal PPS. Modifié d'après Blondel (2014).

Paramètres complexes en PPS

Ainsi que nous l'avons introduit en section 2.3, les propriétés capacitives et de conduction d'un matériau peuvent être représentées par une grandeur constitutive complexe. Aux fréquences utilisés en PPS (entre le mHz et le kHz), on utilise généralement la conductivité complexe σ^* , et l'on a :

$$\sigma^* = \frac{1}{\rho^*} = i\omega\varepsilon^* \tag{2.62}$$

où ρ^* et ε^* sont respectivement la résistivité et la permittivité complexe ω la fréquence angulaire ($\omega = 2\pi f$).

La conductivité complexe est reliée aux paramètres mesurés *phase* (φ) et *amplitude* ($|\rho|$). En tant que grandeur complexe, elle peut être exprimée sous sa forme cartésienne ou sous sa forme polaire :

$$\sigma^* = |\sigma| \left(\cos\varphi + i\,\sin\varphi\right) = |\sigma| \,e^{i\varphi} \tag{2.63}$$

оù

$$|\sigma| = \frac{1}{|\rho|}$$

Dans la plupart des cas, on exprime la conductivité complexe en termes de conductivité réelle σ' et conductivité imaginaire σ'' . On fait parfois référence à ces quantités respectivement comme la conductivité en phase et la conductivité en quadrature de phase. Ces deux paramètres sont donc reliés aux valeurs de phase et d'amplitude effectivement mesurés par les relations suivantes :

$$\sigma' = |\sigma| \cos\varphi \tag{2.64}$$

 et

$$\sigma'' = |\sigma|\sin\varphi \tag{2.65}$$

avec aussi :

$$\varphi = \tan^{-1} \left(\frac{\sigma''}{\sigma'} \right) \tag{2.66}$$

Dans la suite, nous ferons souvent référence à la partie réelle et à la partie imaginaire de la conductivité complexe respectivement comme la conductivité réelle et la conductivité imaginaire.

On peut également rencontrer dans la littérature, deux autres paramètres utilisés dans le domaine fréquentiel : le pourcentage d'effet de fréquence, PFE, défini par la relation :

$$PFE = \frac{\sigma_{HF} - \sigma_{BF}}{\sigma_{BF}} * 100 \tag{2.67}$$

et le facteur métal MF :

$$MF = 2\pi 10^5 (\sigma_{HF} - \sigma_{BF})$$
 (2.68)

où σ_{BF} représente la conductivité mesurée aux basses fréquences (avec $\sigma = \frac{1}{|\rho|}$), i.e généralement à une fréquence inférieure à 1 Hz, et σ_{BF} représente la conductivité mesurée aux hautes fréquences, i.e généralement à une fréquence supérieure à 10 Hz.

La conductivité réelle, σ' , quantifie essentiellement les propriétés de conduction ohmique du milieu, alors que la conductivité imaginaire, σ'' , traduit principalement l'ampleur des mécanismes de polarisation qui se produisent aux interfaces des différentes phases qui composent le milieu (polarisation de membrane, d'électrode, de la double couche électrique, Maxwell-Wagner etc...). Les paramètres comme le pourcentage d'effet de fréquence PFE, ou le déphasage φ , rendent compte eux de l'ampleur du rapport entre les propriétés capacitives du milieu (sa polarisabilité) et les propriétés de conduction.

Représentation des mesures

La polarisation provoquée spectrale trouve sa spécificité dans le fait qu'elle permet d'étudier la dépendance fréquentielle des propriétés capacitives des géomatériaux, et d'identifier certains phénomènes de polarisation d'après la fréquence caractéristique à laquelle ils interviennent. On représente alors communément les données en fonction de la fréquence sur un graphique log-log (exemple figure 2.33). Aujourd'hui, on représente généralement les paramètres de phase φ et d'amplitude $|\rho|$ afin d'évaluer et de discuter la qualité des mesures, puisque ce sont les paramètres effectivement mesurés par les appareils d'acquisition. Pour interpréter l'ampleur des phénomènes de conduction et de polarisation, on préfèrera utiliser les conductivités réelles et imaginaires σ' et σ'' car ces grandeurs décrivent de façon distinctes les propriétés de conduction et capacitives du milieu étudié. On peut également représenter la relation entre les propriétés de conduction et de polarisation du milieu et la dépendance fréquentielle de cette relation grâce à un diagramme d'Argand (graphique c) de la figure 2.33).



FIGURE 2.33 – Cette figure présente deux façons possibles de représenter les spectres fréquentiels pour les données de PPS. a) résistivité et phase. b) Conductivités réelle et imaginaire. c) Diagramme d'Argand. Les données représentées ici ne sont pas issues de mesures réelles, elles correspondent aux valeurs calculées en appliquant le modèle Cole-Cole (voir section 2.5.2), un modèle bien connu, utilisé pour décrire les réponses en permittivité ou en conductivité complexes. Extrait de Ghorbani (2007).

2.5.2 Quelques modèles en PPS

Modèle de Debye

Debye (1929) a développé un modèle relativement simple permettant de modéliser la relaxation d'un milieu homogène (en l'occurrence, dans son cas, des liquides dipolaires). Ce modèle relie les parties réelles et imaginaires de la permittivité diélectrique complexe avec la fréquence du signal d'injection, selon la forme :

$$\varepsilon'(\omega) - i\varepsilon''(\omega) = \varepsilon_{\infty} + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_{\infty}}{(1 + i\omega\tau_0)}$$
(2.69)

avec ε_{∞} la permittivité diélectrique aux hautes fréquences (F.m⁻¹), ε_s la permittivité diélectrique aux basses fréquences (statique) (F.m⁻¹), τ_0 la constante de relaxation du milieu homogène (s) et ω la fréquence angulaire (Hz).

Ce modèle a servi de base au développement de nombreux modèles de relaxation, notamment au populaire modèle Cole-Cole.

Modèle Cole-Cole

Un des inconvénients du modèle de relaxation défini par Debye (1929) est qu'il ne permet pas la prise en compte de la dispersion des valeurs autour de la constante de relaxation, que l'on observe souvent lors de mesures sur des milieux poreux. Le modèle développé par Cole and Cole (1941) est une modification directe du modèle de relaxation défini par Debye (1929), ayant pour objectif l'introduction de ce comportement dispersif. Cette modification consiste alors en l'ajout d'un coefficient α , compris entre 0 et 1 tel que :

$$\varepsilon'(\omega) - i\varepsilon''(\omega) = \varepsilon_{\infty} + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_{\infty}}{(1 + (i\omega\tau_0)^{1-\alpha})}$$
(2.70)

Du fait de la géométrie du milieu, un même mécanisme de polarisation pourra être observé avec un léger retard par rapport à la fréquence de relaxation du milieu, entraînant une dispersion des valeurs mesurées centrée sur la fréquence de relaxation du milieu. Cette effet est illustré sur la figure 2.34. Le coefficient α permet de représenter cette dispersion des mesures, plus α s'approche de 1, plus la distribution des temps de relaxation est large.

Il est souvent fait référence (de façon erronée) au modèle Cole-Cole lors de l'utilisation du modèle de relaxation plus classiquement utilisé en géophysique appliquée, décrit par l'expression :

$$\rho^*(\omega) = \rho_0 \left[1 - m \left(\frac{1}{1 + (i\omega\tau_0)^c} \right) \right]$$
(2.71)

Ce modèle utilise les paramètres de résistivité complexe. Il a été développé par Pelton et al. (1978). Concrètement, le modèle établi par les frères Cole en 1941 définit la permittivité diélectrique complexe à partir d'un circuit électrique équivalent composé d'un condensateur monté



FIGURE 2.34 – Effet du coefficient α sur les spectres fréquentiels de permittivité. Comparaison des spectres de permittivité obtenus à partir des modèles de Debye et Cole-Cole pour une fréquence de relaxation égale à 10 Hz, et des permittivité diélectriques $\varepsilon_s = 1000 \text{ F.m}^{-1}$ et $\varepsilon_{\infty} = 30 \text{ F.m}^{-1}$. Le coefficient α du modèle Cole-Cole est pris égal à 0,5. On observe bien la dispersion des valeurs autour de la fréquence de relaxation. Modifié d'après Kessouri (2012).

en parallèle avec un conducteur et un deuxième condensateur (les deux montés en série). Le modèle de résistivité de Pelton est, quant à lui, défini à partir d'un circuit électrique équivalent composé d'une résistance montée en série avec un condensateur et une résistance montés en parallèle (e.g., Tarasov and Titov, 2013). Dans ce modèle, ρ_0 représente la résistivité électrique en courant continu, en Ω .m (i.e., $\rho \to \rho_0$ quand $\omega \to 0$), m désigne la chargeabilité intrinsèque du modèle Cole-Cole ($m = 1 - \rho_0/\rho_{\infty}$ où ρ_{∞} représente la résistivité du milieu aux hautes fréquences (i.e., quand $\rho_{\infty} \to \infty$), et c est un exposant permettant de décrire le comportement dispersif du modèle ($c = 1 - \alpha$).

Modèle de Davidson-Cole

Ce modèle est une modification du modèle Cole-Cole. Il permet de prendre en compte des distributions de mesures dissymétriques par rapport à la fréquence de relaxation caractéristique du milieu. Cette dissymétrie a été observée pour la première fois par Davidson and Cole (1950) lors de mesures sur un milieu composé de glycérine. Pour en rendre compte, Davidson and Cole (1950) propose d'introduire un coefficient β , compris entre 0 et 1, dans le modèle de Debye, selon la forme :

$$\varepsilon'(\omega) - i\varepsilon''(\omega) = \varepsilon_{\infty} + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_{\infty}}{\left(1 + i\omega\tau_0\right)^{\beta}}$$
(2.72)

Lorsque β tend vers 0 la dissymétrie est davantage marquée. Evidemment, si $\beta = 1$, on

n'observe pas de dissymétrie.

Modèle Cole-Cole généralisé

Havriliak and Negami (1966) proposent de regrouper le modèle Cole-Cole et le modèle Davidson-Cole en intégrant les coefficients α et β dans une même formulation :

$$\varepsilon'(\omega) - i\varepsilon''(\omega) = \varepsilon_{\infty} + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_{\infty}}{\left(1 + (i\omega\tau_0)^{1-\alpha}\right)^{\beta}}$$
(2.73)

Le modèle Cole-Cole généralisé (GCC) ainsi défini permet de prendre en compte à la fois la distribution des mesures autour de la fréquence de relaxation du mécanisme de polarisation étudié et le caractère dissymétrique de cette dispersion. La figure 2.35, illustre les différences entre les modèles de Cole-Cole, Davidson-Cole, et Cole-Cole généralisé pour des valeurs de α et β égales à 0,6.



FIGURE 2.35 – Comparaison des spectres de permittivité obtenus à partir les modèles de relaxation Cole-Cole, Davidson-Cole, et Cole-Cole généralisé pour des valeurs de α et β égales à 0,6, une fréquence de relaxation égale à 10 Hz, et des permittivité diélectriques $\varepsilon_s = 1000 \text{ F.m}^{-1}$ et $\varepsilon_{\infty} = 30 \text{ F.m}^{-1}$. Modifié d'après Kessouri (2012).

Modèle à angle de phase constant (CPA ou modèle de Drake).

Ce modèle permet de représenter le cas où les parties réelles et imaginaires de la permittivité complexe montrent la même dépendance fréquentielle (figure 2.36). Dans ce cas, la représentation en diagramme d'Argand donne une ligne droite.

Pelton (1977) donne l'expression de ce modèle en terme de résistivité complexe :

$$\rho^*(\omega) = \rho_0 \left(\frac{1}{\left(1 + i\omega\tau\right)^a}\right) \tag{2.74}$$

où a est le coefficient (sans dimensions) du modèle à angle de phase constante.



FIGURE 2.36 - a) Exemple de spectres de résistivité et de phase pour le modèle à phase constante. b) Représentation en diagramme d'Argand. Les paramètres du modèle utilisés sont donnés dans les rectangles noirs.

Ce type de réponse a pu être observé lors de plusieurs études expérimentales sur des échantillons de roches sédimentaires ou minéralisées (e.g., Van Voorhis et al., 1973; Vinegar and Waxman, 1984; Weller et al., 1996).

Modélisation de l'effet Maxwell Wagner - Théorie des milieux effectifs

La théorie des milieux effectifs permet d'appréhender le comportement moyen d'un agencement complexe de plusieurs phases constituant un milieu. En l'occurrence, dans le cas d'un système à deux phases, cette approche est généralement utilisée pour décrire le comportement diélectrique effectif d'un milieu composé de particules de roches sphériques dans une matrice hôte qui représente l'eau saturante.

Historiquement, Maxwell and Garnett (1904) ont posé les bases de la théorie des milieux effectifs en formulant la réponse d'un système composé d'une petite fraction volumique de permittivité et de conductivité ε_2 et σ_2 disséminée au sein d'un milieu hôte de permittivité et de conductivité ε_1 et σ_1 . Wagner (1914) étend ce résultat au cas de sphères en suspension dans un électrolyte, Bruggeman (1935) a lui étendu cette approche à des milieux denses en prenant en compte le couplage électro-magnétique entre les différents composants du milieu, et enfin Hanai (1968) généralise la théorie à des systèmes diphasiques composés de sphères auxquelles il attribue des propriétés EM complexes. Le modèle obtenu, généralement nommé Maxwell-Wagner-Bruggeman-Hanai, s'écrit :

$$\frac{\sigma_{eff}^* - \sigma_s^*}{\sigma_w^* - \sigma_s^*} \left(\frac{\sigma_w^*}{\sigma_{eff}^*}\right)^{1/3} = \phi \tag{2.75}$$

où σ_{eff}^* est la conductivité complexe effective du milieu, σ_s^* est la conductivité complexe de la phase solide, σ_w^* est la conductivité complexe de la phase liquide, ϕ est la porosité du milieu.

Ce modèle a ensuite été généralisé aux mélanges dont les grains ne sont pas sphériques (e.g., Sen, 1981; Mendelson and Cohen, 1982), et s'écrit alors :

$$\sigma_{eff}^* = \sigma_w^* \phi^m \left(\frac{1 - \frac{\sigma_s^*}{\sigma_w^*}}{1 - \frac{\sigma_s^*}{\sigma_{eff}^*}} \right)^m \tag{2.76}$$

avec m le facteur de cimentation. Cette dernière formulation est généralement nommée l'approche de Bruggemen-Hanai-Sen.

A partir de ce type d'expressions, le calcul de la conductivité complexe effective du milieu selon la théorie des milieux effectifs repose sur un processus itératif (figure 2.37). On calcule la réponse d'une particule en suspension dans l'électrolyte (en permittivité ou en conductivité complexe). Cette réponse est ensuite considérée comme celle d'un milieu homogène, auquel on ajoute une nouvelle inclusion. On calcule la nouvelle réponse, et l'on répète ce processus jusqu'à ce que la concentration en inclusions soit équivalente à la répartition volumique des différentes phases constituant le milieu.

Cosenza et al. (2003) proposent un bon résumé de la théorie associée à ce processus itératif, et montrent notamment que pour un système triphasique, l'ordre dans lequel on ajoute les inclusions des deux phases non hôtes a une influence significative sur la réponse totale calculée.

Le lecteur pourra également se référer aux travaux de thèse de Comparon (2005), où est proposée une synthèse très complète des différents modèles et approches théoriques développés dans la théorie des milieux effectifs (approximation auto-cohérente, approximation non auto-cohérente (Guéguen and Palciauskas, 1992), approximation auto-cohérente différentielle, approche auto-similaire (Sen, 1981) etc...).

2.5.3 Mise en œuvre sur le terrain

En PPS, l'acquisition des mesures peut être un processus relativement long, d'autant plus que la gamme de fréquences choisie pour effectuer les mesures est large et qu'elle s'étend vers les basses fréquences. Ainsi, lorsque le temps d'acquisition est une variable limitante de l'étude, on procède généralement à une mise en œuvre sous forme de sondage PPS. Cependant, il est tout à fait possible de mettre en place des tomographies 2D ou 3D, selon des protocoles de mesures identiques à ceux utilisés en tomographie de résistivité électrique ou en PPT, si l'on dispose d'un temps suffisant pour effectuer les mesures.

Cependant, si l'on a la possibilité d'effectuer à la fois des mesures de PPT et de PPS, on réalise généralement un profil PPT couvrant largement la zone d'étude afin de localiser les



FIGURE 2.37 – Représentation schématique du processus itératif appliqué au calcul de la permittivité effective d'un milieu diphasique. Inclusions d'une phase α de permittivité (ε_r) $_{\alpha}$ dans un milieu hôte (phase γ) de permittivité (ε_r) $_{\gamma}$. Modifié d'après Cosenza et al. (2003).

zones de chargeabilité élevées, puis l'on effectue un sondage PPS localisé sur la zone d'intérêt afin de mieux caractériser le milieu responsable des anomalies observées.

Dans notre cas, c'est-à-dire, dans un contexte de monitoring, le temps d'acquisition doit être adapté à la durée caractéristique du phénomène observé. Afin de satisfaire à cette condition, nous avons choisi d'effectuer nos mesures en PPS sur le terrain sous la forme d'un sondage.

Matériel d'acquisition

Dans cette thèse, que ce soit en laboratoire ou sur le terrain, nous avons utilisé le système SIP FUCHS III développé par Radic-Resarch. Cet appareil permet la mesure de la résistivité complexe sur la gamme de fréquences 1,43 mHz-20 kHz sur 7 décades de fréquences, avec une résolution de 1 mrad (Radic, 2004). Pour les travaux sur le terrain, le courant injecté par l'unité de base de l'appareil est amplifié par une unité de puissance de 600 W, qui permet également de stabiliser le signal (Blondel, 2014). Une description plus détaillée du mode d'installation du système et des différents éléments qui le composent est donnée aux chapitres 3 et 4, respectivement dans le cadre d'une utilisation en laboratoire et sur le terrain.

Il n'existe pas un très grand nombre d'appareils permettant de faire des acquisitions en PPS à notre connaissance. L'entreprise Zonge International développe des systèmes d'acquisition qui peuvent être configurés de façon à permettre des mesures de PPS. On peut également citer l'appareil développé par Zimmermann et al. (2008), qui permet d'effectuer des acquisitions PPS dans la gamme de fréquences 1 mHz - 45 kHz. Récemment, Radic (2014) a développé un nouvel appareil qui possède une gamme de fréquences utile davantage étendue vers les hautes fréquences (jusqu'à 250 kHz).

Précautions de mise en œuvre

Les précautions de mises en œuvre en PPS répondent aux mêmes contraintes que celles posées en PPT (c.f. section 2.4.2). Pour limiter au maximum les effets de polarisation d'électrode et le bruit résultant sur les mesures, il est conseillé d'utiliser des électrodes impolarisables, au moins pour la mesure du potentiel, et d'utiliser des jeux d'électrodes et des câbles distincts pour l'injection du courant et la mesure du potentiel (cette dernière remarque prévaut surtout lorsque l'on réalise des acquisitions tomographiques. En sondage, le dispositif d'acquisition remplit généralement cette condition).

Le deuxième point particulièrement important en PPS, et notamment lors d'études sur le terrain lors desquelles on utilise généralement de grandes longueurs de câbles est la réduction des effets parasites dus au couplage électro-magnétique entre les câbles de mesure, d'injection et le milieu. Sur cette problématique, des solutions sont proposées par Schmutz et al. (2014), dont une brève description des travaux est donnée dans Blondel (2014). Cette étude a pour objectif établir quelles configurations électrodes-câbles sont les plus aptes à limiter les phénomènes parasites d'impédance mutuelle entre les câbles d'injection de courant et les câbles de mesure

du potentiel. Des données PPS ont été acquises sur le terrain par Vaudelet (2011) dans la gamme de fréquences 1 Hz - 20 kHz, pour 4 dispositifs de câbles différents décrits sur la figure 2.38), avec des protocoles de mesure Schlumberger et dipôle-dipôle. Les observations effectuées sur le terrain ont ensuite été validées par une étude numérique réalisée avec le programme Cr1DMod (Ingeman-Nielsen and Baumgartner, 2006), qui permet de modéliser l'impédance mutuelle des câbles pour un arrangement donné (figure 2.39).



FIGURE 2.38 – Représentation schématique des 4 dispositifs de câbles étudiés par Schmutz et al. (2014). Le dispositif rectangle a été testé pour 2 distances unité d'acquisition / ligne de mesure différentes. Extrait de Vaudelet (2011).



FIGURE 2.39 – Spectres de déphasage modélisés et mesurés sur le terrain pour une configuration Schlumberger (distance entre les électrodes d'injection AB = 16 m, distance entre les électrodes de mesures MN = 8 m), pour les différents dispositifs de câbles de la figure 2.38. Les erreurs de mesures sont plus petites que la taille des symboles. Extrait de Vaudelet (2011).

Ces travaux ont montré d'une part que la disposition des câbles "en rectangle" est la moins impactée par les effets du couplage EM, d'autre part que la distance entre l'unité d'acquisition et la ligne de mesure n'a qu'une faible influence sur l'ampleur des effets du couplage EM mesurés. Nous avons pour notre part appliqué les résultats de ces études lors des mesures PPS effectuées sur le terrain (c.f. chapitre 5).

Traitement des données

Il existe à notre connaissance peu de logiciels commerciaux pour inverser des données de PPS. La plupart des algorithmes disponibles sont développés par des chercheurs. Parmi eux, on peut citer celui développé par Chen et al. (2008), un algorithme d'exploration des paramètres basé sur la méthode du double Cole-Cole, qui permet de découpler les données selon la part due à la polarisation intrinsèque du milieu et la part induite par les phénomènes de couplage EM. En substance, cet algorithme décrit la réponse PPS selon 2 termes de dispersion chacun modélisés par un modèle Cole-Cole. Le premier terme est attribué aux phénomènes de polarisation propres au milieu étudié, et le second terme aux phénomènes de couplage EM. Dans ses travaux de thèse, Kemna (2000) développe un algorithme d'inversion 2D basé sur une combinaison de la technique standard de Gauss-Newton et de la méthode de gradient conjugué. Le logiciel d'inversion en PPT Res2Dinv est basé en partie sur ces développements.

Dans ces travaux, nous avons pour notre part utilisé le programme Cr1Dinv (Ghorbani et al., 2009a), un code d'inversion 1D basé sur le modèle Cole-Cole et couplé avec le logiciel Cr1DMod développé par Ingeman-Nielsen and Baumgartner (2006), afin de permettre la prise en compte de l'impédance mutuelle des câbles lors du processus d'inversion. Les travaux de thèse de Ghorbani (2007) donnent par ailleurs une bonne présentation des problématiques liées à l'inversion des paramètres PP en général, ainsi que divers exemples de développement d'algorithmes d'inversion.

2.5.4 Exemples d'applications

Détection et caractérisation des fractures

La détection et la caractérisation des fractures est une problématique importante dans de nombreux domaines allant du suivi de pollution jusqu'à l'exploitation des ressources, car ces structures sont sources d'hétérogénéité en terme de propriétés de transport du milieu. Elles peuvent être l'endroit de circulations de fluides préférentielles ou au contraire constituer des zones de faible perméabilité et donc de moindre circulation, par exemple dans le cas où elles sont remplies d'argiles.

Dans ce contexte, Schmutz et al. (2011) ont montré que la méthode PPS est capable d'une part de différencier les zones où la matrice rocheuse est intacte des zones fissurées, et également de faire la distinction entre des fractures ouvertes et des fractures remplies d'argiles.

Les auteurs ont réalisé des mesures dans une carrière située à Libourne, en France. Du fait des excavations, l'accès aux galeries permet d'identifier sur le toit de la carrière les zones fracturées ou non-fracturées et le type de fracture (ouverte ou remplie d'argiles). A partir de ces preuves visuelles ils ont pu efficacement relier les mesure PPS aux différentes zones.



FIGURE 2.40 – Représentation de la conductivité imaginaire versus la conductivité réelle à la fréquence pour laquelle la phase apparente est maximale. On distingue des groupes de points correspondants aux différentes structures et types de fractures. Extrait de Schmutz et al. (2011).

Plusieurs profils de mesure ont été réalisés en surface. La simple analyse des paramètres apparents révèle des réponses PPS corrélées à la présence de fractures et à leurs caractéristiques (c.f. figure 2.40). En inversant les données avec une approche bayésienne, les auteurs ont également pu observer une forte corrélation entre la distribution de valeurs des paramètres du modèle Cole-Cole issus de l'inversion et la présence ou non de fractures, remplies ou ouvertes (figure 2.41).



FIGURE 2.41 – Cartographie des valeurs des paramètres Cole-Cole inversés. Les zones impliquant des fractures remplies d'argiles se distinguent par des hautes valeurs des paramètres Cole-Cole. Modifié d'après Schmutz et al. (2011).

Caractérisation des variations lithologiques et détection d'hydrocarbures

Kemna et al. (2004) ont réalisé des mesures inter-puits (cross-hole) avec la méthode PPS, sur deux cas d'étude dont la lithologie est bien connue. En utilisant un algorithme d'inversion initialement développé par Kemna and Binley (1996), ils parviennent à recouvrir la distribution des paramètres PPS inversés, en l'occurrence les conductivités imaginaires et réelles, et le déphasage.

Sur le premier cas d'étude les résultats d'imagerie montrent une corrélation nette avec la séquence relativement complexe de couches lithologiques différentes (figure 2.42). Les paramètres PPS liés particulièrement à la polarisation du milieu (phase et conductivité imaginaire) apportent davantage d'informations sur les variations lithologiques du milieu que le terme de conductivité réelle, davantage représentatif des propriétés de conduction du milieu.

Dans un deuxième cas d'étude, impliquant une structure géologique plus simple, une zone surplombant une couche d'argiles a été contaminée par un déversement d'hydrocarbures (figure 2.42). Les paramètres PPS inversés présentent alors une complémentarité qui permet d'identifier à la fois la zone contaminée et les variations lithologiques. Dans ce cas (figure 2.43), les parties réelle et imaginaire de la conductivité complexe, qui représentent respectivement la conduction ohmique et la polarisation du milieu, présentent des valeurs similaires associables aux différentes structures géologiques. La phase, qui elle quantifie le rapport entre conduction ohmique et polarisabilité, ne permet pas de distinguer les différentes lithologies, mais présente des valeurs nettement plus hautes dans la zone contaminée par les hydrocarbures.



FIGURE 2.42 – Représentation des paramètres PPS inversés pour le premier cas d'étude. a) Conductivité réelle. b) Conductivité imaginaire. c) Phase. Les valeurs de conductivité imaginaire et de phase permettent une meilleur caractérisation des variations lithologique de la sub-surface. Extrait de Kemna et al. (2004).

Ces deux cas d'études mettent bien en lumière la capacité des méthodes PPS (et PP en général) à caractériser de façon plus complète des structures géologiques et/ou des zones présentant des variations dans la composition du fluide poral. Ils illustrent notamment un des avantages de la polarisation provoqué qui réside dans l'utilisation de paramètres variés (phase,



FIGURE 2.43 – Représentation des paramètres PPS inversés pour le deuxième cas d'étude. a) Conductivité réelle. b) Conductivité imaginaire. c) Phase. La distribution des valeurs de phase présente une anomalie nette dans la zone envahie par des hydrocarbures, alors que les valeurs de σ' et σ'' sont similaires. Extrait de Kemna et al. (2004).

résistivité, σ' , σ''). Ces paramètres réagissent parfois différemment aux variations lithologiques et/ou de composition du fluide poral, offrant au géophysicien une complémentarité précieuse.

Chapitre 3

ERT - Etude en milieu contrôlé -Modélisation

Introduction

Depuis la fin des années 2000, le nombre de publications portant sur l'application de la méthode de tomographie de résistivité électrique à la surveillance de panaches de CO_2 et/ou à la détection d'écoulements localisés s'est considérablement accru (e.g., Carrigan et al., 2013; Auken et al., 2014). Les travaux de thèse de Vieira (2013), réalisés au sein de notre laboratoire, s'inscrivent dans cette dynamique. Au travers d'expériences en cuve, d'échelle métrique, ce dernier à étudié l'évolution de la réponse en résistivité électrique de milieux granulaires non consolidés totalement saturés en eau, dans lesquels est injecté du CO_2 gazeux. Les observations ont permis d'identifier les processus physico-chimiques impliqués et leur influence respective sur les valeurs de résistivité des milieux étudiés. Un autre aspect important de ces travaux concerne une étude méthodologique des protocoles d'acquisition utilisés. En étudiant plusieurs agencements de configurations d'électrodes sur des milieux parfaitement homogènes, Vieira (2013) détermine un protocole d'acquisition permettant de restituer avec précision la résistivité des milieux après inversion des résistances mesurées, qu'il nomme le protocole « cross-rods ».

Le travail que nous présentons dans ce chapitre s'inscrit dans la continuité directe des recherches effectuées par Vieira (2013). Nous avons exploité les résultats obtenus au cours de ces expériences pour concevoir et calibrer un modèle 3D de type automate cellulaire, qui permet de simuler la circulation du gaz dans le milieu selon une approche géométrique et stochastique, et de reproduire les réponses en résistance électriques des milieux étudiés. Ce travail nous a permis d'élargir notre compréhension des phénomènes physiques impliqués dans ces expériences. Dans un second temps, nous approfondissons l'étude initiée par Vieira (2013) concernant l'efficacité des protocoles d'acquisition à détecter des variations de résistivités induites par une injection de CO_2 . Nous présentons les résultats d'une étude numérique ayant pour objectif d'évaluer la sensibilité des différentes configurations d'électrodes qui composent le protocole cross-rods. Nous avons ensuite réalisé une série de tests empiriques, sur des modèles synthétiques basés sur l'automate cellulaire que nous avons développé. In fine, ces tests nous ont permis de concevoir des protocoles d'acquisition alternatifs, qui permettent de mieux quantifier les variations de résistivité induites par l'injection d'un gaz dans un milieu granulaire totalement saturé.
1 Résumé des travaux de Vieira (2013)

1.1 Présentation du dispositif expérimental

Nous décrivons ici les principaux éléments du dispositif utilisé par Vieira (2013) dans ses travaux.

Réservoir instrumenté

La figure 3.1 donne un aperçu du dispositif expérimental utilisé lors de ces expériences. Un réservoir cylindrique en plexiglas de 80 cm de haut et 48 cm de diamètre est instrumenté avec 60 électrodes en acier inoxydable. Les électrodes sont réparties sur 6 tiges en plastique (10 électrodes par tige, 5 cm d'espacement entre chaque électrode), fixées verticalement à la paroi intérieure du réservoir et espacées d'un angle de 60° les unes des autres.



FIGURE 3.1 - Réservoir cylindrique instrumenté de 60 électrodes. Un système valve / passe-paroi monté sur le fond du réservoir permet l'injection de gaz par le dessous. Extrait de Vieira (2013).

Comme illustré sur la figure 3.2, les électrodes sont réparties en 10 plans horizontaux espacés de 5 cm, contenant chacun 6 électrodes. Dans la suite du texte, on fera référence à ces plans par leur numéro (de 1 à 10).



FIGURE 3.2 – Schéma du réservoir représentant la disposition des électrodes. Chaque cercle de 6 électrodes est défini comme un plan numéroté de 1 à 10. Extrait de Vieira (2013).

Injection de gaz

L'injection de gaz dans le milieu d'étude se fait à l'aide d'un diffuseur poreux en céramique de 12 cm de diamètre, fixé à un support en plastique creux (figure 3.3). La hauteur finale de la structure est de 10 cm, et l'ensemble est placé au centre du réservoir, entre les plans 8 et 10. Le tuyau d'arrivée du gaz est connecté au diffuseur en traversant la paroi inférieure du réservoir par l'intermédiaire d'une valve et d'un passe-paroi.



FIGURE 3.3 - a) Diffuseur fixé sur son support en plastique. b) Diffuseur placé entre les plans 8 et 10 lors du remplissage. Extrait de Vieira (2013).

Remplissage de la cuve

Une procédure de remplissage identique a été utilisée pour chacune des expériences. Les premiers 18 cm sont remplis sans précaution particulière, puis le diffuseur est mis en place dans l'axe du réservoir de la figure (figure 3.3.a). Le reste de la cuve est rempli jusqu'à 5 cm au-dessus du plan n°1, en portant une attention particulière à ce qu'aucune cavité ne se crée, notamment au voisinage des électrodes et des tiges en plastique. Puis le milieu est saturé par imbibition (figure 3.4), grâce à une valve d'arrivée d'eau située au bas du réservoir.



FIGURE 3.4 – Imbibition du milieu par le bas de la cuve. On observe l'apparition de figures de stratification du sable. Extrait de Vieira (2013).

Acquisition des données

Le système d'acquisition utilisé pour les mesures d'ERT est un Terramètre SAS 1000 connecté à un multiplexeur 64 canaux ES-1064 (ABEM). Le courant est injecté sous la forme d'un signal carré d'amplitude 20 mA, de polarité alternée (p.59).

L'appareil d'acquisition a été configuré de façon à répéter 6 fois chaque protocole. Les mesures présentant une erreur de répétabilité trop élevée ne sont pas prises en compte lors du traitement des données. On fait systématiquement l'acquisition des mesures directes et réciproques, et la moyenne des deux valeurs est utilisée comme donnée finale lors des processus d'inversion décrits dans la suite de cette section.

1.2 Configurations d'électrodes optimale

Avant de procéder aux expériences proprement dites, C. Vieira a réalisé une série de tests afin de déterminer quelles configurations d'électrodes permettaient d'obtenir la meilleure résolution sur ce type de dispositif expérimental.

Description des protocoles d'acquisition étudiés

Lors d'une mesure de tomographie électrique, on définit un protocole de mesure qui regroupe les différentes combinaisons d'électrodes qui seront utilisées. Chaque combinaison peut être définie comme un quadripôle puisqu'elle se compose de 2 électrodes pour l'injection du courant et de 2 électrodes pour la mesure de la différence de potentiel. Quatre protocoles d'acquisition différents ont été testés. Les trois premiers mettent en jeu des configurations d'électrodes « classiques » (configurations bipôle-bipôle, dipôle-dipôle et Wenner-Schlumberger), dont l'arrangement géométrique est représenté sur la figure 3.5. Les protocoles rassemblent alors l'ensemble des mesures possibles pour une configuration d'électrode donnée, sur le dispositif de 60 électrodes décrit précédemment (figure 3.2). Cela revient à effectuer 63 mesures pour le protocole bipôle-bipôle, 57 mesures pour le protocole dipôle-dipôle, et 264 pour le protocole Wenner-Schlumberger (ces chiffres excluent les mesures réciproques).



FIGURE 3.5 – Configurations d'électrodes : a) configuration bipôle-bipôle. b) configuration dipôle-dipôle. c) configuration Wenner-Schlumberger. AB : injection du courant. MN : mesure du potentiel. Extrait de Vieira (2013).

Le quatrième protocole a été nommé configuration « cross-rods ». Il consiste à effectuer des mesures sur l'ensemble des combinaisons possibles d'électrodes situées dans un même plan, pour les 10 plans décrits sur la figure 3.2. On dénombre alors 390 mesures pour ce protocole. La figure 3.6 donne un exemple du nombre de combinaisons possibles pour un dipôle d'injection fixé.



FIGURE 3.6 – Représentation schématique des configurations d'électrodes composant le protocole "crossrods". En bleu le dipôle d'injection de courant, en rouge le dipôle de mesure de potentiel. Pour un dipôle d'injection fixé, il existe 5 combinaisons possibles. Extrait de Vieira (2013).

Présentation du logiciel R3T

R3T est un logiciel développé par Binley and Kemna (2005) permettant de résoudre les problèmes direct ou inverse de mesures de tomographie de résistivité électrique sur des géométries cylindriques 3D. Une description plus détaillée du fonctionnement du logiciel est donnée en section 1.1.6 (p.62).

En substance, R3T se base sur la méthode des éléments finis. Il est donc possible de concevoir des modèles basés sur des géométries 3D représentant les expériences réalisées (dans le cas présent un cylindre). R3T est alors capable de :

• *Résoudre le problème direct* : On assigne à notre maillage 3D une distribution de résistivités donnée, on définit la disposition des électrodes ainsi qu'un protocole de mesure, R3T permet de calculer la résistance mesurée par chaque quadripôle du protocole.



FIGURE 3.7 – Schéma de fonctionnement du problème direct.

• *Résoudre le problème inverse* : A partir de résistances mesurées lors des expériences réalisées, en utilisant le maillage 3D représentant le dispositif et en définissant la position des électrodes et le protocole de mesure, R3T est capable de proposer un modèle de distribution des résistivités vraies du milieu.



FIGURE 3.8 – Schéma de fonctionnement du problème inverse.

Test 1 : Comparaison entre résistances mesurées et résistance modélisées

Pour chacun des quatre protocoles décrits précédemment, des acquisitions de tomographie de résistivité électrique ont été réalisées sur un milieu composé de sable quartzeux (sable de Fontainebleau) totalement saturé en eau. La conductivité de l'eau est connue et contrôlée par dissolution de 0,56 g/L de NaCl dans de l'eau distillée. Les résultats bruts de ces mesures sont les résistances pour chaque quadripôle.

Par ailleurs, la résistivité de ce milieu a été mesurée à part, sur une cellule expérimentale bien caractérisée, de facteur géométrique connu. La valeur obtenue est $\rho = 38 \ \Omega$.m. On a ensuite défini dans R3T un modèle 3D représentant la géométrie du réservoir utilisé, auquel on a assigné une valeur de résistivité constante de 38 Ω .m. En résolvant le problème direct pour chacun des protocoles étudié, on obtient alors les résistances synthétiques mesurées pour chaque quadripôle qui constitue le protocole.

L'objectif de ce test est de comparer les résistances effectivement mesurées sur le milieu réel (sable de Fontainebleau + eau de conductivité connue), avec les résistances synthétiques modélisées par R3T, et ce pour chacun des protocoles.

La figure 3.9 ci-après illustre les résultats obtenus. On observe des écarts significatifs (jusqu'à 30% des valeurs mesurées) entre les valeurs modélisées et mesurées pour plusieurs quadripôles des protocoles bipôle-bipôle, dipôle-dipôle et Wenner-Schlumberger. Pour la configuration « Cross-rods » à l'inverse, les valeurs mesurées montrent une excellente corrélation avec les valeurs modélisées (erreur inférieure à 1% pour tous les quadripôles de mesure).

Test 2 : Inversion de données acquises sur un milieu homogène

Ce second test a pour objectif d'évaluer la précision de la solution du problème inverse tel qu'il est résolu dans R3T, et d'évaluer l'influence du protocole de mesure utilisé sur cette solution.

Des acquisitions d'ERT ont donc été réalisées sur le réservoir cylindrique rempli d'eau du robinet dont on a mesuré la résistivité ($\rho = \frac{1}{\sigma} = 21, 3 \ \Omega.m$). Le milieu peut donc être considéré totalement homogène, et de résistivité connue. Après inversion des résistances mesurées, on s'attend donc à obtenir une distribution de résistivités homogène sur tout le modèle, de valeur roche de la résistivité de l'eau.

La figure 3.10 représente une vue 3D de la distribution de résistivités obtenue pour des mesures effectuées avec un protocole Wenner-Schlumberger. Des sections horizontales nous montrent que les valeurs de résistivité obtenues dans les zones basses et hautes du réservoir correspondent bien à la résistivité réelle de l'eau utilisée. Cependant, dans toute la partie centrale, la résistivité est sous-estimée là où se trouvent les électrodes, bien approximée dans le voisinage immédiat de cette zone, et surestimée dans la zone centrale.

La figure 3.11 représente la distribution de résistivités obtenue avec un protocole « crossrods ». Même si quelques artefacts existent, l'ensemble du modèle est bien plus homogène que pour le protocole Wenner-Schlumberger, ce qui démontre à nouveau la résolution supérieure de ce type de configuration d'électrodes.



FIGURE 3.9 – Comparaison entre résistances mesurées et modélisées avec les quatres protocoles. a,b : Wenner-Schlumberger. c,d : bipôle-bipôle. e,f : dipôle-dipôle. g,h : configuration "Cross-rods". Sur la colonne de gauche on observe les valeurs de résistance modélisée (en gris) et mesurées (en noir) pour chaque quadripôle de mesure, la colonne de droite représente la corrélation entre les valeurs mesurées et modélisées. Extrait de Vieira (2013).

1.3 Détails des paramètres expérimentaux

Les expériences menées par C. Vieira ont consisté à évaluer l'impact de l'injection de gaz dans des milieux granulaires non consolidés totalement saturés en eau sur des mesures de tomographies de résistivité électrique.

- Deux types de sables constituant le milieu granulaire ont été utilisés :
- Du sable de Fontainebleau, composé à 95% de silice et à 5% de feldspath et de micas. Après un tamisage, le diamètre des grains est compris entre 200 μm et 400 μm. Sa porosité a été évaluée à 38% et sa perméabilité à 5,2 D, à l'aide d'une cellule de mesure expérimentale similaire à celle décrite en section 1.3.2 du chapitre 4.
- Un sable carbonaté, issu de marbres synthétiques broyés. Après tamisage, seul les grains de diamètre inférieur à 2000 μm ont été utilisés.



FIGURE 3.10 – Distribution de résistivités obtenue après inversion des résistances mesurées sur le réservoir cylindrique rempli d'eau de résistivité 21,3 Ω .m, à 18°C, pour le protocole Wenner-Schlumberger. Extrait de Vieira (2013).



FIGURE 3.11 - Distribution de résistivités obtenue après inversion des résistances mesurées sur le réservoir cylindrique rempli d'eau de résistivité 21.3 Ω .m, à 18°C, pour le protocole cross-rods. Extrait de Vieira (2013).

- Deux types de gaz d'injection ont été utilisés :
- 1. De *l'azote* (N_2) , dont la solubilité dans l'eau est négligeable pour ces conditions expérimentales (température ambiante, pression atmosphérique).

2. Du dioxyde de carbone (CO₂), qui présente une solubilité élevée dans l'eau.

Au total, quatre expériences recoupant les paramètres ci-dessus ont été réalisées. La silice et l'azote sont très faiblement solubles dans l'eau pour les conditions expérimentales présentes, alors que les carbonates et le dioxyde de carbone sont susceptibles de se dissoudre dans l'eau et de réagir entre eux. Ces quatre expériences permettent d'analyser comparativement l'effet sur les mesures ERT de systèmes sable/eau/gaz chimiquement réactifs ou inertes.

• Paramètres d'injection :

Lors d'une première phase, un débit d'injection de 200 L/h est maintenu pendant 30 min, période au bout de laquelle un état d'équilibre dynamique est atteint. Les chemins de circulation du gaz sont alors à peu près stables, et il n'y a plus d'accumulation supplémentaire de gaz au sein du milieu. Le débit d'injection est alors doublé à 400 L/h. Une fois qu'un nouvel état d'équilibre est atteint, les mesures d'ERT sont réalisées.

1.4 Résultats des expériences de tomographie de résistivité électrique

L'objectif de ces expériences est d'évaluer l'impact de l'injection de gaz sur la distribution de résistivités du milieu. À cette fin, les résistances mesurées au cours des expériences ont été inversées à l'aide du logiciel R3T.

Méthodes d'inversion

Plusieurs méthodes d'inversion ont alors été utilisées. Des inversions dites « simples », qui consistent à inverser directement les résistances acquises à l'état post-injection, et des inversions time-lapse de type « ratio inversion » et « difference inversion », qui prennent en compte l'état initial (pré-injection). De plus amples explications sur ces différentes méthodes sont disponibles dans Vieira (2013).

En substance, l'inversion par différences consiste à soustraire mathématiquement les résistances mesurées à l'état initial (R_0) à celles obtenues au cours de l'expérience (R_g) , et à ajouter cette quantité à des valeurs de base, ou de « background » $(F(\rho_0))$, correspondant aux résistances modélisées à partir des résultats de l'inversion des résistances mesurées à l'état initial. In fine, la quantité inversée avec le logiciel R3T est $R_g - R_0 + F(\rho_0)$, avec ρ_0 la distribution de résistivités obtenue après inversion des résistances mesurées à l'état initial.

L'inversion par ratio est basé sur un principe similaire, excepté le fait que les valeurs de base sont entièrement synthétiques, et correspondent aux résistances modélisées à partir d'un milieu parfaitement homogène (Daily and Owen, 1991). La quantité calculée et utilisée lors de l'inversion est alors $\frac{R_g}{R_0}F_{R_0}$, avec F_{R_0} les résistances de base.

Résultats des expériences avec le sable de Fontainebleau comme milieu granulaire.

• Utilisation de N₂ comme gaz d'injection :

Sur la figure 3.12 on peut observer les résultats des inversions ratio et différence, lors de l'injection de N₂ dans du sable de Fontainebleau. Au premier ordre, on observe un panache de résistivité plus élevé dans la partie centrale du cylindre (entre 60 Ω .m et 80 Ω .m). Ces valeurs sont supérieures à la résistivité obtenue sur l'état pré-injection (58 Ω .m).



FIGURE 3.12 – Injection de N₂ dans un sable de Fontainebleau - Résultats des processus d'inversion. a) différence inversion, b) ratio inversion. Extrait de Vieira (2013).

• Utilisation de CO₂ comme gaz d'injection :

L'injection de CO_2 entraîne aussi une augmentation de la résistivité du milieu dans la partie centrale du réservoir (figure 3.13). Cette augmentation est aussi plus marquée dans ce cas (jusqu'à 90 - 100 Ω .m).

Ces résultats sont interprétés comme un changement de l'état de saturation en eau du milieu. La fraction de gaz piégée dans le milieu diminue le niveau de saturation, entraînant une augmentation de résistivité.

Dans les deux cas, on observe également que l'anomalie de haute résistivité n'est pas prolongée jusqu'à la surface, et reste confinée sous la hauteur z = 50 cm. Pour expliquer ce phénomène, nous émettons l'hypothèse que le niveau de saturation en gaz est plus élevé dans la partie basse du réservoir que dans la partie haute. Une autre explication possible fait intervenir la présence d'une couche d'eau d'environ deux centimètres d'épaisseur à la surface du milieu qui se forme lors de l'injection de gaz, au fur et à mesure que l'eau présente dans les pores est remplacée par l'azote ou le dioxyde de carbone (Vieira, 2013). Une couche d'eau étant davantage conductrice qu'un milieu granulaire saturé de la même eau, sa présence pourrait réduire l'impact de la désaturation sur les résultats d'inversion dans la partie haute du réservoir.



FIGURE 3.13 – Injection de CO₂ dans un sable de Fontainebleau - Résultats des processus d'inversion. a) différence inversion, b) ratio inversion. Extrait de Vieira (2013).

Résultats des expériences avec le sable carbonaté comme milieu granulaire

• Utilisation de N₂ comme gaz d'injection :

L'injection d'azote dans un sable carbonaté donne lieu aux mêmes observations que dans le cas d'un sable de Fontainebleau, à savoir la formation d'une zone de plus haute résistivité au-dessus du diffuseur poreux. Les figures 3.14 et 3.15 montrent respectivement les résultats d'inversion simple, par ratio et différence, des mesures de l'état post-injection. Les formes du panache de haute résistivité varient sensiblement selon la méthode d'inversion utilisée, mais ces résultats sont concordants avec l'interprétation précédemment énoncée d'une accumulation de gaz dans le milieu dans la zone supérieure du réservoir.



FIGURE 3.14 – Inversion simple des mesures effectuées sur l'état post-injection de N₂ dans du sable carbonaté. On observe une augmentation nette de la résistivité dans la partie centrale du réservoir. Extrait de Vieira (2013).



FIGURE 3.15 – Résultats des inversions de l'état post-injection de N₂ dans du sable carbonaté par la méthode ratio (à gauche) et par différence (à droite). L'injection de N₂ entraîne une augmentation de la résistivité. Extrait de Vieira (2013).

• Utilisation de CO₂ comme gaz d'injection :

Les figures 3.16 et 3.17 montrent les résultats d'inversion pour les trois méthodes (simple, ratio et différence) de l'état post-injection dans le cas du CO_2 .

On observe dans les trois cas une nette diminution de la résistivité dans la partie centrale du réservoir (jusqu'à 10 Ω .m). On suppose que la baisse de pH induite par la dissolution d'une partie du CO₂ gazeux entraîne la dissolution d'une partie du sable carbonaté. Cet apport d'ions en solution augmente nettement la conductivité de l'électrolyte, et diminue par conséquent la résistivité du milieu. Les effets liés à l'accumulation de gaz (augmentation de la résistivité) observés dans les expériences décrites précédemment sont alors négligeables.



FIGURE 3.16 – Inversion simple des mesures effectuées sur l'état post-injection de CO_2 dans du sable carbonaté. On observe une diminution nette de la résistivité dans la partie centrale du réservoir (jusqu'à 10 Ω .m). Extrait de Vieira (2013).



FIGURE 3.17 – Résultats des inversions de l'état post-injection de CO_2 dans du sable carbonaté par la méthode ratio (à gauche) et différence (à droite). On observe dans les 2 cas une nette diminution de la résistivité. Extrait de Vieira (2013).

1.5 Conclusion

Au cours de précédents travaux, Vieira (2013) a montré expérimentalement qu'il était possible de détecter les changements de résistivité induits par l'injection d'un gaz dans un milieu granulaire non-consolidé saturé en eau. Plusieurs processus peuvent alors rentrer en jeu. Pour un système chimiquement non-réactif, comme par exemple l'injection de diazote dans un sable de Fontainebleau (composé de silice) saturé, ce sont les variations du niveau de saturation en eau du milieu poral qui induisent les changements de résistivité observés. Ces changements se traduisent par une augmentation de la résistivité dans les zones envahies par le gaz.

Dans le cas d'un système très réactif chimiquement, tel que l'injection de CO_2 dans un sable carbonaté, une forte diminution de la résistivité par rapport à l'état pré-injection est observée. Les processus de dissolution du CO_2 et de la calcite enrichissent l'eau saturante en espèces ioniques dissoutes, augmentant la conductivité électrique de l'eau, jusqu'à masquer les effets de la dé-saturation du milieu.

Il est intéressant de noter que lors de l'injection de CO_2 (soluble) dans du sable de Fontainebleau (non soluble), on observe une augmentation de résistivité. Ainsi, malgré le fait qu'une partie du CO_2 se dissolve dans l'eau et augmente sa conductivité électrique, c'est le phénomène de désaturation qui produit les effets prédominant sur les valeurs de résistivité observées.

2 Modélisation des expériences

Dans cette section nous présentons l'architecture et le fonctionnement d'un modèle de type automate cellulaire, développé avec Matlab, qui décrit la circulation d'un gaz dans un milieu granulaire non consolidé totalement saturé en eau et calcule la distribution de résistivités associée. L'objectif initial de ce modèle est de reproduire les réponses en résistances électriques induites par la diminution du niveau de saturation en eau dans le milieu, en nous basant sur les observations de Vieira (2013). L'évolution dans le temps de la réponse électrique lors de l'injection de gaz n'ayant pas été étudiée par Vieira (2013), notre modèle se limite à la reproduction de l'état statique des expériences, i.e., lorsque les chemins de circulation du gaz sont établis et stables, et que le niveau de saturation en eau du milieu n'évolue plus.

2.1 Dynamique d'un écoulement de gaz en milieu saturé

2.1.1 Introduction - Air sparging

La circulation d'un gaz dans un milieu totalement saturé en eau a été un sujet particulièrement étudié dans la littérature à partir des années 90 avec l'apparition d'une nouvelle méthode de remédiation de sols contaminés appelée « Air sparging » ou bullage *in-situ* (Böhler et al., 1990; Johnson et al., 1993). Cette technique est appliquée dans le cas de fuites d'espèces chimiques issues de réservoirs de stockage, ou suite à des déversements accidentels. Des quantités importantes de polluants peuvent contaminer la zone saturée du sous-sol, avec des conséquences environnementales importantes, surtout si cette zone est reliée à des aquifères d'eau potable et donc potentiellement exploitables ou exploités pour l'approvisionnement en eau des populations locales.

La technique de l'air sparging consiste en l'injection d'air sous le niveau de la nappe contaminée (Loden, 1992; Reddy et al., 1995). Lors de sa remontée vers la surface, l'air va entrer en contact avec une partie des polluants dissouts dans l'eau des pores ou adsorbés à la surface des minéraux du sol, et en entraîner avec lui une partie sous forme gazeuse à la suite de divers mécanismes chimiques et biochimiques tels que la volatilisation ou la biodégradation (Marley et al., 1992; Hinchee, 1994). Une fois atteinte la zone non saturée, ce mélange gazeux air/polluants sera extrait par des forages, et traité en surface. L'ensemble du procédé est illustré sur la figure 3.18.

La méthode de bullage *in-situ* est d'autant plus efficace que la surface de contact entre le panache d'air injecté et la zone contaminée est grande (McCray and Falta, 1996). Le développement de cette technique de remédiation a donc été le socle de nombreuses études visant à comprendre les mécanismes de circulation d'un gaz dans un sol saturé en eau. L'influence des caractéristiques structurales du milieu poreux (porosité, taille des grains, etc...) et le débit d'injection ont été particulièrement étudiés, au travers d'expériences en laboratoire (Ji et al., 1993; Chen et al., 1996; Semer et al., 1998; Clayton, 1998; Brooks et al., 1999; Elder and Benson, 1999; Peterson et al., 2001; Baker and Benson, 2007), sur le terrain (Böhler et al., 1990; Loden, 1992; Ahlfeld et al., 1994; Bass et al., 2000), et des travaux de modélisation (Wilson et al., 1992; Van Dijke et al., 1995; Lundegard and Andersen, 1996; McCray and Falta, 1997; Marulanda et al., 2000; Ezeuko and McDougall, 2010).

Le modèle que nous avons développé afin de reproduire les résultats des expériences de C. Vieira repose largement sur les résultats de certaines études effectuées dans le contexte du développement de la méthode de l'air sparging. Dans la suite, nous présenterons donc un résumé bibliographique non exhaustif des travaux effectués dans le domaine, qui illustre l'approche que nous avons utilisée lors de la construction de notre modèle.



FIGURE 3.18 – Schéma de principe de la technique de bullage *in-situ* appliquée à la remédiation des sols (Extrait de : Dépollution, Quelles techniques pour quels traitements - Analyse coûts / bénéfices - Rapport Final BRGM/RP - 58609 - FR Juin 2010).

2.1.2 Etat de l'art - écoulements diphasiques

A la fin des années 90, la plupart des auteurs ayant travaillé sur la technique du bullage *in*situ s'accordent sur l'existence de deux principaux types d'écoulements. Un écoulement bulleux (bubble flow) et un écoulement sous forme de chenaux (channel flow) (Ji et al., 1993; Brooks et al., 1999; Peterson et al., 2001). • L'écoulement de type bulleux a été, dans les années 80, le premier concept avancé pour décrire la circulation d'un gaz dans un milieu poreux saturé en eau. Ce modèle décrit une circulation sous forme de bulles qui remontent vers la surface sous la forme d'un panache conique ayant pour sommet le point d'injection. (Wehrle, 1990; Sellers and Schreiber, 1992).

• L'écoulement en chenaux implique une évolution du gaz le long de chemins préférentiels, continus, plus ou moins tortueux, et dont le diamètre est égal ou supérieur à la taille des pores. Les différents chemins créés évoluent indépendamment vers la surface, et sont séparés les uns des autres par des zones totalement saturées en eau (Ji et al., 1993; Clayton, 1998; Elder and Benson, 1999; Brooks et al., 1999). Dans la suite, nous ferons parfois aussi référence à ces chenaux comme des "chemins de circulation".

Les expériences en laboratoire de Ji et al. (1993), Baker and Benson (1996), Brooks et al. (1996) et Ahlfeld et al. (1994) ont montré que le paramètre discriminant entre les deux modes de circulation est la taille des grains.

La figure 3.19 rapporte les modes de circulation observés lors de différentes études et les classe par rapport à la taille moyenne des grains constituant le milieu expérimental. Ainsi les écoulements bulleux ne sont clairement observés que pour des tailles de grain moyennes supérieures à 2 mm. Pour des diamètres moyens inférieurs à 0.5 mm on observe exclusivement la formation de chemins de circulation. Une zone de transition semble se définir dans l'intervalle.



FIGURE 3.19 – Types de circulation d'air en milieu saturé en fonction de la taille moyenne des grains (Modifié d'après Brooks et al. (1999))

Un certain nombre d'auteurs ont étudié plus en profondeur le comportement du gaz dans cette zone de transition, principalement par des études expérimentales en laboratoire. Peterson et al. (2001) présentent une table récapitulative des différents types de circulation observés jusqu'à la fin des années 90 (Table 1 dans Peterson et al. (2001)). On remarque que les études les plus récentes (publiées à la fin des années 90) utilisent de nouveaux termes tels que "slug flow" ou "mixed flow". Le terme "slug flow" est utilisé pour décrire une circulation sous la forme de chemins intermittents, discrets, et le terme "mixed flow" s'applique à une régime de circulation possédant à la fois les composantes bulles et chemins de circulation. Brooks et al. (1999) présentent les résultats de leurs expériences sous la forme d'un tableau (figure 3.19) bien représentatif de l'évolution du régime exclusivement bulleux pour des grands diamètres de grains (> 3 mm) vers un régime de transition dans l'intervalle (slug flow, mixed pattern, mixed flow).

On observe également dans ce tableau une dépendance du régime de circulation du gaz avec le taux d'injection. Dans l'intervalle de diamètres de grains correspondant au régime de transition, les plus bas débits d'injection correspondent à des circulations de transition (slug flow, mixed flow etc...) alors que les plus hauts débits d'injection favorisent l'apparition de circulations exclusivement en chenaux. Pour les haut débits, l'apport suffisant de gaz permet de maintenir les chenaux de circulation du gaz stables et continus. Si le débit est trop faible, il faut attendre que le gaz s'accumule afin que les forces de flottabilité (dues à la différence de densité du gaz et de l'eau) puissent surpasser les forces capillaires et permettre l'ascension de la poche de gaz. C'est ce petit retard qui est responsable de l'évolution du gaz en chenaux dits discrets.

Finalement, beaucoup d'études se sont focalisées sur la compréhension et la caractérisation des écoulements en chenaux. En effet, de nombreux auteurs dont Brooks et al. (1999) et Clayton (1998) s'accordent à dire que la plupart des sols étudiés dans le cadre de "l'in-situ air sparging" présentent des tailles de grains moyennes inférieures à celles correspondant au régime bulleux, et que les régimes en chenaux continus (faibles tailles de grains) ou en chenaux discrets (slug flow, mixed flow, pour des tailles de grains plus élevées) sont donc prédominants dans la grande majorité des cas étudiés.

Ainsi, Clayton (1998) étudie grâce à des expérimentations en laboratoire 2D, la formation, la taille, l'espacement et la tortuosité des chenaux de circulation du gaz. Chen et al. (1996) observent la taille et la répartition des chenaux dans un milieu 3D par imagerie tomodensitométrique. Ils étudient l'effet de la perméabilité et du taux d'injection sur la densité de chenaux et la saturation effective du milieu (le volume total d'eau déplacé). Selker et al. (2007) décrivent la forme des panaches d'air observés comme résultant de la création de multiples chenaux qui se déplacent latéralement de façon aléatoire, et proposent une description quantitative de leurs caractéristiques géométriques. Enfin, Peterson et al. (2001) identifient pour des sables fins $(d_{grains} < 21 \text{ mm})$ un troisième type de circulation du gaz qu'ils nomment "chamber flow". En certaines zones du milieu poreux, le gaz se répartit selon une composante dominante horizontale, et créé des "chambres" d'accumulation du gaz, reliées entre elles par des chemins continus principalement verticaux.

2.2 Modélisation 3D : circulation du gaz et réponse électrique

2.2.1 Présentation du modèle

Structure du modèle

Le modèle présenté ici est construit sous la forme d'un automate cellulaire. L'espace géométrique est défini à partir d'une matrice 3D parallélépipédique, de dimension $d \times d \times h$, d étant le diamètre du réservoir utilisé par Vieira (2013) (d = 48 cm) et h sa hauteur (h = 75 cm). Les coordonnées matricielles (i,j,k) sont utilisées directement comme des coordonnées cartésiennes (x,y,z). Chaque terme de la matrice correspond alors à un élément cubique de 1 cm de côté, que nous qualifions dans la suite de cellule.

Dans cette matrice 3D implémentée sous Matlab, on définit le volume de notre réservoir cylindrique en assignant la non-valeur "NaN" aux cellules situées à l'extérieur des frontières du cylindre, et la valeur 1 aux cellules situées à l'intérieur (figure 3.20). L'ensemble des cellules auxquelles la valeur 1 est assignée constitue donc le maillage cellulaire représentant le réservoir cylindrique et le milieu d'étude.



FIGURE 3.20 – Vue isométrique de la matrice parallélépipédique. Les cellules vertes sont celles auxquelles on a assigné la valeur 1 et qui représentent la discrétisation effective du milieu d'étude.

Fonctionnement du modèle

Le principe de base du modèle est de faire évoluer les valeurs des cellules qui constituent le réservoir cylindrique. En substance, on simule l'évolution de la circulation du gaz dans le milieu, on en déduit la saturation effective dans chaque cellule, puis on calcule la réponse en résistivité électrique associée à l'aide de la loi d'Archie pour un milieu poreux partiellement saturé en eau. La figure 3.21 illustre l'ensemble du processus. Les lois implémentées qui régissent la dynamique de circulation du gaz, le calcul de la saturation, et le calcul de la résistivité (paramètres de la loi d'Archie), sont décrits plus en détail dans les paragraphes suivants.



FIGURE 3.21 – Schéma de principe du fonctionnement du modèle. Les vue isométriques présentées ici sont des distributions de valeurs aléatoires, non le résultat d'une simulation. Les valeurs des axes correspondent aux coordonnées matricielles (i,j,k), et sont interprétées comme des coordonnées cartésiennes (x,y,z) en cm.

Comparaison entre les résultats du modèle et les données expérimentales

Pour comparer les résultats du modèle avec les résultats expérimentaux de Vieira (2013), on utilise le logiciel R3T (Binley and Kemna, 2005). Comme expliqué section 1.2, ce logiciel permet d'inverser des résistances mesurées en terme de résistivité, ou de calculer le modèle direct en résistance à partir d'une distribution de résistivités donnée, pour des géométries 3D variées.

R3T résout le problème électrique direct, c'est-à-dire l'équation de Poisson $(\Delta . (\rho^{-1} \Delta V) = \varphi)$ où ρ est la résistivité, V le potentiel électrique et φ le terme source) en utilisant la méthode des éléments finis, et requiert pour cela l'utilisation de maillages composés d'éléments tétraèdriques. Les concepteurs du logiciel conseillent donc l'utilisation du générateur de maillage "Gmsh" (Geuzaine and Remacle, 2009), dans lequel on peut concevoir de façon assez intuitive la géométrie désirée, définir des points qui seront ensuite identifiés par R3T comme les positions des électrodes, et générer un maillage tétraèdrique compatible avec R3T (figure 3.22).



FIGURE 3.22 – Logiciel Gmsh. a) Construction de la géométrie du réservoir. Le cylindre fait 75 cm de hauteur et 48 cm de diamètre. Les 60 points représentant les électrodes sont situés à l'intérieur du cylindre, à une distance de 2,5 cm de la paroi, conformément à Vieira (2013). b) Visualisation du maillage tétraèdrique généré avec Gmsh. La longueur caractéristique l_c des éléments est modifiable dans le logiciel (ici $l_c = 2$).

Par une interpolation simple basée sur la position des centres des éléments, on implémente les données de résistivité issues du modèle cellulaire Matlab (décrit ci-après) dans le maillage tétraèdrique généré avec Gmsh. Puis on implémente dans R3T le protocole de mesure (configurations d'électrodes) afin de calculer le modèle direct. R3T génère des fichiers d'extension ".vtk" permettant de visualiser avec un logiciel tel que Paraview le maillage, la distribution de résistivités, et la position des électrodes (figure 3.23).



FIGURE 3.23 - Visualisation sous Paraview d'une distribution de résistivités homogène préalablement généré sous matlab. Les sphères blanches indiquent la position des électrodes.

Il existe alors plusieurs possibilités pour évaluer le comportement du modèle par rapport aux données expérimentales. On peut :

- 1. Comparer la distribution de résistivités directement issue du modèle cellulaire avec les résistivités obtenues par C. Vieira après inversion des mesures de résistances (avec le logiciel R3T). Cette méthode ne s'applique pas bien dans le cas où l'on modélise le diffuseur en plastique en assignant à certaines cellules du modèle Matlab des valeurs de résistivité très élevées ($\approx 10^{11} \Omega.m$) (voir ci-après). En effet, Vieira (2013) identifie bien la présence du diffuseur en inversant les résistances mesurées, mais l'anomalie de haute résistivité observée n'atteint pas des valeurs si élevées (c.f. figure 3.28).
- 2. Calculer avec le logiciel R3T (Binley and Kemna, 2005) le modèle direct associé à la distribution de résistivités issue du modèle, et comparer les résistances ainsi obtenues avec les résistances effectivement mesurées par C. Vieira.
- Calculer le modèle direct, inverser les résistances obtenues, et comparer les résultats de l'inversion des données synthétiques (issues du modèle cellulaire) avec les résultats d'inversion des données Vieira (2013).

2.2.2 Modélisation de l'état initial

Modéliser la réponse en résistivité électrique de l'état initial du système (c'est-à-dire avant l'injection de gaz) nous a permis de procéder à une première calibration des paramètres régissant le modèle, notamment les paramètres implémentés dans la loi d'Archie, et également d'évaluer l'impact de la présence du diffuseur en plastique sur les mesures.

Modélisation du diffuseur

Le diffuseur en plastique, hautement résistant, a un impact non négligeable sur les mesures. Nous avons choisi de le modéliser en assignant des valeurs de résistivité très élevées ($\approx 10^{11} \Omega.m$) aux cellules correspondant à sa position. La figure 3.24 montre une coupe verticale et une coupe horizontale de la matrice de résistivité, qui illustrent bien la forme du diffuseur tel qu'il est mis en place dans le réservoir cylindrique (diffuseur posé sur un support en plastique creux).



FIGURE 3.24 – Modélisation du diffuseur par assignation de résistivités élevées. a) Coupe horizontale à la hauteur z = 23 cm. b) Coupe verticale dans l'axe du cylindre (distance x = 24 cm)

Paramètres de la loi d'Archie

La loi d'Archie, sous sa forme la plus utilisée aujourd'hui, s'écrit :

$$\rho_r = \rho_f \phi^{-m} S^{-n} \tag{3.1}$$

avec ϕ la porosité du milieu, ρ_r la résistivité de la roche (en Ω .m), ρ_f la résistivité du fluide saturant (en Ω .m), m le facteur de cimentation, qui dépend de la forme des pores, du degré de compaction de la roche, et dont la signification et valeurs sont encore discutées dans la littérature (e.g. Glover, 2009), S la saturation en fluide, et n l'exposant de saturation, ajustable, compris entre 1,3 et 2 pour des roches non-consolidées et proche de 2 pour des roches consolidées. Il y a eu, au cours des dernières décennies, un certain nombre de travaux qui proposent des modèles alternatifs ou des expansions de la loi d'Archie pour calculer la résistivité d'un milieu poreux. La table 1 de Glover (2010) rassemble quelques uns de ces modèles, qui sont pour la plupart des lois de mélange. De plus, dans le cas de la loi d'Archie telle qu'elle est exprimée précédemment, de nombreux auteurs ont reporté des valeurs différentes pour les exposant de saturation et de cimentation (Friedman, 2005). Quel loi est la plus adaptée au milieu considéré ? Quels valeurs d'exposant choisir ? Il est difficile de répondre à ces questions sans une connaissance précise du milieu étudié. Connectivité, tortuosité, granulométrie, forme des grains sont autant de facteurs qui influencent la réponse électrique du milieu et dont la méconnaissance génère nécessairement des imprécisions dans l'estimation de la résistivité. Dans notre cas, nous disposons de mesures fiables de la porosité et du facteur de formation . De plus, la conductivité du fluide pour chaque expérience est indiquée dans Vieira (2013). Nous avons tout d'abord tenté de reproduire la réponse électrique de notre système en utilisant différents modèles, en estimant les valeurs des paramètres inconnus, le plus souvent en cherchant dans la littérature des cas analogues. Mais ces tentatives se sont avérées infructueuses.

Finalement, les meilleurs résultats ont été obtenus en appliquant la première loi d'Archie (Archie, 1942), et en utilisant le facteur de cimentation m comme variable d'ajustement.

Pour un milieu totalement saturé, on a :

$$\rho_r = \rho_f \phi^{-m} \tag{3.2}$$

Pour les expériences avec le sable de Fontainebleau, la conductivité de l'eau saturante vaut $\sigma_f = 0, 121 \text{ S.m}^{-1}$, et l'on a donc $\rho_f = 8, 26 \ \Omega.m$. La porosité du sable de Fontainebleau utilisé a été mesurée par Vieira (2013), et vaut $\phi = 0, 38$. Nous avons évalué la valeur du facteur de cimentation m lors d'expériences de déplacement miscible effectuées a posteriori dans notre laboratoire. Le déroulement et les résultats de ces mesures sont donnés à la section 1.3.4 (p.205), d'où l'on infère : $m = 1, 55 \pm 0, 05$.

Nous avons implémenté ces paramètres dans le modèle cellulaire. On obtient une distribution de résistivités homogène, excepté au niveau des cellules qui simulent la présence du diffuseur, auxquelles on a assigné une résistivité très élevée (figure 3.24). On calcule ensuite le modèle direct avec R3T en utilisant un protocole de mesure identique à celui de Vieira (2013). On peut alors comparer, pour chaque mesure, la valeur de résistance obtenue à partir des données synthétiques avec la valeur de résistance effectivement mesurée par Vieira (2013) sur le réservoir à l'état initial.

On calcule alors pour chaque mesure *i* la quantité $E_{(i)}$, définie par :

$$E_{(i)} = \left| R_{mes(i)} \right| - \left| R_{mod(i)} \right| \tag{3.3}$$

où $E_{(i)}$ est l'écart entre la résistance mesurée et la résistance modélisée, R_{mes} $_{(i)}$ la valeur de la résistance obtenue dans Vieira (2013) pour la mesure *i*, et R_{mod} $_{(i)}$ la valeur de la résistance

obtenue après modélisation sous Matlab de l'état initial et calcul du modèle direct avec le logiciel R3T.

Le protocole utilisé par Vieira (2013) est le protocole "cross-rods" décrit en section 1.2. Il est composé de 450 mesures différentes agencées de la façon suivante : les 45 premières mesures correspondent à toutes les configurations d'électrodes de type "cross-rods" réalisées dans le plan 1 (z = 68 cm), les 45 suivantes sont les configurations du plan 2 (z = 63 cm), et ainsi de suite jusqu'au plan 10 (z = 18 cm).

Le graphique a) de la figure 3.25 représente les valeurs du vecteur écart \mathbf{E} en fonction du numéro de la mesure pour les paramètres m, ϕ et ρ_f définis précédemment. On peut voir que les 90 premières valeurs sont relativement faibles. On observe des écarts en valeur absolue inférieurs à 2 Ω pour 90 % des mesures. Pour les mesures numérotées 90 et plus, on commence à observer un décrochage vers des écarts positifs. Les résistances mesurées par Vieira (2013) sont supérieures à celle obtenues après modélisation. Nous avons alors utilisé m comme variable d'ajustement. De nombreuses solutions ont été testées, et le meilleur résultat a été obtenu en rendant m dépendant de la hauteur dans le réservoir. La relation que nous avons retenue est :

Si on a z < 58cm :

$$m_{z<58} = 1,8 - \frac{0,25 \times (z-1)}{h_{de}}$$
(3.4)

Et pour z > 58cm :

$$m_{z>58} = 1,55\tag{3.5}$$

où z est la position verticale dans le réservoir ($z \in [1,73]$ cm), et h_{de} est la hauteur de "décrochage", en dessous de laquelle l'écart entre résistances modélisées et mesurées commence à augmenter, à "décrocher" ($h_{de} = 58$ cm). Cette relation traduit simplement une variation linéaire du facteur de cimentation m entre les hauteurs $z_1 = 1$ cm et $z_2 = 58$ cm (voir figure 3.26).

Le graphique b) de la figure 3.25 illustre bien l'amélioration obtenue. Les écarts entre résistances modélisées et mesurées forment une zone plus compacte, centrée sur l'axe des abscisses. La moyenne de la distribution des écarts vaut $E_{moy} = -0,35 \ \Omega$, et l'écart type $\sigma_E = 1,08 \ \Omega$.

Les relations 3.4 et 3.5 ne possèdent pas de base physique : elles ont été obtenues empiriquement, après un certain nombre de simulations tests. Toutefois, elles sont le résultat de la réflexion ci-après :

On observe sur le graphique a) de la figure 3.25 que l'écart entre résistances modélisées et mesurées tend à augmenter avec le numéro de mesure, c'est-à-dire lorsqu'on se dirige vers les faibles valeurs de z, i.e, vers le fond du réservoir. Il semblait alors logique que le paramètre d'ajustement choisi rende compte de cette dépendance avec la position verticale. Or Vieira (2013) a mesuré à l'état initial la conductivité électrique d'échantillons d'eau prélevés au sommet



FIGURE 3.25 – Représentation de l'écart entre les valeurs absolues des résistances modélisées et des résistances mesurées pour les expériences avec le sable de Fontainebleau totalement saturé. a) Les paramètres de la loi d'Archie sont fixes : m = 1,55, $\phi = 0,38$ et $\rho_f = 8,26 \ \Omega$.m. L'écart moyen augmente nettement avec le numéro de la mesure (i.e la profondeur). b) La valeur du facteur de cimentation m varie linéairement avec la hauteur (voir figure 3.26).

et au bas du réservoir, et a trouvé des valeurs trop proches pour permettre de supposer un gradient vertical de la conductivité de l'eau au sein du réservoir. Des recherches bibliographiques ont également exclu l'idée d'une réduction de la porosité due au gradient de pression au sein du milieu. Par exemple, Zimmer et al. (2002) ont mesuré les changements de porosité induits par l'application de hautes pressions sur des milieux granulaires non consolidés de porosité effective analogue au sable de Fontainebleau (≈ 4 %). Pour une pression de 20 MPa, la variation de



FIGURE 3.26 – Evolution retenue de la valeur du facteur de cimentation m en fonction de la hauteur z dans le réservoir cylindrique. L'évolution est linéaire entre les hauteurs $z_1 = 1$ cm et $z_2 = 58$ cm.

porosité maximale observée est de 0,03 %. Dans notre cas, un rapide calcul nous montre que la pression au fond de notre réservoir rempli de sable saturé en eau est de l'ordre de 0,03 MPa, soit 3 ordres de grandeur sous la valeur critique. L'éventualité d'une réduction de la porosité est donc exclue.

Après cette réflexion, nous émettons l'hypothèse que lors de la mise en place du sable, se produit un effet de ségrégation entre les différentes couches de sable. le poids des couches de sable nouvellement déposées accentue le degré de compaction des couches inférieures, réduit la connectivité du réseau poreux, et induit des valeurs du facteur de cimentation m plus élevées vers le fond du réservoir.

Cas des expériences avec le sable carbonaté

Dans ses travaux, Vieira (2013) donne peu de détails sur les paramètres expérimentaux relatifs aux expériences réalisées avec le sable carbonaté. On connaît la conductivité électrique de l'eau utilisée ($\sigma_f = 0,066 \text{ S.m}^{-1}$) et donc sa résistivité ($\rho_f = 15,15 \ \Omega.\text{m}$). On sait que le sable a été trié de façon à ne garder que les grains d'un diamètre inférieur à 2000 µm. La porosité, la perméabilité, et le facteur de formation n'ont pas été mesurés, mais l'auteur écrit :"we are certain that the permeability was larger than that of the Fontainebleau sand".

Pour modéliser l'état initial de ces expériences, nous avons donc décidé de calibrer d'abord notre modèle en fonction de la porosité. Le facteur de cimentation m est d'abord fixé par défaut à m = 1,55 (ce qui n'a donc pas pu être validé expérimentalement mais reste plausible pour un milieu granulaire non-consolidé). Nous avons ensuite testé plusieurs valeurs de porosité jusqu'à obtenir des écarts entre résistances mesurées et modélisées satisfaisants. Les meilleurs résultats ont été obtenus pour la valeur $\phi = 0, 45$ et sont représentés sur le graphique a) de la figure 3.27 On observe alors à nouveau une augmentation de l'écart vers les numéros de mesure plus élevés, comme dans le cas du sable de Fontainebleau. Nous avons donc utilisé les mêmes relations 3.4 et 3.5 pour simuler l'effet de la compaction sur les valeurs du facteur de cimentation m. On obtient à nouveau des résultats satisfaisants (graphique b de la figure 3.27), les points sont bien centrés autour de l'axe des abscisses, la moyenne de la distribution des écarts vaut $E_{moy} = -0,035 \ \Omega$, et l'écart type $\sigma_E = 1.33 \ \Omega$.

Inversion des résistances mesurées et modélisées

Sur la figure 3.28 on peut observer et comparer les résultats de l'inversion des résistances mesurées et modélisées de l'état initial, pour les expériences avec le sable de Fontainebleau (coupes a et b) et pour les expériences avec le sable carbonaté (coupes c et d). Pour le sable de Fontainebleau, on observe dans les deux cas une anomalie de haute résistivité au centre du réservoir, qui correspond à la position du diffuseur en plastique. L'inversion issue du modèle synthétique reproduit correctement les résistivités obtenues après inversion des données expérimentales. La position et la forme de l'anomalie correspondent. On note cependant des valeurs



FIGURE 3.27 – Représentation de l'écart entre les valeurs absolues des résistances modélisées et des résistances mesurées pour les expériences avec le sable carbonaté. a) Les paramètres de la loi d'Archie sont fixes : m = 1, 55, $\phi = 0, 45$ et $\rho_f = 15, 15 \ \Omega$.m. L'écart moyen augmente nettement avec le numéro de la mesure (i.e la profondeur). b) La valeur du facteur de cimentation m varie linéairement avec la hauteur.

de résistivité légèrement supérieures au niveau du diffuseur pour l'inversion du modèle, et des valeurs légèrement inférieures sous le diffuseur.

Pour le sable carbonaté, on observe sur la coupe c) que la position du diffuseur est moins bien définie. L'anomalie s'étend jusqu'au fond du réservoir. Le diffuseur est mieux localisé sur la coupe d), mais l'échelle de couleur utilisée (définie selon le même principe que pour la figure 3.25) révèle également un certain nombre d'artefacts créés lors du processus d'inversion.

De façon générale, le processus d'inversion est donc moins bien contraint dans le cas du sable carbonaté que pour le sable de Fontainebleau. Une explication possible fait intervenir le protocole de mesure utilisé. En effet Vieira (2013) a supprimé certaines mesures du protocole "cross-rods" qu'il utilisait pour le sable de Fontainebleau, vraisemblablement pour accélérer le processus d'inversion. Ces mesures correspondent aux configurations d'électrodes où le dipôle d'injection du courant et de mesure du potentiel sont perpendiculaires. De cette configuration particulière résulte des mesures de résistances très faibles et il est certain que les retirer accélère grandement le calcul du modèle inverse. Toutefois, cet exemple montre qu'il est également probable que la précision du processus d'inversion en soit fortement affectée, et que ces configurations contraignent finalement mieux l'inversion. Nous rediscuterons ce point plus longuement dans la section 3 de ce chapitre.



FIGURE 3.28 – Visualisation sous Paraview des résultats de l'inversion des résistances mesurées (a) et modélisées (b) à l'état 0, pour les expériences avec le sable de Fontainebleau. On montre des coupes verticales du cylindre le long de l'axe y. L'échelle de couleur est choisie de telle sorte que la transition grise entre bleu et rouge corresponde à la valeur maximale de résistivité calculée dans le modèle (en excluant les hautes valeurs de résistivité qui représentent le diffuseur.)

2.2.3 Modélisation de la circulation du gaz

Dans la section 2.1, nous avons décrit les principaux régimes de circulation d'un gaz lors d'une injection dans un milieu granulaire non consolidé totalement saturé en eau. Pour résumer brièvement, le gaz peut circuler sous forme de bulles, sous forme de chemins continus, ou selon des régimes intermédiaires appelés dans la littérature "mixed flow" ou "flow". Le principal paramètre discriminant ces différents régimes est la taille des grains qui composent le milieu poreux. Dans les expériences de Vieira (2013) les tailles des grains composant les sables utilisés $(d < 2000 \ \mu\text{m}$ pour le sable carbonaté, et 200 $\ \mu\text{m} < d < 400 \ \mu\text{m}$ pour le sable de Fontainebleau) nous indiquent que la circulation du gaz se fait probablement sous la forme de chemins continus, ou selon le régime intermédiaire "slug flow" (chemins discontinus) pour le sable carbonaté qui possède un diamètre de grain maximal supérieur.

A partir de ces considérations, nous avons développé notre modèle de circulation du gaz en nous basant sur les travaux effectués par Selker et al. (2007) et Peterson et al. (2001). L'étude de Selker et al. (2007) donne notamment une description physique de la géométrie des chemins de circulation et propose une estimation du nombre de chemins formés en fonction des caractéristiques du milieu et du taux d'injection de gaz. Nous avons appliqué ces considérations pour modéliser les chemins de circulation pour les deux types d'expériences (sable de Fontainebleau et sable carbonaté)

Il convient de rappeler que le modèle que nous avons développé offre donc uniquement une description physique de la circulation du gaz dans le milieu granulaire, et que les phénomènes de dissolution du gaz et/ou du milieu granulaire ne sont pas pris en compte. Dans le cas de l'injection de CO_2 dans du sable carbonaté notamment, la dissolution d'une partie du CO_2 et les modifications de l'espace poral conséquentes à la dissolution d'une partie des carbonates ont probablement un impact sur le mode de circulation du gaz. Ces aspects ne sont pas inclus dans notre modèle, qui n'a donc vocation à être appliqué qu'aux expériences pour lesquelles les phénomènes de dissolution sont absents, ou pour lesquelles l'impact de la dissolution sur la résistivité du milieu est négligeable face à l'impact de la désaturation (e.g., l'injection de CO_2 dans du sable de Fontainebleau, c.f. section 1.5).

Géométrie des chemins

Ainsi, si la taille moyenne des grains est suffisamment petite, le gaz circule sous la forme de chemins continus macroscopiques. L'explication physique que donne Selker et al. (2007) de ce phénomène peut être résumée en ces termes :

Dans un milieu poreux saturé en eau, si l'on est suffisamment loin de la zone d'injection, le mouvement du gaz est principalement induit par la différence de densité qui existe entre les deux fluides. Selker et al. (2007) parlent de force de flottabilité ("buoyant force"). Le gaz se déplace alors en suivant les chemins de moindre dissipation d'énergie, c'est-à-dire de moindre résistance. Or dans des milieux granulaires suffisamment fins, les forces capillaires sont trop élevées par rapport aux forces de flottabilité pour permettre le passage du gaz directement entre deux pores verticalement adjacents. Le gaz va donc en premier lieu envahir les pores latéraux, jusqu'à former une zone de pores désaturés au sein de laquelle l'ensemble des forces de flottabilité sont suffisantes pour surpasser la pression capillaire et déplacer l'eau vers les pores adjacents verticaux.

Si la circulation du gaz reste dominée par les forces de flottabilité (i.e., pas d'influence de la pression d'injection), l'expansion de cette zone de pores désaturés résulte alors en la formation

de chemins continus.

Afin d'estimer le diamètre de ces chemins, Selker et al. (2007) font l'hypothèse simplifiée d'une géométrie cylindrique, à extrémité hémisphérique (figure 3.29). La croissance verticale du chemin est dépendante du rapport entre la force de flottabilité produite par le front hémisphérique (F_B) et la force de restriction imposée par la pression capillaire (F_S). Avec l'approximation d'un chemin cylindrique on a,

$$F_B = \frac{2\pi \Delta \rho g R^3 \theta_g}{3} \tag{3.6}$$

et :

$$F_S = 2\pi R \sigma \theta_g \tag{3.7}$$

avec R le rayon de l'hémisphère, g l'accélération de la pesanteur, $\Delta \rho$ la différence de densité entre l'eau et le gaz, σ la tension superficielle entre le gaz et l'eau, et θ_g la fraction volumique de gaz.



FIGURE 3.29 – Approximation de la géométrie des chemins de circulation du gaz, modifié d'après Selker et al. (2007). L'extrémité hémisphérique du cylindre produit une force de flottabilité F_B , qui s'oppose à la force de restriction F_S induite par la pression capillaire des pores supérieurs.

Le chemin cylindrique s'étend dans la direction verticale à partir du moment où les forces de flottabilité s'équilibrent avec les forces de restriction. On peut alors déterminer le rayon de croissance du chenal en résolvant l'équation :

$$F_S = F_B \tag{3.8}$$

On obtient :

$$R = \sqrt{\frac{3\sigma}{\Delta\rho g}} \tag{3.9}$$

Pour une injection de CO_2 dans un milieu granulaire saturé en eau, le rayon calculé est de l'ordre de 0,5 cm.

Nombre de chemins formés

Selker et al. (2007) proposent aussi une estimation du nombre de chemins formés lors d'un injection de gaz. Nous résumons ici brièvement le raisonnement qu'ils ont suivi pour obtenir cette estimation.

Pour un gaz incompressible circulant dans un milieu poreux, la loi de Darcy sous sa forme usuelle s'écrit localement :

$$Q = -\frac{\kappa A}{\mu} \frac{dP}{dr} \tag{3.10}$$

où Q est le vecteur flux d'air induit par le gradient d'énergie potentielle $\frac{dP}{dr}$, A est la surface au travers de laquelle l'air circule, κ est la perméabilité au gaz du milieu (qui dépend de la saturation en gaz du milieu), et μ est la viscosité dynamique du gaz.

Loin de la source d'injection, si l'on considère le milieu homogène, le mouvement du gaz dans un chenal déjà formé, continu, et stable, est régi par un gradient vertical équivalent au gradient de pression hydrostatique (Selker et al., 2007). L'équation 3.10 peut alors s'écrire :

$$Q = \frac{\kappa A_T \left| \Delta \rho \right| g}{\mu} \tag{3.11}$$

Où A_T désigne la somme totale des aires formées par l'intersection des chemins de circulation du gaz avec une section transversale horizontale au travers de laquelle le gaz circule.

En considérant que A_T est la somme des aires formées par N chemins identiques traversant la section horizontale, et en utilisant l'expression du rayon d'un chemin défini précédemment (3.9), on obtient une estimation du nombre de chemins effectivement créés :

$$N \approx \frac{Q\mu}{3\pi\sigma\kappa} \tag{3.12}$$

La perméabilité au gaz n'étant pas connu, on l'approxime par la perméabilité en eau qui vaut 5 D. Ensuite, en prenant $\sigma = 72 \text{ mN.m}^{-2}$ (Vargaftik et al., 1983; Chalbaud, 2007), $\mu_{N_2} =$ 1,76.10⁻⁵ kg.m⁻¹.s⁻¹ (White, 2010) et $Q = 200 \text{ L.h}^{-1}$ (Vieira, 2013), le nombre de chemins formés lors de l'injection de gaz dans le sable de Fontainebleau est de l'ordre de :

$$N \approx 300 \tag{3.13}$$

Vieira (2013) n'a pas mesuré la perméabilité du sable carbonaté, mais assure qu'elle est plus élevée que celle du sable de Fontainebleau. Le nombre de chemins formés au cours des expériences avec le sable carbonaté sera donc considéré inférieur à 300.

Mode de circulation des chemins

La figure 3.30 reprend les distributions de résistivité obtenues après inversion des mesures d'injection de gaz de Vieira (2013). Sous réserve de la validité des inversions, on observe que les anomalies de résistivité induites par l'injection de gaz n'ont pas la même forme selon le type de sable utilisé.



FIGURE 3.30 – Distribution de résistivités obtenue après inversion des mesures lors d'une injection de gaz. a.1) Injection de N₂ dans du sable de Fontainebleau, inversion par différence. a.2) Injection de CO₂ dans du sable de Fontainebleau, inversion par différence. b) Injection de N₂ dans du sable carbonaté. Inversion simple.

Sur les images a.1) et a.2), qui concernent des expériences réalisées avec du sable de Fontainebleau, on observe une forte anomalie positive, centrée dans la partie basse du cylindre. On estime que cette anomalie est la conséquence d'une forte concentration de gaz dans la partie basse du cylindre, et d'une concentration moindre dans la partie supérieure. Sur l'image b), qui concerne l'expérience avec du sable carbonaté l'anomalie possède une forme parabolique, centrée sur la position du diffuseur, qui s'étend davantage vers le haut du réservoir. Ces observations nous conduisent à penser que les chemins de gaz circulent de façon différente selon le type de sable utilisé.

1. Répartition parabolique. La circulation sous forme parabolique est largement observée dans la littérature (e.g., Ji et al., 1993; Semer et al., 1998; Selker et al., 2007) (voir figure 3.31). Selker et al. (2007) proposent des considérations stochastiques pour décrire la variabilité latérale des chemins de circulation qui conduisent à la formation de ces panaches paraboliques. Ils expliquent que chaque chemin préférentiel croît vers le haut sous l'effet des forces de flottabilité, et se déplace horizontalement vers les pores adjacents les plus larges. En l'absence de variation géométrique notable du milieu (faille, poche), et dans le cas d'un milieu globalement isotrope (sable tamisé saturé en eau), on peut considérer que la probabilité qu'un chemin cylindrique s'oriente dans une direction latérale ou une autre est la même. La distribution de probabilités de la position d'un chemin dans le plan horizontal suit alors une loi gaussienne, et la densité de chemins est maximale à l'aplomb du point d'injection (figure 3.32).



FIGURE 3.31 – Panaches de forme parabolique observés lors de l'injection d'air dans un réservoir 2D rempli de sable totalement saturé en eau, pour différentes pressions et débits d'injection. (Modifié d'après Selker et al. (2007)).



FIGURE 3.32 – Représentation schématique de la répartition gaussienne des chemins préférentiels. Modifié d'après Selker et al. (2007). En noir : les chemins de circulation, en bleu : la distribution de densités associée.

2. Répartition en chambre d'accumulation. Dans le cas du sable de Fontainebleau, les distributions de résistivité obtenues après inversion des mesures semblent exclure l'idée d'un panache de forme parabolique. Elles suggèrent une répartition du gaz plus importante dans la partie basse du réservoir que dans la partie haute (figures 3.12 et 3.13). Ainsi, pour tenter de modéliser ce comportement, nous nous sommes inspirés des travaux de Peterson et al. (2001), qui observent expérimentalement et décrivent pour des sables fins un nouveau mode de circulation du gaz qu'ils nomment "chamber flow", et dont nous avons brièvement parlé à la fin de la section 2.1. Ce type d'écoulement est caractérisé par une zone d'accumulation du gaz à composante dominante horizontale (figure 3.33). Peterson et al. (2001) attribuent ce comportement à la stratification inévitable du sable lors de sa mise en place dans le réservoir. Les grains de sable sont partiellement triés en fonction de leur densité et de leur diamètre lors de leur dépôt. Ces phénomènes de stratification favorisent la circulation du gaz selon des composantes horizontales.

L'idée d'implémenter le mode d'écoulement décrit par Peterson et al. (2001) dans notre modèle a été supportée en premier lieu par des observations personnelles faites lors d'expériences similaires (c.f. chapitre 3). Pour résumer, nous avons également procédé à des injections de gaz dans du sable de Fontainebleau totalement saturé en eau, et avons pu observer des zones de désaturation similaires à celles décrites dans Peterson et al. (2001). Dans notre cas, ces zones de désaturation sont localisées dans une zone décimétrique située immédiatement au dessus du niveau du diffuseur (voir figure 3.34). L'implémentation du mode d'écoulement en chambre d'accumulation est également supportée par le fait que la granulométrie du sable de Fontainebleau (200 μ m < d < 400 μ m) est du même ordre que celle des sables utilisés par
Peterson et al. (2001) ($d < 210 \ \mu m$).



FIGURE 3.33 – Illustration photographique (a) et schématique (b) d'une chambre d'accumulation du gaz lors d'une expérience de bullage *in-situ* (air sparging) en laboratoire. On observe bien la composante principale horizontale caractéristique de la zone. Modifié d'après Peterson et al. (2001)



FIGURE 3.34 – Exemple de zones de désaturation observées lors des expériences en laboratoire décrites au chapitre 3. Dans une zone décimétrique située immédiatement au dessus du diffuseur, le gaz forme une chambre d'accumulation aussi large que le cylindre.

Evolution des chemins de circulation - Approche stochastique

Le modèle décrit l'évolution de chaque chemin préférentiel de façon indépendante et itérative. Chaque chemin est créé à la sortie du diffuseur, à une position déterminée aléatoirement, puis il croît vers le haut du cylindre tout en se déplaçant latéralement selon les considérations stochastiques décrites ci-après. Ce modèle ne présente donc pas une évolution temporelle de la circulation du gaz dans la cuve. Lorsque chaque chemin préférentiel a atteint le haut du cylindre, on considère que le gaz qui continue à être injecté empruntera ces chemins déjà créés, et que l'on a atteint un état d'équilibre quasi-statique, conformément à ce qui a été observé par Vieira (2013).

Pour définir la trajectoire de chaque chemin à travers les cellules du modèle, on implémente des lois de probabilité qui vont, à chaque itération, déterminer les mouvements (verticaux ou latéraux) du chemin. A chaque type d'écoulement (panache parabolique ou chambre d'accumulation) correspond une loi propre, mais dans les deux cas, elles suivent le principe suivant :

Considérons le front d'un chemin positionné à la cellule de coordonnées matricielles (i,j,k). On contraint le gaz à seulement deux possibilités : évoluer *latéralement* ou *verticalement*.

Pour un mouvement *latéral*, le gaz a la possibilité d'envahir une des cellules adjacentes qui ont au moins une arrête en commun avec la cellule (i,j,k) (voir figure 3.35). On en dénombre donc 8, et elles ont toute la même probabilité d'être envahie.

Pour un mouvement *vertical*, le gaz peut envahir, à probabilité égale, une des cellules située au-dessus ayant au moins un sommet en commun avec la cellule (i,j,k). On en dénombre donc 9 (8+la cellule situé directement au-dessus).



FIGURE 3.35 – Schéma de l'environnement d'une cellule de coordonnées matricielles (i,j,k) et des possibilités de mouvement du gaz.

Le principe est ensuite d'assigner une certaine probabilité P_H (fixe ou variable) à l'événement H : "le gaz évolue horizontalement", et la probabilité complémentaire P_V à l'événement V : "le gaz évolue verticalement".

$$P_H = 1 - P_V \tag{3.14}$$

Ainsi, pour modéliser un panache de gaz parabolique, tel que décrit dans Selker et al. (2007), il suffit d'assigner une probabilité constante à l'événement H. On peut ensuite influer sur le degré de répartition latérale du panache en modifiant la valeur de cette probabilité (figure 3.36). Plus cette dernière sera élevée plus le panache aura tendance à s'étendre latéralement.



FIGURE 3.36 – Modélisation de la circulation du gaz sous la forme d'un panache parabolique pour différentes valeur de la probabilité P_H . La simulation de l'injection génère 300 chemins de circulation du gaz. L'échelle de couleur désigne le nombre de chemins de circulation qui passent dans chaque cellule.

La modélisation de la circulation du gaz selon cette simple loi de probabilité donne lieu à une répartition latérale des chemins de circulation cohérente avec la description gaussienne donnée dans Selker et al. (2007) (voir l'exemple figure 3.37).



FIGURE 3.37 – Répartition latérale des chemins de circulation du gaz pour une probabilité $P_H = 0, 7$. A partir d'un coupe verticale parallèle à l'axe des x, on somme le nombre de chemins passant par les cellules situées à chaque abcisse. On fait de même avec une coupe verticale parallèle à l'axe des y. On représente la moyenne des 2.

Pour modéliser le mode circulation sous la forme d'une chambre d'accumulation, nous avons implémenté une loi de probabilité dépendante de la position verticale du chemin dans le cylindre :

$$P_{H} = \exp(\frac{z - z_{diff}}{z_{max} - z_{diff}}) (1 - \frac{z - z_{diff}}{z_{max} - z_{diff}})$$
(3.15)

avec z la position verticale du front du chemin de circulation, z_{diff} la hauteur de la surface du diffuseur, et z_{max} la hauteur de la surface du milieu. Cette relation implique une forte probabilité de mouvement latéraux sur les premiers centimètres à la sortie du diffuseur. Cette probabilité reste haute et décroît rapidement lorsque l'on approche de la surface du réservoir, jusqu'à être nulle une fois atteinte la surface (figure 3.38).



FIGURE 3.38 – Représentation de l'évolution de la probabilité P_H en fonction de la position verticale du chemin dans le réservoir.

L'utilisation de cette loi de probabilité a donc pour conséquence une forte concentration de chemins de circulation dans les premiers centimètres au-dessus du diffuseur, comme le montre la figure 3.39. Cette concentration est moindre dans la partie supérieure du réservoir, car en s'approchant de la surface, les chemins tendent à évoluer principalement verticalement.



FIGURE 3.39 – a) Modélisation de la circulation du gaz sous la forme d'une chambre d'accumulation. L'échelle de couleur dénombre le nombre de chemins de circulation passant par chaque cellule. Par souci de clarté, pour un nombre supérieur ou égal à 4, la couleur reste la même. b) Histogramme du nombre total de chemins traversant chaque section horizontale. On observe bien la forte concentration sur les quelques centimètres au dessus du diffuseur.

Evolution de la saturation

A l'aide d'un scanner à rayon X, Chen et al. (1996) ont étudié l'évolution de la saturation lors de l'injection d'air dans différents milieux granulaires non consolidés (Sable d'Ottawa). Ils sont parvenus à identifier les chemins et zones de circulation du gaz et à quantifier l'état de la saturation en eau dans ces zones. Pour résumer brièvement ces travaux, les auteurs observent, dans des milieux à haute perméabilité (106 D), la formation de chemins tortueux, discontinus, au sein desquels la saturation en air est assez faible ($S_{air} \approx 0, 1$). Pour des sables à faible perméabilité (3 D), l'air envahit le milieu quasiment dans sa totalité, et les auteurs observent des saturations en air allant de 0,4 à 0,5.

Le sable de Fontainebleau utilisé dans les expériences de Vieira (2013) possède une perméabilité du même ordre de grandeur (≈ 5 D) que le sable de faible perméabilité utilisé par Chen et al. (1996). On peut donc raisonnablement supposer pour ces expériences une répartition du gaz sur l'ensemble du milieu, en concordance avec l'hypothèse de la formation d'une large chambre d'accumulation, au sein de laquelle la saturation en air serait de l'ordre de celle observée par Chen et al. (1996) pour des sables peu perméables (3 D). Nous ne possédons que peu d'informations sur la perméabilité du sable carbonaté utilisé dans Vieira (2013) mais il est cependant peu probable qu'elle soit de l'ordre de la centaine de darcys, comme celle du sable très perméable utilisé par Chen et al. (1996). Nous pensons que la perméabilité du sable carbonaté est de l'ordre de la dizaine de darcys, et donc plus proche du comportement des sables peu perméables utilisés par Chen et al. (1996). C'est pourquoi dans la suite nous avons considéré que la saturation en air atteinte dans les zones envahies par le gaz est également de l'ordre de 0,4-0,5 pour le sable carbonaté.

Le calcul de la distribution de saturations dans le cylindre se fait ensuite selon le principe suivant : on considère les chemins de circulation continus (bien que cette hypothèse puisse être discutée), et on utilise la relation 3.9 proposée par Selker et al. (2007) pour estimer le rayon des chemins de circulation formés :

$$R = \sqrt{\frac{3\sigma}{\Delta\rho g}}$$

On peut raisonnablement approximer la tension superficielle du système N₂-eau et CO₂-eau à celle du système air-eau à 25°C (Chalbaud, 2007); on prend alors la valeur $\sigma = 72 \text{ mN.m}^{-2}$ (Vargaftik et al., 1983). À 25°C, à la pression atmosphérique, La masse volumique de l'azote gazeux est $\rho_{N_2} = 1,24982 \text{ kg.m}^{-3}$ (Lide, 2004) et celle de l'eau vaut $\rho_{eau} = 1000 \text{ kg.m}^{-3}$. On prend $g = 9.807 \text{ m.s}^{-2}$, et on obtient une estimation du rayon des chemins de circulation R:

$R \approx 4,7 \text{ mm}$

Le diamètre d'un chemin de circulation est donc à peu près de l'ordre de grandeur d'une cellule du modèle (cellule cubique d'1 cm de côté). On considère alors que plusieurs chemins de circulation simulés qui traversent la même cellule sont équivalents à un unique chemin passant au travers de cette cellule (les chemins se confondent en un seul lorsqu'ils se rejoignent).

On fixe alors la valeur de la saturation en air S_a atteinte au sein des chenaux de circulation en tenant compte des considérations relatives aux travaux de Chen et al. (1996). Pour les deux sables S_a est proche des valeurs observées par Chen et al. (1996) pour des sables peu perméables (autour de 0,4-0,5).

A partir de ces valeurs fixes de saturation en gaz (figure 3.40a) et 3.41a)), on réalise un lissage en calculant la moyenne des valeurs de saturation sur l'ensemble des cubes voisins de chaque cellule (figure 3.40b) et 3.41b)).



FIGURE 3.40 – Modélisation de la circulation de gaz sous forme d'une chambre d'accumulation. a) Assignation d'une saturation en gaz S_g fixe aux cellules traversées par un chemin de circulation (ici $S_g = 0, 4$). b) Etat de la saturation en air du modèle après lissage des valeurs.



FIGURE 3.41 – Modélisation de la circulation de gaz sous forme d'un panache parabolique. a) Assignation d'une saturation en gaz S_g fixe aux cellules traversées par un chemin de circulation (ici $S_g = 0, 4$). b) Etat de la saturation en air du modèle après lissage des valeurs.

2.2.4 Calcul de la résistivité du milieu

Pour calculer la réponse en résistivité du milieu, on applique à chaque cellule du modèle la deuxième loi d'Archie (c.f. équation 3.1), en utilisant les paramètres optimisés décrits précédemment.

Le facteur de cimentation m suit les équations 3.4 et 3.5, la porosité vaut $\phi_{Font} = 0,38$

(Vieira, 2013) pour le sable de Fontainebleau. Nous avons choisi une valeur de porosité $\phi_{carb} = 0,45$ lors de la modélisation de l'état pré-injection pour le sable carbonaté, et l'exposant de saturation vaut 1,3 (sable non consolidé).

Les figures 3.42 et 3.43 montrent les distributions de résistivité obtenues pour une circulation du gaz avec formation d'une chambre d'accumulation (sable de Fontainebleau, figure 3.42) et une circulation en panache parabolique (sable carbonaté, figure 3.43).



FIGURE 3.42 – Distribution de résistivités obtenue après modélisation de la circulation de gaz avec chambre d'accumulation. Les paramètres du modèles utilisés sont ceux relatifs aux expériences avec le sable de Fontainebleau. a) Coupe verticale, b) section horizontale à la hauteur z = 70 cm, c) z = 55 cm, d) z = 40 cm, e) z = 35 cm. Les sections b), c) et d) sont présentées selon une vue isométrique et la section e) selon une vue de dessus.

Les résultats présentés ici ont été obtenus après avoir procédé à une phase de calibration du modèle, visant à se rapprocher au mieux des distributions de résistivité obtenues expérimentalement par Vieira (2013), présentées en section (1).

Les 3 principaux paramètres "leviers" lors de la calibration du modèle sont :

1. Les lois de probabilité :

Les lois de probabilité implémentées régissent le mouvement horizontal ou vertical des chemins de circulation créés lors de l'injection de gaz. En les manipulant, on peut faire varier la taille de la chambre d'accumulation simulée, ou la largeur du panache parabolique.

2. Le nombre de chemins créés.

Faire varier le nombre de chemins créés permet d'augmenter le volume des zones fortement saturées. En effet, si la densité de chemins de circulation est plus élevée, l'impact du lissage des valeurs est diminué dans la zone en question.

En utilisant les relations proposées par Selker et al. (2007) (équation 3.12), d'après les caractéristiques du sable de Fontainebleau et les paramètres d'injection de Vieira (2013)



FIGURE 3.43 – Distribution de résistivités obtenue après modélisation de la circulation de gaz en panache parabolique. Les paramètres du modèles utilisés sont ceux relatifs aux expériences avec le sable carbonaté. a) Coupe verticale, b) section horizontale à la hauteur z = 70 cm, c) z = 55 cm, d) z = 40 cm, e) z = 35 cm. Les sections b), c) et d) sont présentées selon une vue isométrique et la section e) selon une vue de dessus.

 $(Q = 200 \text{ L.h}^{-1})$ nous avons estimé qu'il se formait approximativement 300 chemins de circulation lors de l'injection d'un gaz dans le sable de Fontainebleau. C'est cette valeur qui a été utilisée pour obtenir les résultats des figures 3.40 et 3.42.

Dans le cas du sable carbonaté, nous savons seulement que la perméabilité est très certainement plus élevée (Vieira, 2013), ce qui implique que le nombre de chemins formés est nécessairement plus faible d'après la relation de Selker et al. (2007) (équation 3.12). Pour modéliser la circulation de gaz dans un sable carbonaté tel que ci-dessus, nous avons utilisé la valeur N = 200.

3. La saturation en gaz dans les chemins de circulation :

Modifier la valeur de saturation au sein des chemins de circulation influe directement sur les valeurs de résistivité calculées, et donc sur l'ampleur des anomalies induites par la dé-saturation du milieu. Dans les deux cas présentés ci-dessus, nous avons utilisé une valeur de saturation en gaz de $S_g = 0, 4$.

Les autre paramètres tels que la *conductivité du fluide*, la valeur du *facteur de cimentation* ou de *l'exposant de saturation* ont été fixés lors de la calibration modélisation de l'état initial, et les valeurs obtenues ont été gardées lors de la modélisation de l'injection de gaz.

Comparaison des résultats d'inversion - Modèle synthétique vs données expérimentales

A partir des distributions de résistivité obtenues avec le modèle, nous avons utilisé le logiciel R3T pour :

- 1. Calculer le modèle direct, c'est-à-dire les résistances qui seraient mesurées sur une telle distribution de résistivités avec les protocoles de mesures utilisés par Vieira (2013).
- 2. Inverser ces résistances synthétiques afin de comparer les distributions de résistivité inversées.

On peut visualiser ces résultats et comparaisons sur les figures 3.44, 3.45 et 3.46. Les gammes de valeurs des anomalies induites par l'injection de gaz sont bien respectées entre la modélisation et les données expérimentales. La forme des anomalies est également bien reproduite, surtout pour la modélisation du sable de Fontainebleau. Pour le sable carbonaté, le panache de résistivité après inversion est légèrement plus resserré, plus étroit.



FIGURE 3.44 – Résultats de l'inversion simple des résistances de l'état initial et de l'état post-injection issus du modèle cellulaire pour la modélisation des expériences avec le sable de Fontainebleau (circulation du gaz avec chambre d'accumulation). L'injection de gaz induit la formation d'une anomalie de résistivité positive dans la partie basse du réservoir.



FIGURE 3.45 – Modélisation des expériences avec le sable de Fontainebleau. Comparaison entre les résultats d'inversion de l'état initial et de l'état post-injection des données issues : a.1) et a.2) des expériences en laboratoire (injection de N_2 et de CO_2 , inversion par différence) et b) du modèle. L'amplitude et la forme de l'anomalie de résistivité correspondent bien, l'extension latérale de la chambre est observable.



FIGURE 3.46 – Modélisation des expériences avec le sable carbonaté. Comparaison entre les résultats d'inversion (simple) de l'état initial et de l'état post-injection pour le sable carbonaté : a) issus du modèle et b) issus des expériences en laboratoire. L'amplitude et la position de l'anomalie de résistivité correspondent bien. La forme parabolique n'est pas reproduite exactement à l'identique.

2.3 Conclusion

A l'aide d'un modèle numérique de type automate cellulaire, conçu sous Matlab, nous avons montré qu'il était possible de reproduire les réponses en résistivité induites par l'injection d'un gaz dans un milieu granulaire non-consolidé, lorsque le système n'est que peu réactif chimiquement (N_2/CO_2 et sable de fontainebleau, ou N_2 et sable carbonaté). Le développement et la calibration de ce modèle avec les observations expérimentales de Vieira (2013) ont permis de montrer que les valeurs de résistivité sont fortement dépendantes du mode de circulation du gaz dans le milieu poreux, de sa géométrie de répartition, et du niveau de saturation en eau atteint.

En l'occurrence, pour reproduire de façon satisfaisante les résultats obtenus dans le cas de sables fins (Fontainebleau $d < 400 \ \mu$.m), nous avons implémenté dans notre modèle un mode de circulation en chambre d'accumulation. Pour des sables relativement plus grossiers (sable carbonaté), nous avons appliqué avec succès un modèle de répartition du gaz sous la forme de panaches paraboliques constitués de chemins de circulation continus cylindriques.

3 Etude de sensibilité des configurations d'électrodes

Dans cette section nous présentons le déroulement et les résultats d'une étude ayant pour objectif d'évaluer la sensibilité des configurations géométriques d'électrodes utilisées lors des expériences de Vieira (2013). Pour rappel, ce dernier a testé plusieurs protocoles de mesures constitués de différentes configurations d'électrodes. A l'issue de ces tests, Vieira (2013) a pu conclure que le protocole dit "cross-rods" est le plus satisfaisant parmi les protocoles testés, i.e., le plus à même de reproduire efficacement la distribution de résistivités de milieux homogènes après inversion des résistances mesurées. Ce protocole consiste à effectuer l'ensemble des combinaisons d'électrodes possibles dans chaque plan d'électrode du cylindre. Il est donc composé de configurations géométriquement très variées. Dans la continuité de ces travaux, nous avons décidé d'étudier l'influence de la configuration géométrique des électrodes en terme de sensibilité, et d'explorer la possibilité de produire un protocole plus efficace à partir des informations ainsi obtenues.

3.1 Classes de configurations

Considérons un plan. Il contient 6 électrodes réparties symétriquement (figure 3.47). Le protocole "cross-rods" utilisé par Vieira (2013) consiste en la réalisation de toutes les mesures possibles dans chaque plan d'électrodes. Sachant qu'une mesure implique 4 électrodes (2 pour l'injection du courant et 2 pour la mesure du potentiel), on dénombre $\binom{2}{6} \times \binom{2}{4}$ soit 45 possibilités de mesures différentes par plan. Le dispositif de mesure étant composé de dix plans d'électrode équidistants (c.f. figure 3.2), le protocole "cross-rods" est composé au total de 450 mesures (en

excluant les mesures réciproques).

Parmi ces 45 possibilités de mesures, on dénombre 8 géométries d'électrodes différentes que nous appelons "classes de configurations". La figure 3.48 donne une représentation schématique de ces 8 classes, avec un numéro attribué arbitrairement



FIGURE 3.47 – Représentation schématique d'un plan. Les 6 électrodes sont disposées autour du cylindre et sont espacées les unes des autres d'un angle de 60°.



 $FIGURE \ 3.48 - Représentation \ schématique \ des \ 8 \ classes \ de \ configurations \ d'électrodes.$

Sur la figure 3.49, on représente la valeur absolue des résistances mesurées lors d'une expérience typique par Vieira (2013) avec le protocole "cross-rods". Sur ce graphique, on peut tout d'abord observer l'existence d'un ensemble de valeurs qui se répète toutes les 45 mesures, qui met bien en relief la "clusterisation" des mesures. Il est également intéressant d'observer que chaque classe de géométrie d'électrodes correspond à une gamme de valeurs de résistance mesurée bien distincte. Les classes 1 et 2 donnent des résistances du même ordre de grandeur, les classes 4 et 5 également.



FIGURE 3.49 – Représentation de la valeur absolue des résistances mesurées avec le protocole cross-rods sur un milieu homogène. Les 45 premières valeurs correspondent aux résistances mesurées dans le plan d'électrodes situé au plus haut de la cuve (Z = 68 cm), les 45 suivantes correspondent au plan suivant (Z = 63 cm), et ainsi de suite de 5 cm en 5 cm jusqu'au dernier plan à la hauteur Z = 28 cm. On observe une nette répartition des valeurs en fonction des classes de configurations d'électrode, i.e., des coefficients géométriques K associés.

On en conclu que les 45 mesures effectuées dans chaque plan d'électrodes peuvent être différenciées du point de vue de leur géométrie, et que ces différentes géométries d'électrodes possèdent une sensibilité différente.

3.2 Etude de sensibilité

Après ce travail de différenciation, nous avons conduit une étude numérique afin d'évaluer la sensibilité de chaque classe de configurations.

Concrètement, nous avons quantifié les variations de résistance mesurées induites par un changement de résistivité au sein d'un milieu initialement homogène. A l'aide du logiciel R3T, nous avons résolu le problème direct d'une part pour un milieu de résistivité homogène (25 Ω .m) assimilable à la cuve cylindrique expérimental, puis d'autre part pour le même milieu auquel on a inclus un objet cylindrique de résistivité différente (100 Ω .m). Le principe est alors de comparer les résistances obtenues à partir des deux modèles (c.f. exemple figure 3.50).



FIGURE 3.50 – Principe de base de l'étude de sensibilité : a) Génération d'un milieu homogène de résistivité 25 Ω .m, b) inclusion d'un cylindre de diamètre 8 cm positionné au centre de la cuve, et de résistivité 100 Ω .m. On compare les résistances obtenues après résolution du modèle direct pour les deux distributions de résistivité.

Le système étant isotrope dans la direction verticale, on se limite à l'étude d'un seul plan d'électrode. On compare alors les résistances obtenues en calculant directement la variation de résistance relative ∂R (en %) entre les deux modèles, et ce pour chacune des 45 mesures qui sont effectuées dans le plan :

$$\partial R = \frac{|R_{cyl}| - |R_{hom}|}{|R_{hom}|} * 100$$
(3.16)

avec R_{hom} la résistance obtenue à partir d'un milieu homogène, et R_{cyl} celle obtenue à partir du milieu avec inclusion cylindrique.

• Cartographie des valeurs de sensibilité :

Pour explorer la distribution spatiale de sensibilité, on répète ce processus de comparaison en déplaçant à chaque fois l'inclusion cylindrique à une nouvelle position dans le réservoir. La comparaison est toujours effectuée par rapport au milieu entièrement homogène, et l'on obtient ainsi une cartographie approximative des zones de sensibilité maximales et minimales pour chaque configuration (c.f. exemple figure 3.51).

Nous qualifions cette cartographie d'approximative car sa résolution est relativement faible si l'on considère la taille des cylindres qui jouent le rôle d'inclusion (diamètre 8 cm) par rapport au diamètre du réservoir (48 cm). Cette approche révèle néanmoins des informations intéressantes pour caractériser et comprendre le comportement de chaque classe de configurations d'électrodes.



FIGURE 3.51 – Cartographie de la sensibilité de mesure pour la configuration d'électrode de la classe 1. A chaque cylindre est assignée une couleur qui correspond à la variation relative de résistance pour cette géométrie d'électrode. Les positions des électrodes de mesure (P + et P-) et d'injection (C + et C-) sont indiquées en blanc.

Sur la figure 3.52, on peut observer les distributions de sensibilité pour chaque classe de configurations d'électrodes. Chaque classe de configurations possède une distribution de sensibilités différente, plus ou moins homogène sur l'ensemble de la section du cylindre et de valeurs plus ou moins élevées.



FIGURE 3.52 – Cartographie de la sensibilité de mesure pour les classes 1 à 8. Les couleurs les plus chaudes représentent les valeurs de sensibilité élevées et les couleurs froides les sensibilités faibles.

A partir de ces distributions de sensibilité, on peut distinguer deux groupes dans les classes de configurations. Les classes 1, 4, 6 et 7 possèdent une distribution de sensibilités relativement homogène sur la section, et pour la plupart (1, 6 et 7) symétrique par rapport au centre de la cuve. Parmi elles, la classe 6 présente un intérêt particulier puisqu'elle possède les plus hautes valeurs de sensibilité au centre du cylindre, ainsi que des valeurs hautes (>10 %) sur une frange diamétralement symétrique. Les classes 2, 3, 5 et 8 montrent une sensibilité plus accrue en particulier sur une partie latérale de la cuve. La classe 3 notamment présente les plus hautes valeurs de sensibilité, réparties sur un tiers de la surface de la cuve. Ainsi l'ensemble des mesures de la classe 3 fournit un balayage complet et à haute sensibilité de l'ensemble de la surface de la cuve, excepté le centre.

Il faut noter que les classes 3 et 6, qui présentent des valeurs de sensibilité plus élevées que les autres classes de configurations, sont les deux seuls impliquant des *petits dipôles* d'injection et de mesure (c.f. figure 3.48).

Une autre configuration d'électrodes qui mérite une attention particulière est celle de la classe 8. Sur la figure 3.52 on voit que les variations relatives de résistances sont extrêmement élevées (de l'ordre de 10^4). Ceci est dû au caractère numérique de l'étude, et est directement lié au fait que les dipôles d'injection et de mesure sont perpendiculaires (c.f. figure 3.48).

En effet, dans un milieu parfaitement homogène, une telle géométrie d'électrodes implique que les lignes de courant et les équipotentielles sont perpendiculaires. Cela a pour conséquence que la différence de potentiel mesurée est nulle et donc la résistance aussi. Dans le cas de notre étude numérique on obtient un résultat très proche de 0 (pas exactement 0 mais de l'ordre de 10^{-3} à cause des irrégularités du maillage, on ne travaille pas avec un cylindre parfait). Ainsi l'inclusion d'un objet de résistivité différente dans le milieu nous conduira à mesurer des résistances faibles (de l'ordre de 1 Ω , c.f. figure 3.49) avec cette classe de configurations, mais qui impliqueront tout de même variations de résistance de plusieurs ordres de grandeur.

Bien que ces considérations dépendent largement de la nature numérique de cette étude, il est légitime de se demander si cette configuration perpendiculaire ne présente pas un intérêt particulier dans le cas réel. En examinant les données de Vieira (2013) et en comparant les résultats des mesures pour l'état « zéro » (sable saturé en eau) avec l'état « actif » (sable saturé en eau + injection de CO_2) on a en effet pu constater que les variations relatives induites par l'injection de gaz sont plus élevées pour ce type de configuration. Cette idée que la déviation des lignes de courant à partir d'un état proche de la perpendicularité créé une variation plus importante pourrait signifier que cette configuration apporte beaucoup d'information sur la distribution de résistivités du milieu.

3.3 Etude des configurations spécifiques - protocoles alternatifs

L'étude précédente nous a permis d'appréhender globalement le comportement des différentes configurations d'électrodes qui composent le protocole "cross-rods" utilisé par Vieira (2013) lors de ses expériences en laboratoire. Nous avons notamment pu observer que certaines configurations présentent des caractéristiques intéressantes en terme de sensibilité et . Toutefois, cette étude est uniquement basée sur des comparaisons de résistances obtenues par le calcul du modèle direct sur des distributions de résistivité particulières.

Dans cette sous-section nous présentons des tests supplémentaires permettant d'explorer le comportement de ces configurations et surtout l'influence de ces dernières sur la qualité des résultats du processus d'inversion. L'objectif sous-jacent de cette étude est de produire un protocole de mesure possédant une résolution et une sensibilité améliorée par rapport au protocole "cross-rods", pour le type de problème étudié ici (i.e., injection de gaz dans un réservoir cylindrique rempli de sable saturé en eau).

De plus, dans ses travaux, Vieira (2013) a montré que le protocole "cross-rods" était plus à même de reproduire la distribution de résistivités d'un milieu homogène de résistivité constante (eau de conductivité connue) que les protocoles "Wenner-Schlumberger", "Wenner", et "dipôledipôle". Toutefois, ces conclusions n'ont été obtenues que dans le cas d'étude d'un milieu parfaitement homogène. Nous ne possédons donc pas d'informations sur la sensibilité aux variations de résistivité horizontales ou verticales.

Afin d'étudier les différentes classes de configurations et d'évaluer leur apport en terme de sensibilité horizontale ou verticale, nous avons mis en place une série de tests consistant à appliquer différents protocoles au calcul du modèle direct puis inverse sur des distributions de résistivité particulières, basées sur le principe d'inclusion d'un objet de résistivité dans un milieu homogène de résistivité inférieure, et qui possèdent des composantes directionnelles bien distinctes.

Principe des tests : distribution de résistivités en croix

Nous avons défini un milieu de résistivité de référence basé sur le principe de l'inclusion d'un objet de résistivité 100 Ω .m dans un milieu homogène de résistivité 25 Ω .m. Nous avons choisi d'inclure un objet en forme de croix, composé de deux parallélépipèdes positionnés perpendiculairement l'un par rapport à l'autre, et centrés sur l'axe de la cuve (figure 3.53). Nous avons fait ce choix d'une géométrie en croix afin de pouvoir évaluer conjointement la résolution verticale et horizontale des différents protocoles de mesure testés.



FIGURE 3.53 – Distribution de résistivités de base utilisée pour les différents tests de protocole. Inclusion d'un objet en croix de résistivité 100 $\Omega.m$ dans un milieu de résistivité 25 $\Omega.m$. a) Distribution générée à partir du modèle cellulaire. b) Visualisation d'un coupe isométrique de la distribution de résistivités avec Paraview, le maillage utilisé est celui implémenté dans R3T (élements tétraédriques). L'interpolation entre le maillage cellulaire et le maillage tétraédrique entraîne l'apparition de quelques éléments de résistivité intermédiaire (verts), dont l'existence est sans conséquence sur le résultat de l'inversion.

A partir de cette distribution de résistivités, on calcule le modèle direct avec le logiciel R3T et l'on inverse ensuite les résistances obtenues à nouveau avec R3T. La figure 3.54 présente les résultats de l'inversion de la distribution de résistivités en croix avec le protocole "cross-rods" dans sa globalité.

On observe que :

- 1. L'amplitude de la résistivité inversée est assez largement sous-estimée par rapport à la distribution de résistivités réelle (initiale). On observe des résistivités maximales de l'ordre de $50 60 \ \Omega$.m alors que la résistivité réelle de l'objet est de 100 Ω .m.
- 2. Le protocole "cross-rods" possède une sensibilité aux variations horizontales de résistivité relativement bonne. On peut observer quasiment toute la partie verticale de la croix. A contrario, la sensibilité verticale est faible. La partie horizontale de l'inclusion n'est reproduite qu'à proximité des électrodes (sur le bord du réservoir).

Lors de la recherche d'un protocole alternatif plus efficace, et au travers de tous les tests présentés ci-après, nous avons donc tâché d'améliorer la restitution de l'objet en croix en terme d'amplitude des valeurs de résistivité obtenues, et de mieux développer la sensibilité verticale du protocole.



FIGURE 3.54 – Représentation de la distribution de résistivités dans le réservoir selon une coupe verticale. a) Distribution initiale de résistivité générée avec le modèle cellulaire, puis interpolée selon le maillage tétraédrique de R3T. b) Distribution de résistivités obtenue après calcul du modèle direct et inversion des résistances avec R3T pour le protocole "cross-rods" entier.

Test 1 : Influence de l'absence d'une classe sur les résultats du processus d'inversion

Tout d'abord, sans tenir compte des observations relatives à la cartographie de sensibilité décrite précédemment, nous avons essayé d'évaluer l'importance de chaque classe de configurations d'électrode qui composent le protocole "cross-rods" lors de l'inversion des données. Pour ce faire, nous avons choisi de mettre en place un test numérique simple, qui consiste à comparer les résultats de l'inversion de la distribution de résistivités en croix, d'une part en utilisant le protocole "cross-rods" dans sa globalité, puis en utilisant le protocole "cross-rods" auquel on a retiré toutes les mesures correspondant à une classe de configurations en particulier. On compare alors les résultats obtenus, et en réitérant cela pour les 8 différentes classes, nous pouvons observer en quoi l'absence des mesures d'une classe de configurations influe sur les résultats de l'inversion. Au total nous avons donc étudié les résultats d'inversion obtenus avec 9 protocoles différents (protocole "cross-rods" entier + protocoles "cross-rods" sans chacune des 8 classes). Les résultats sont rassemblés sur la figure 3.55.

Dans chacun des cas, l'absence d'une classe de mesure détériore la détection de l'objet en croix, de façon plus ou moins importante selon la classe de configurations supprimée.

Le résultat de l'inversion est plus fortement détérioré lorsque les classes 1, 2 et 3 ne sont pas prises en compte. On perd en sensibilité et la croix est bien moins restituée que pour le protocole "cross-rods". On peut en déduire que les classes 1, 2 et 3 confère au protocole une sensibilité et une résolution plus importante que les autres. La classe 3 notamment est celle pour laquelle l'inversion présente le plus fort degré de détérioration.

Lorsqu'on supprime les configurations d'électrodes de la classe 6, le processus d'inversion

n'aboutit pas au bout de 10 itérations, malgré l'utilisation des mêmes paramètres d'inversion, et du même modèle de résistivité initial. On en déduit que les mesures issues de la classe 6 apportent beaucoup d'informations sur la résistivité du milieu, et contraignent efficacement le processus d'inversion.



FIGURE 3.55 – Test 1 : Représentation des résultats d'inversion pour le protocole "cross-rods" et les 8 protocoles "cross-rods sans classe". L'échelle de résistivité est réglée sur les valeurs maximales et minimales obtenues après inversion avec le protocole "cross-rods" entier.

Ce test nous apporte des informations sur les classes de configurations les plus influentes du protocole "cross-rods" : les classes 3 et 6 sont particulièrement importantes. Cela vient confirmer l'intérêt potentiel pour ces classes de configurations qu'avait déjà montré les cartographies de sensibilités (les classe 3 et 6 présentent les plus hautes valeurs observées, figure 3.52). La classe 8 n'a quant à elle que peu d'influence sur la sensibilité, ce qui vient pondérer quelque peu les considérations que nous évoquions précédemment sur cette classe particulière.

Test 2 : Protocoles "cross-rods" + "inter-plans pour chaque classe"

Nous avons vu précédemment que le protocole cross-rods était moins sensible aux variations verticales de résistivité qu'aux variations horizontales (voir figure 3.53). Ceci est dû au fait que ce protocole implémente des mesures sur des plans horizontaux distincts. Les plans horizontaux sont au nombre de 10, et le protocole implémente 45 mesures sur chacun de ces plans. Aucune configuration dans le protocole n'implique l'injection du courant ou la mesure du potentiel entre deux points (deux électrodes) situés à des hauteurs différentes dans le réservoir.

Nous avons donc procédé à des test comparatifs afin d'évaluer l'éventuel apport de configurations d'électrodes "inter-plans". Ces tests sont basés sur le même principe d'inclusion d'une croix de haute résistivité dans un réservoir de résistivité homogène. Une configuration interplan consiste à avoir 1 électrode du dipôle de mesure et 1 du dipôle d'injection situées dans un même plan, distinct du plan qui contient les 2 autres électrodes. Ainsi une configuration issue du protocole "cross-rods" (toutes les électrodes sont dans le même plan) est déclinée en 9 nouvelles configurations dites "inter-plans" (figure 3.56).



FIGURE 3.56 – Représentation schématique de la déclinaison de deux configurations issues du protocole cross-rods (toutes les électrodes sont situées dans le même plan) en 9 configurations inter-plan.

Nous avons alors comparé les résultats de l'inversion obtenus avec le protocole "cross-rods" avec ceux issus de protocoles constitués du protocole "cross-rods" en entier auquel on ajoute toutes les mesures inter-plans relatives à une classe de configurations en particulier. On teste donc successivement le protocole "cross-rods" auquel on ajoute toutes les configurations interplans possibles avec la classe 1, puis le protocole "cross-rods" auquel on ajoute toutes les configurations inter-plans possibles avec la classe 2, et ainsi de suite, pour les 8 classes de configurations. Les résultats sont rassemblés sur la figure 3.57. On observe que le protocole "cross-rods + inter-plan classe 6" donne une très bonne visualisation de la partie verticale de la croix et qu'il présente donc une meilleure sensibilité aux variations de résistivité horizontales que le protocole "cross-rods" seul. On note aussi que le protocole "cross-rods + inter-plan classe 8" possède une meilleure sensibilité aux variations verticales de résistivité par rapport au protocole "cross-rods" seul.



FIGURE 3.57 – Test 2 : représentation des résultats d'inversion pour le protocole "cross-rods" et les 8 protocoles "cross-rods + toutes les combinaisons inter-plans de chaque classe". L'échelle de résistivité est réglée sur les valeurs maximales et minimales obtenues après inversion avec le protocole "cross-rods" entier.

Test 3 : Protocoles "inter-plans" seuls

Afin de mieux comprendre comment les protocoles inter-plans se comportent et quelle est leur influence sur les résultats du processus d'inversion, nous avons effectué le même travail de comparaison en implémentant cette fois uniquement les configurations inter-plans relatives à une classe particulière, et ce pour les 8 classes, sans rajouter le protocole "cross-rods" comme lors du test 2.



FIGURE 3.58 – Test 3 : représentation des résultats d'inversion pour le protocole "cross-rods" et les 8 protocoles "inter-plans seuls". L'échelle de résistivité est réglée sur les valeurs maximales et minimales obtenues après inversion avec le protocole "cross-rods" entier.

Les résultats sont rassemblés sur la figure 3.58. Ils permettent d'apprécier l'apport en sensibilité verticale des configurations inter-plans. En effet, dans tous les cas, la partie verticale de la croix n'est plus visible, alors que la partie horizontale est mieux détectée que par le protocole "cross-rods". Parmi les 8 classes, c'est le protocole "inter-plan classe 3" qui montre le meilleur apport en sensibilité verticale. Pour certaines classes, le protocole inter-plan seul abouti à des résultats aberrants (classe 5) ou à une non-convergence du processus d'inversion (classe 7).

Test 4 : Investigation ciblée sur les classes 3, 6 et 8

L'étude de cartographie de sensibilité a mis en valeur les classes 3 et 6 par les hautes valeurs de sensibilités qu'elles montrent et la classe 8 par sa géométrie spécifique, qui implique des mesures de résistances très faibles.

Avec les tests 1, 2 et 3, nous avons étudié le comportement des différentes classes de configurations. Le test 1 montre que les classe 3 et 6 sont les plus importantes pour bien contraindre le problème inverse. La suppression des mesures associées à ces classes de configurations détériore notablement les résultats du processus d'inversion.

Le test 2 a montré que l'ajout des configurations inter-plans de la classe 6 et de la classe 8 améliore fortement la reproduction de la croix. La classe 6 amplifie la sensibilité aux variations de résistivité horizontale et la classe 8 améliore la sensibilité verticale.

L'étude des classes inter-plans seules (test 3) montre que les mesures inter-plans contribuent essentiellement à augmenter la résolution verticale du protocole de mesure. Les meilleurs résultats sont obtenus avec la classe 3.

L'ensemble de ces tests a donc mis en valeur l'importance des classe 3, 6 et 8. Nous avons ensuite travaillé à concevoir un protocole plus efficace que le protocole "cross-rods" en utilisant principalement les configurations d'électrodes des classes 3, 6 et 8.

• Test 4.1 : Combinaisons des configurations inter-plans :

Nous avons tout d'abord testé les couples de protocoles inter-plans de la classe 3 et 6 d'une part, puis 3 et 8, et enfin 6 et 8. Dans chaque cas les couples de protocoles sont regroupés en un seul et même protocole. Les résultats sont représentés sur la figure 3.59.

On observe que la combinaison des protocoles inter-plans des classes 3 et 6 offre une bien meilleure restitution de l'objet en croix que le protocole "cross-rods", que ce soit en terme de résolution verticale ou horizontale. Pour les classes 3 et 8, la sensibilité verticale est nettement améliorée mais la sensibilité horizontale est clairement diminuée. Pour les classes 6 et 8, le processus d'inversion ne parvient pas à converger vers une solution pour les mêmes paramètres d'inversion.

La mise en commun des configurations d'électrodes issues des classes 3 et 6, en mode interplan, constitue donc une très bonne alternative au protocole "cross-rods" de Vieira (2013).



FIGURE 3.59 – Test 4.1 : résultats des processus d'inversion pour des protocoles combinant les classes 3, 6 et 8. L'échelle de résistivité est réglée sur les valeurs maximales et minimales obtenues après inversion avec le protocole "cross-rods" entier.

Toutefois, ce protocole est constitué au total de 900 mesures, alors que le protocole "crossrods" est constitué de seulement 450 mesures. Afin de proposer un protocole présentant une meilleure sensibilité, mais impliquant aussi le même temps de mise en œuvre dans le cas pratique (temps d'acquisition de la tomographie), nous avons effectué de nouveaux essais visant à réduire le nombre de mesures tout en conservant la "supériorité" du protocole.

• Test 4.2 : Réduction du nombre de mesure :

Nous avons entrepris de réduire le nombre de mesure en ne réalisant pas l'ensemble des configurations inter-plans sur les 10 plans d'électrodes qui instrumentent la cuve mais en compartimentant ces 10 plans en 3 groupes contenant chacun 5 plans. En procédant ainsi, chaque configuration du protocole "cross-rods" n'est plus déclinée en 9 nouvelles configurations interplans, mais en 4 (voir figure 3.60).

En procédant ainsi, le protocole inter-plan compartimenté impliquant les classe 3 et 6 se trouve réduit à 576 mesures, ce qui est du même ordre de grandeur que le protocole "cross-rods"



FIGURE 3.60 – Représentation schématique du protocole inter-plan et du protocole interp-plan compartimenté. Les cercles noirs représentent la disposition des électrodes autour de la cuve. a) Protocole inter-plan total : une mesure effectuée dans le plan 1 (ex traits bleus) est ensuite déclinée en 9 autre mesures pour lesquelles une électrode de mesure et une électrode d'injection seront situées dans un autre plan d'électrodes. b) Protocole inter-plan compartimenté : les 10 plans d'électrodes sont répartis en trois groupes qui se chevauchent. Ainsi, une mesure dans un plan (ex trait bleu) n'est plus déclinée qu'en 4 nouvelles mesures.

initialement utilisé par Vieira (2013).

La figure 3.61 présente les résultats du test de comparaison entre le protocole "cross-rods" d'origine et le protocole "inter-plan compartimenté" avec les classes 3 et 6.



FIGURE 3.61 – Comparaison entre les résultats de l'inversion de la distribution de résistivités en croix pour : a) le protocole "cross-rods" (450 mesures), b) le protocole "ensemble inter-plans classe 3 et 6" (900 mesures) et c) le protocole "ensemble inter-plans classe 3 et 6 *compartimenté*" (576 mesures).

Compartimenter les configurations inter-plans a pour effet de réduire légèrement la sensibilité du dispositif de mesure pour la partie centrale de la cuve. Cependant, on observe également que la partie verticale de la croix est mieux restituée en terme d'étendue verticale après la mise en place des compartiments.

Finalement, on obtient un protocole possédant un nombre de mesures du même ordre de grandeur que le protocole "cross-rods", et qui restitue avec une meilleure précision la distribution de résistivités en croix initiale.

Test 5 : Conception de protocoles pseudo-aléatoires.

Lors du test 2, nous avons pu observer que la combinaison du protocole "cross-rods" avec l'ensemble des configurations inter-plans de chaque classe donne des résultats particulièrement intéressants pour les classe 6 et 8. L'ajout des configurations inter-plans de ces deux classes augmentent fortement la sensibilité du dispositif de mesure aux variations de résistivité horizontales (pour la classe 6) et verticales (pour la classe 8). On rappelle ces résultats sur la figure 3.62.



FIGURE 3.62 – Rappel des résultats obtenus au test 2. Extrait de la figure 3.57. Les protocoles "cross-rods + inter-plans" de la classe 6 (a) et 8 (b) améliorent respectivement la sensibilité horizontale et verticale du dispositif de mesure.

• Test 5.1 : Combinaisons des protocoles "cross-rods" et "inter-plans" :

A partir de ce constat, nous avons émis l'hypothèse qu'une combinaison de configurations issues d'une part du protocole "cross-rods", d'autre part du protocole "inter-plan classe 6 compartimenté" et enfin du protocole "inter-plan classe 8 compartimenté" pourrait regrouper les caractéristiques de sensibilité nécessaires afin d'améliorer la restitution de la distribution de résistivités, autant en terme de résolution verticale qu'horizontale. Toujours avec le souci de proposer des protocoles impliquant le même nombre de mesures que le protocole "cross-rods" (450), nous avons mis cette hypothèse à l'épreuve en générant aléatoirement des protocoles composés de 150 configurations prises au hasard parmi chacun des 3 protocoles cités précédemment, soit 450 au total. Lors d'une première séquence de tests, nous avons généré 10 protocoles aléatoires conçus comme expliqué précédemment, que nous avons chacun soumis au test de la croix de haute résistivité. Sur ces 10 protocoles, seulement 3 ont produit une meilleure restitution de l'objet par rapport au protocole "cross-rods". Nous avons nommé arbitrairement ces protocoles PA1, PA2 et PA3 pour "protocole aléatoire". L'amélioration est relativement faible pour les protocoles PA1 et PA2 (figure 3.63), mais bien marquée pour le protocole PA3. Après inversion, les valeurs de résistivité calculées peuvent atteindre jusqu'à 90 Ω .m, notamment dans la zone correspondant à la partie verticale de la croix, ce qui est très proche de la résistivité réelle de l'objet en croix (100 Ω .m). Ce protocole est donc tout à fait prometteur.



FIGURE 3.63 – Comparaison entre le protocole cross-rods et les trois protocoles aléatoires donnant les meilleurs résultats au "test de la croix". L'échelle de résistivité est calée sur les valeurs maximales et minimales obtenues avec le protocole PA3.

• Test 5.2 : Protocole aléatoire contraint :

Nous nous sommes alors attaché à essayer de comprendre comment était constitué ce protocole, et quel agencement de configurations d'électrodes pouvait conduire à des résultats aussi distincts de tous les protocoles testés jusqu'alors. Par manque de temps, nous n'avons pu mener cette étude que de manière exploratoire, et nous n'avons malheureusement pas de réponse précise à cette question ni de description détaillée de la constitution de ce protocole. Cependant nous avons exploré quelques pistes intéressantes.

En comparant le protocole aléatoire PA3 aux protocoles PA1 et PA2, moins efficaces, et à un autre protocole issu du même test, encore moins efficace (donnant de plus mauvais résultats que le protocole "cross-rods"), nommé PA7, nous avons pu mettre en évidence des disparités discrètes mais notables.

Sur les 150 mesures qui sont extraites du protocole cross-rods, nous avons comptabilisé à chaque fois le nombre de mesures issues de chacune des 8 classes de configurations. Les résultats sont rassemblés dans le tableau 3.1.

Protocole	Classe 1	Classe 2	Classe 3	Classe 4	Classe 5	Classe 6	Classe 7	Classe 8
PA3	6	20	34	19	38	9	6	18
PA2	10	17	21	22	41	11	6	22
PA1	11	22	22	16	40	8	5	26
$\mathbf{PA7}$	11	20	17	21	43	8	13	17

TABLE 3.1 – Nombre de mesures de chaque classe dans les 150 mesures prises aléatoirement dans le protocole "cross-rods", pour le protocole PA3 et les protocoles moins efficaces PA2, PA1 et PA7. Les colonnes en gras représentent les classes pour lesquelles il existe une différence notable entre les différents protocoles.

En comparant les résultats obtenus, nous pouvons faire les observations suivantes :

Le protocole qui nous intéresse, PA3, possède près du double de mesures issues de la classe de configurations 3 par rapport aux trois autres protocoles. On peut faire l'hypothèse que ce surplus de mesures est en partie responsable des meilleurs résultats obtenus avec ce protocole. Cette hypothèse peut être supportée par le fait que la classe 3 présente parmi les plus hautes valeurs de sensibilité sur les parties latérales de la cuve (c.f. cartographie de sensibilité, figure 3.52).

Le protocole PA3 possède également moins de mesures issues de la classe 1 que tous les autres protocoles, et moins de mesures issues de la classe 7 que le protocole PA7 qui est le moins efficace des 4 protocoles. Qu'il faille réduire le nombre de mesures issues des classes 1 et 7 n'est pas aberrant si l'on observe leur cartographie de sensibilité. En effet ces deux classes montrent une distribution de sensibilités relativement homogène, avec des faibles valeurs. Il est possible que l'utilisation de telles configurations dégrade la détection des contrastes nets de résistivité.

A partir de ces considérations, nous avons décidé de générer une nouvelle série de protocoles aléatoires en contraignant davantage le type et le nombre de mesures issues du protocole "crossrods". Les classes 1 et 7 sont abandonnées, et l'on restreint le choix des 150 mesures issues du protocole "cross-rods" aux classes 2,3,4 et 5, selon la distribution donnée à la table 3.2. Les classes 6 et 8 sont également non prises en compte dans cette distribution car l'on estime que ces géométries sont suffisamment représentées au sein des 150 mesures prises aléatoirement dans chacune des protocoles "inter-plans classe 6" et "inter-plans classe 8" (lesquels protocoles contiennent aussi des configurations d'électrodes au sein d'un seul et même plan).

Classe 1	Classe 2	Classe 3	Classe 4	Classe 5	Classe 6	Classe 7	Classe 8
0	30	60	30	30	0	0	0



Sur les 10 protocoles générés selon ce procédé, 8 donnent des résultats sensiblement meilleurs que le protocole "cross-rods" au test de la croix de haute résistivité. Parmi ces 8, 3 se distinguent particulièrement par les hautes valeurs de résistivité qu'ils restituent. Nous les avons nommé dans l'ordre de leur génération PAC 1, PAC 6 et PAC 7 pour "protocole aléatoire contraint". Les résultats et comparaison avec le protocole "cross-rods" sont visibles sur la figure 3.64.

Les trois protocoles PAC 1, 6 et 7 présentent une très bonne résolution horizontale. La résolution verticale est moindre, mais reste meilleure que pour le protocole "cross-rods". Finalement, le protocole PAC 1 est celui qui propose la meilleure restitution.



FIGURE 3.64 – Comparaison entre le protocole cross-rods et les trois protocoles aléatoires donnant les meilleurs résultats au "test de la croix" pour les protocoles aléatoires contraints. L'échelle de résistivité est calée sur les valeurs maximales et minimales obtenues avec le protocole PA3.

Bien que n'ayant pas déterminé précisément le fonctionnement et les principes régissant ces protocoles, nous avons tout de même ouvert une piste d'étude intéressante. Il semble que pour être efficace et présenter une résolution verticale et horizontale équivalentes, tout du moins lors du test de la croix de haute résistivité, le protocole de mesure doit suivre les critères suivants :

- 1. Être constitué d'une majorité de configurations "inter-plans" afin de garantir une sensibilité satisfaisante aux variations verticales de résistivité (structures horizontales).
- 2. Etre composé d'un nombre non négligeable de configurations ayant lieu dans le même plan d'électrodes. Ce critère semble garant d'une bonne sensibilité aux variations de résistivité horizontales (structures verticales).
- 3. Privilégier les configurations d'électrodes qui montrent une distribution de sensibilités dissymétrique sur la section du cylindre (qui possèdent généralement des valeurs de sensibilité plus élevées).

Test 6 : Comparaison des protocoles "cross-rods", "inter-plans classe 3 et 6 compartimenté", "PA3" et "PAC1" avec des distributions de résistivité variées.

Au fur et à mesure des tests précédents, nous avons identifié différents protocoles alternatifs qui semblent avoir un potentiel supérieur au protocole "cross-rods" pour la détection de changements de résistivité dans un milieu cylindrique. Nous sommes arrivés à ces observations en analysant les résultats de l'inversion d'une distribution de résistivités particulière en forme de croix. Dans ce paragraphe, nous présentons les résultats de tests complémentaires impliquant ces protocoles appliqués à des distributions de résistivité différentes. Tout d'abord, une inclusion en forme de croix dont la partie verticale est décentrée par rapport à l'axe de la cuve cylindrique, puis une zone rectangulaire transverse diagonale, et enfin des distributions de résistivité issues de la modélisation de l'injection de gaz avec le modèle cellulaire décrit plus haut, dans le cas d'une circulation du gaz sous forme de panache parabolique, puis de la formation d'une chambre d'accumulation. Les résultats des inversions sont données sur les figures 3.65, 3.66, 3.67 et 3.68.



FIGURE 3.65 – Résultats de l'inversion pour les 4 différents protocoles appliqués à une distribution de résistivités en forme de croix, décentrée par rapport à l'axe de rotation du cylindre. Les protocoles alternatifs propose essentiellement une meilleure restitution de la partie horizontale de la croix.



FIGURE 3.66 – Résultats de l'inversion pour les 4 différents protocoles appliqués à une distribution de résistivités incluant un parallélépipède diagonal de haute résistivité. Pour le protocole "cross-rods" (b), on peut observer l'apparition d'artefacts créés lors du processus d'inversion.

En ce qui concerne les tests impliquant des inclusions d'objets de haute résistivité (figure 3.65 : croix décentrée, et figure 3.66 : diagonale.) les protocoles alternatifs donnent systématiquement de meilleurs résultats, notamment parce qu'ils possèdent une meilleure sensibilité aux variations verticales de résistivité. Pour cette même raison, ce sont aussi les protocoles alternatifs qui reproduisent le plus fidèlement la distribution de résistivités correspondant à la



FIGURE 3.67 – Résultats de l'inversion pour les 4 différents protocoles appliqués à une distribution de résistivités issue de la modélisation d'une circulation de gaz en forme de chambre d'accumulation. Les 3 protocoles alternatifs restituent mieux la forme et la position de la chambre d'accumulation, et présentent des valeurs de résistivité plus proches de la distribution initiale que le protocole "cross-rods"



FIGURE 3.68 – Résultats de l'inversion pour les 4 différents protocoles appliqués à une distribution de résistivités issue de la modélisation d'une circulation de gaz en panache parabolique. Dans ce cas, c'est le protocole "cross-rods" qui donne les meilleurs résultats. La forme du panache parabolique est légèrement mieux restituée par les protocoles alternatifs, mais les valeurs de résistivité de la distribution intitiale (a) sont nettement mieux reproduites lorsqu'on utilise le protocole "cross-rods".

modélisation d'une chambre d'accumulation, qui présente une forte composante directionnelle horizontale (figure 3.67).

Dans le cas d'une circulation en panache parabolique les observations sont contraires (figure 3.68). Malgré une sensibilité *a priori* inférieure, c'est le protocole "cross-rods" qui restitue le plus fidèlement les valeurs de haute résistivité au centre de la cuve cylindrique. Par leur sensibilité verticale supérieure, les protocoles alternatifs reproduisent légèrement mieux la forme du panache parabolique, mais les valeurs de résistivité sont nettement sous-estimée par rapport à celles obtenues avec le protocole "cross-rods".

Cette dernière observation est particulièrement intéressante, car à la vue des figures 3.63 et 3.64, les protocoles alternatifs semblaient bien plus à même de détecter des structures verticales et a fortiori des anomalies de résistivité induites par une circulation en panache parabolique.

Ainsi, l'apport en résolution verticale des protocoles alternatifs impacte fortement leur résolution horizontale. Pour la détection d'une structure qui possède une composante directionnelle principalement verticale, il faut probablement privilégier des dispositifs de mesure possédant une faible sensibilité aux variations verticales de résistivité.

3.4 Conclusion

A travers une étude exploratoire du protocole de mesure utilisé par Vieira (2013), nous sommes parvenus à différencier les configurations d'électrodes d'après leur sensibilité aux changements de résistivité survenant dans le milieu, tant en termes d'amplitude que de localisation spatiale. Grâce à ce travail d'identification, nous avons pu développer des protocoles de mesure alternatifs, qui permettent dans certains cas de mieux restituer les variations de résistivité induites par l'injection d'un gaz et la désaturation conséquente du milieu. Ces travaux mettent en lumière la relation étroite et potentiellement complexe qui existe entre la géométrie de répartition du gaz et le type de configurations d'électrodes qui permettront de percevoir au mieux les changements de résistivité induits.

Les résultats obtenus mettent en valeur l'intérêt des approches numériques sur des cas synthétiques pour étudier le fonctionnement et l'efficacité des protocoles d'acquisition utilisés en ERT. Dans cette thèse, nous avons étudié le cas particulier d'un milieu cylindrique avec des conditions aux limites de type Neumann (pas de flux). Le même genre d'études, basées sur la modélisation d'objets de résistivité différente et/ou la simulation de phénomènes physiques tels que l'injection d'un gaz dans un milieu saturé, peut également être étendu à l'échelle du terrain. A partir d'un modèle simple, e.g., un espace semi-infini homogène ou tabulaire, et en disposant d'outils de modélisation directe et inverse adaptés, nous pourrions étendre notre compréhension des protocoles d'acquisition utilisés lors de mesures sur le terrain, en puits ou en surface. Coupler ce type d'études avec la modélisation de transferts de CO_2 dans la subsurface permettrait alors de développer des réseaux et des stratégies de surveillance par la méthode ERT adaptés aux problématiques de la séquestration géologique du CO_2 . Chapitre 4

PPS - Etude en milieu contrôlé -Modélisation
Introduction

Un objectif majeur de ces travaux de thèse est d'étudier la capacité de la méthode de polarisation provoquée à détecter et à suivre des transferts de CO_2 dans la subsurface. Ce chapitre aborde le cas de la technique de *polarisation provoquée spectrale* (PPS). Nous y présentons les résultats d'une campagne d'expériences réalisées au sein de notre laboratoire qui a pour objectif d'étudier l'impact d'une injection de CO_2 sur des milieux simples, relativement homogènes, dans des conditions expérimentales contrôlées. En conduisant une analyse détaillée des résultats, associée à des travaux de modélisation des réponses observées, nous avons pour objectif d'apporter des éléments de compréhension sur le type de réponses PPS que pourrait provoquer une injection de CO_2 dans un cas de terrain.

Nous avons vu au chapitre 2 qu'il est possible de détecter des transferts de CO_2 dans un milieu granulaire non consolidé saturé en eau en surveillant les changements de résistivité induits par la circulation du gaz. Deux phénomènes distincts peuvent alors entrer en jeu.

- 1. Physiquement, la diminution du niveau de saturation en eau induit par l'intrusion d'une phase gazeuse dans l'espace por la augmente la résistivité du milieu. Nous qualifions ce processus de désaturation.
- 2. Chimiquement, les phénomènes de dissolution du CO_2 et/ou de la matrice poreuse augmentent la conductivité électrique de l'eau saturante et diminuent la résistivité du milieu.

Afin de pouvoir distinguer de quelle façon chaque mécanisme influe sur les paramètres PPS, nous avons organisé notre campagne d'expériences de façon analogue à celle de Vieira (2013), en étudiant l'influence de plusieurs paramètres expérimentaux :

- La nature du gaz injecté : CO₂ (soluble dans l'eau) ou N₂ (non-soluble dans l'eau)
- Le type de milieu granulaire : sable siliceux de Fontainebleau (non soluble) et sable carbonaté (soluble).
- La conductivité de l'eau saturante : 3 conductivités ont été choisies (150, 400, et 1000 $\mu S.cm^{-1}$).

À partir des observations expérimentales, nous proposons des éléments d'interprétation sur les phénomènes microscopiques impliqués en nous appuyant sur des modèles disponibles dans la littérature. Nous proposons également un modèle empirique qui relie l'évolution des paramètres PPS avec les paramètres de chaque expérience. En couplant ce modèle empirique à un modèle de transport réactif, nous étudions la possibilité de prédire les réponses PPS de systèmes analogues à ceux étudiés.

1 Protocoles expérimentaux

1.1 Dispositif expérimental

1.1.1 Instrumentation de la cuve

Pour réaliser ces expériences, nous avons utilisé une cuve cylindrique en PVC de 40 cm de haut et 30 cm de diamètre (figure 4.1). Un trou a été percé au centre de sa partie inférieure afin de permettre la connexion entre le tuyau d'arrivée du gaz et un diffuseur poreux en céramique de 12 cm de diamètre (figure 4.2) et de 2 cm d'épaisseur. Le diffuseur permet une distribution uniforme des bulles de gaz sur l'ensemble de sa surface. Il est fixé sur un socle en plastique de 3 cm d'épaisseur de telle sorte que sa surface est située à la hauteur z = 5 cm.

Quatre trous filetés ont été réalisés à la hauteur z = 21 cm pour permettre l'insertion des électrodes d'injection du courant et de mesure du potentiel. La configuration d'électrodes utilisée est décrite sur la figure 4.1. Les dipôles d'injection et de mesure forment chacun un angle de 120° avec le centre du cylindre. Cette géométrie d'électrode a été choisie en se basant sur l'étude de sensibilité des configurations d'électrodes décrite au chapitre 3 (section 3.2, p.159). Elle correspond à la classe de configurations 7, qui, parmi les 8 classes, présente la distribution de sensibilités la plus homogène sur une section horizontale du cylindre (c.f. figure 3.52).



FIGURE 4.1 – Représentation schématique de la cuve cylindrique instrumentée. Les électrodes de mesure et d'injection sont mises en contact avec le milieu par l'intermédiaire de trous filetés, dans un plan horizontal localisé à la hauteur z = 21 cm. La surface du diffuseur est située à la hauteur z = 5 cm. L'arrivée du gaz vers le diffuseur se fait par le dessous de la cuve.

Remarque : pour cette série d'expériences en laboratoire, nous avons choisi d'utiliser un réservoir sensiblement plus petit que celui utilisé par Vieira (2013) pour ses expériences en



FIGURE 4.2 - a) Réservoir rempli avec du sable de Fontainebleau totalement saturé en eau. b) Vue du dessus du diffuseur poreux en céramique.

milieu contrôlé avec la méthode ERT. Ce choix a été motivé principalement par le fait que le remplissage, la vidange, et le nettoyage de la cuve se fait relativement plus facilement et rapidement, ce qui offre la possibilité de réaliser un plus grand nombre d'expériences, et de faire varier davantage de paramètres expérimentaux.

1.1.2 Dispositif global

La figure 4.3 donne une vue d'ensemble du système expérimental et de son fonctionnement. On y repère les bonbonnes d'azote et de CO_2 reliées en série à un débitmètre à bille permettant de contrôler le débit d'injection de gaz. Le tuyau d'injection rejoint ensuite le dessous du réservoir cylindrique (surélevé grâce à un système de planches emboitées), et est connecté au diffuseur poreux.

Appareil d'acquisition

L'acquisition des mesures a été réalisée avec le système SIP Fuchs III développé par Radic Research. Cet appareil permet la mesure de la résistivité complexe sur la gamme de fréquences 1 mHz-20 kHz avec une résolution de 1 mrad (Radic, 2004).

Pour une étude en laboratoire, la chaîne d'acquisition du SIP Fuchs III est composée des éléments suivants (figure 4.4) :

- Deux bobines de câble en fibre optique qui sont connectées aux électrodes. Leurs circuits internes gèrent respectivement l'injection du courant et la mesure de la différence de potentiel. Les câbles de fibre optique relient les deux bobines à l'unité d'acquisition.
- L'unité d'acquisition, qui assure la génération du signal, gère l'acquisition des données et synchronise l'ensemble du système
- Un ordinateur, relié à l'unité d'acquisition via un câble USB, qui permet la visualisation,



FIGURE 4.3 – Photo illustrant la disposition des différents éléments qui composent le système expérimental.

l'enregistrement des données acquises, et le paramétrage du système à l'aide d'un logiciel développé par Radic Research.

La transmission des données entre les bobines d'injection et de mesure et l'unité d'acquisition est donc réalisée via des câbles en fibre optique, d'inductance nulle, et des câbles coaxiaux BNC sont utilisés pour relier la bobine de mesure aux électrodes. L'utilisation de ces deux types de câble permet de limiter les effets liés au couplage électromagnétique de l'ensemble du système.



FIGURE 4.4 – Photo représentant la chaîne d'acquisition mise en place pour l'utilisation du SIP FUCHS III.

Le principe d'acquisition du SIP FUCHS III est le suivant : on injecte un signal sinusoïdal à une fréquence donnée, l'appareil mesure les valeurs de phase et d'amplitude sur plusieurs périodes et renvoie comme valeur finale la moyenne des mesures sur chaque période accompagnée de l'erreur associée à la distribution de mesures. Le nombre de périodes mesurées décroît quand la fréquence diminue, ce qui permet d'éviter les temps de mesure excessivement longs, mais implique aussi un compromis en terme de résolution spectrale, qui peut avoir pour conséquence un niveau de bruit et des erreurs de mesures élevés aux basses fréquences. Le tableau 4.1 regroupe les paramètres d'acquisition pour chaque fréquence comprise dans la gamme [1 mHz - 20 kHz].

Fréquence	Fréquence	Durée de la	Nombre de périodes	Résolution
d'injection (Hz)	d'échantillonnage (Hz)	mesure (s)	${ m mesur{\acute{e}es}}$	spectrale (Hz)
20000	48000	$0,\!1$	2000	10
12000	48000	0,1	1200	10
6000	48000	0,1	600	10
3000	48000	$_{0,1}$	304	9,87
1500	48000	0,11	160	9,38
750	48000	0,11	80	9,38
375	48000	0,11	40	9,38
187	48000	0,11	20	9,35
93	24000	0,21	20	$4,\!65$
46	12000	0,43	20	2,3
23	6000	0,68	16	$1,\!44$
11	3000	1,37	15	0,73
5	1500	2,73	14	0,36
2	750	5,46	11	0,182
1	375	10,9	11	0,0909
0,5	187,5	11	5	0,1
0,2	93,75	22	4	$0,\!05$
0,1	46	44,5	4	0,025
$0,\!05$	23	87	4	$0,\!0125$
0,02	11	170	4	0,005
0,01	5	335	4	0,0025
0,005	5	495	2	0,0025
0,002	5	968	2	0,001
0,001	5	1595	1,5	0,00067

TABLE 4.1 – Paramètres d'acquisition du SIP-FUCHS III propres à chaque fréquence d'injection dans la gamme 1 mHz - 20 kHz. La résolution spectrale décroit avec la fréquence.

1.2 Electrodes impolarisables

Un des problémes majeurs lors d'études en polarisation provoquée est de s'affranchir des effets de polarisation qui se produisent à l'interface entre le milieu d'étude et les électrodes (c.f. chapitre 2 section 2.2.6, p.75), et qui perturbent généralement significativement les mesures (e.g., Garrouch and Sharma, 1994; Chelidze et al., 1999).

Une des méthodes préconisée pour limiter ces effets repose sur l'utilisation d'électrodes impolarisables, pour lesquels les phénomènes électrochimiques à l'interface électrode / milieu d'étude sont limités. Cependant ce type d'électrode n'est pas commercialisé dans des dimensions compatibles avec des expériences en laboratoire d'échelle métrique. Il appartient donc aux chercheurs de les concevoir par leur propres moyens et de les tester eux-mêmes. Nous présentons dans cette section le mode de fabrication que nous avons choisi, les tests qui ont conduit à ce choix, ainsi que les tests de mesures qui nous ont permis de valider l'utilisation de ces électrodes.

1.2.1 Description des électrodes

Les électrodes que nous avons utilisées, aussi bien pour l'injection de courant que pour la mesure du potentiel, sont des électrodes impolarisables de type $Cu/CuSO_4$, dont le mode de conception est similaire à celui utilisé par Blondel (2014) pour ses expériences en laboratoire.

Elles se composent d'un fil de cuivre logé dans un réservoir en plastique rempli d'une solution sursaturée en sulfate de cuivre. Pour éviter les fuites, la solution est solidifiée par l'ajout de gélatine alimentaire. Un filtre poreux permettant la diffusion ionique du courant assure le continuum entre le réservoir de l'électrode et le milieu d'étude. Le corps de l'électrode est solidaire d'un passe paroi fileté (embout fileté + écrou en plastique, photo b) de la figure 4.5), qui permet de visser l'électrode dans les trous filetés percés dans la paroi de la cuve.

Le filtre en contact avec le milieu est inséré dans le petit diamètre de l'embout fileté. Le grand diamètre de l'embout accueille le tube en plastique - rempli de la solution de $CuSO_4$ - lequel est maintenu serré et étanche grâce à un joint en caoutchouc et au vissage de l'écrou plastique. La partie extérieure de l'électrode est fermée avec un bouchon de colle, conique, solidaire du fil de cuivre et entouré de ruban Teflon pour assurer l'étanchéité.



FIGURE 4.5 - a) Schéma en coupe d'une électrode impolarisable. b) Vue éclatée des éléments qui composent une électrode. c) Electrode assemblée et remplie avec la solution sur-saturée en sulfate de cuivre.

1.2.2 Tests de conception

Avant de parvenir au design final décrit précédemment, nous avons effectué un certain nombre de tests afin d'étudier notamment quels types de filtres (matériau, géométrie) étaient à privilégier pour assurer à nos électrodes à la fois une bonne conduction du courant (i.e., une résistance de contact la plus faible possible), et une étanchéité suffisante pour leur garantir une stabilité physique et chimique compatible avec la durée de nos expériences.

Diffusion de l'électrolyte à travers le filtre

Afin de permettre les déplacements ioniques et donc la conduction du courant à travers le filtre, il est nécessaire que ce dernier soit imbibé/saturé avec la solution de sulfate de cuivre. Il doit donc présenter une perméabilité à l'eau optimale. Ni trop faible, afin permettre la circulation de la solution de sulfate de cuivre, et donc l'imbibition totale du filtre, ni trop forte sans quoi l'électrode se videra de sa solution de CuSO₄ dans le milieu d'étude.

Nous avons commencé par tester la capacité de différents matériaux poreux, non métalliques, à être saturés par une solution de sulfate de cuivre, pour l'instant non solidifiée. Nous avons testé principalement des bois (balsa, hêtre, bambou) que nous nous sommes procurés dans des enseignes commerciales de bricolage, ainsi que des filtres poreux en polyéthylène faible densité (LDPE), de la marque Dionex, utilisés à l'origine en chromatographie ionique, et dont l'utilisation nous a été conseillée par Myriam Schmutz (ENSEGID). Nous appellerons ces derniers "filtres industriels" dans la suite de ce rapport.

Le premier test a consisté à laisser en position verticale, pendant plusieurs heures, des électrodes conçues avec différents types de filtres et remplies avec la solution de sulfate de cuivre. Les filtres en bambou et en balsa se sont révélés rapidement trop perméables. On observe à vue d'oeil l'écoulement de la solution de sulfate de cuivre. Les filtres industriels et en hêtre ne laissent pas l'électrode se vider aussi rapidement. On observe toutefois un écoulement significatif, l'électrode étant vidée à peu près de moitié au bout d'une période de 6 heures. Cependant, cet écoulement lent s'accompagne aussi d'une imbibition complète des filtres. Finalement, nous avons restreint les tests suivants aux électrodes conçues avec des filtres en hêtre et des filtres industriels (figure 4.6).



FIGURE 4.6 – Photo des deux types de filtre testés. a) Filtre industriel. b) Filtre en hêtre.

Solidification de l'électrolyte

Afin de limiter l'écoulement gravitaire et la diffusion de la solution de sulfate de cuivre à travers des filtres vers le milieu d'étude, ainsi que les sources potentielles de fuites inhérentes à la conception de l'électrode (joints, bouchon de colle, etc...), nous avons expérimenté l'ajout dans la solution de sulfate de cuivre de produits visant à solidifier la solution.

Nous avons ainsi testé l'agar-agar (produit gélifiant d'origine végétale), le Natrosol (polymère de synthèse permettant d'augmenter la viscosité d'un fluide), et la gélatine animale (généralement utilisée en pâtisserie et vendue dans le commerce sous forme de feuillets solides). Parmi ces trois produits, nous avons finalement retenu la gélatine animale comme meilleur compromis entre commodité du remplissage de l'électrode, imbibition du filtre et bonne tenue lors de la solidification.

L'apport pour la pérennité de l'électrode est indiscutable : elles peuvent rester stockées une dizaine de jours en position verticale, leur extrémité trempée dans de l'eau distillée, sans que l'on observe aucune fuite ou changement dans le réservoir de l'électrode.

Mesure de la résistance de contact

Par la suite, nous avons évalué la capacité de conduction du courant électrique des électrodes selon le type de filtre utilisé, en mesurant la résistance électrique de deux électrodes mises bout à bout à l'aide d'un résistivimètre alternatif (ST2821A - Sourcetronic - GmbH).



FIGURE 4.7 – Principe de la mesure de la résistance de contact entre deux électrode.

Pour les filtres en hêtre, nous avons pu observer une dépendance de la résistance de contact avec la longueur du filtre utilisé. Le tableau 4.2 rassemble les valeurs de résistance mesurées pour 3 longueurs de filtres :

Longueur du filtre (cm)	Résistance de contact (k Ω)
2	$1,\!34$
1	1,21
$0,\!5$	1,01

TABLE 4.2 – Evolution de la résistance de contact entre deux électrodes pour des filtres en hêtre de longueur différentes.

La résistance de contact augmente avec la longueur du filtre. Une longueur de filtre optimale est à peu près L = 0,5 cm. Pour des longueurs inférieures, la surface de contact entre le filtre et l'intérieur de l'embout fileté est trop faible, le jeu trop important, et le filtre tient mal en place.

Les filtres industriels, eux, mesurent 0,6 cm de long, ce qui est une longueur adéquate, qui permet une bonne mise en place au sein de l'embout fileté. Nous avons mesuré la résistance de contact entre tous les couples d'électrodes possible pour un groupe de 5 électrodes conçues avec des filtres industriels. Toutes les mesures sont dans la gamme $0, 9 - 1, 3 \text{ k}\Omega$.

Finalement, pour les deux types de filtres, les résistances de contact mesurées sont du même ordre de grandeur ($\approx 1 \text{ k}\Omega$) que celles mesurées sur des électrodes Pb/PbCl₂ Petiau, fabriquées par l'entreprise SDEC (PMS 2000), et communément utilisées pour effectuer des mesures de polarisation provoquée sur le terrain.

1.2.3 Tests de mesures

1.2.3.1 Comparaison avec des électrodes métalliques

Dispositifs de mesures

Afin d'évaluer la capacité de nos électrodes impolarisables à conduire le courant, nous avons comparé leur comportement avec celui d'électrodes en acier inoxydable (parfaitement conductrices) grâce à un test basé sur des mesures de résistivité. Nous avons utilisé le SIP-FUCHS III comme résistivimètre, en n'effectuant des mesures qu'à la seule fréquence de 1 Hz, et sans tenir compte des valeurs de phase. Ce test a été conduit sur deux dispositifs de taille différentes, afin d'évaluer si les conclusions obtenues sont applicables à plusieurs géométries expérimentales.

 Petit dispositif : le premier est un cylindre en PVC de diamètre intérieur 10 cm et de 25 cm de hauteur. 4 électrodes sont placées dans un même plan autour du cylindre, à la hauteur z = 12 cm, chacune disposée à un angle de 90° de ses voisines (figure 4.8). Nous avons étudié successivement plusieurs milieux : tout d'abord de l'eau, à différentes conductivités (contrôlées par l'ajout de NaCl), puis du sable de Fontainebleau totalement saturé en eau.



FIGURE 4.8 - a) Photo du petit dispositif rempli d'eau et instrumenté de quatre électrodes en inox. b) Représentation schématique de la configuration d'électrodes utilisée. P+ et P- marquent la position des électrodes de mesure du potentiel, et C+ et C- celle des électrodes d'injection du courant. Chaque dipôle forme un angle de 90° avec le centre du réservoir cylindrique.

2. Grand dispositif : le deuxième est le cylindre que nous avons utilisé a posteriori pour les expériences en laboratoire proprement dites (40 cm de hauteur et 30 cm de diamètre intérieur). Seule la configuration d'électrode utilisée est différente. Pour ce test, les dipôles d'injection et de mesure forment un angle de 60° avec le centre du cylindre (et non 120° comme lors des expériences). Avec ce dispositif nous avons seulement effectué des mesures sur de l'eau de conductivité électrique variable.



FIGURE 4.9 - a) Photo du grand dispositif utilisé lors des expériences d'injection de gaz, rempli d'eau, et instrumenté de quatre électrodes impolarisables. b) Représentation schématique de la configuration d'électrodes utilisée. P+ et P- marquent la position des électrodes de mesure du potentiel, et C+ et C- celle des électrodes d'injection du courant. Chaque dipôle forme un angle de 60° avec le centre du réservoir cylindrique.

Principe du test et résultats

Lorsque l'on mesure la résistivité d'un milieu composé uniquement d'eau, dont on connaît la conductivité électrique, il est possible de calculer la valeur du facteur géométrique correspondant à la configuration d'électrode utilisée et aux dimensions du milieu, en appliquant la relation :

$$K = \frac{1}{\sigma_{eau} * R_{mesur\acute{e}e}} \tag{4.1}$$

où K est le facteur géométrique propre au dispositif de mesure (en m), σ_{eau} est la conductivité électrique de l'eau (en S.m⁻¹), et $R_{mesurée}$ la résistance mesurée (en Ω).

Nous avons donc appliqué ce principe pour comparer la capacité de conduction de nos électrodes impolarisables avec des électrodes parfaitement conductrices, en remplissant les dispositifs uniquement d'eau de conductivité électrique connue (mesurée à l'aide d'une sonde conductimétrique). Le test peut être décrit en trois phases, que nous avons appliquées à chacun des deux dispositifs.

- 1. Calculer le facteur géométrique obtenu avec des électrodes en acier inoxydable parfaitement conductrices.
- 2. Calculer le facteur géométrique obtenu avec des électrodes impolarisables, conçues avec différents filtres (hêtre ou filtre industriel).
- 3. Calculer numériquement le facteur géométrique en utilisant le logiciel R3T (Binley and Kemna (2005), c.f. description chapitre 3). Ce logiciel nous permet de modéliser la géométrie du dispositif, la position des électrodes d'injection et de mesure, de définir la résistivité du milieu, et de calculer la résistance qui serait mesurée sur un tel dispositif.

Les résultats pour le petit et le grand dispositif sont rassemblés respectivement dans les tableaux 4.3 et 4.4.

Petit dispositif						
Type d'électrode	$\sigma_{eau}~(\mu{ m S/cm})$	$R_{mesur\acute{e}e} (\Omega)$	K (m)			
Impolarisable filtre en hêtre	124	151,1	0,534			
Impolarisable filtre en hêtre	487	36,9	0,556			
Impolarisable filtre en hêtre	1180	15,7	0,541			
Impolarisable filtre en hêtre	4230	4,36	0,542			
Impolarisable filtre industriel	137	134,4	$0,\!543$			
Impolarisable filtre industriel	488	$37,\! 6$	0,545			
Inox	136	140,3	$0,\!524$			
Inox	442	$41,\!25$	$0,\!548$			
Inox	1348	$13,\! 6$	$0,\!547$			
Inox	6940	2,6	$0,\!553$			
Modélisation R3T	100	$242,\!424$	$0,\!413$			

Imporarisable intre en netre	1100	10,7	0,041
Impolarisable filtre en hêtre	4230	4,36	0,542
Impolarisable filtre industriel	137	134,4	$0,\!543$
Impolarisable filtre industriel	488	$37,\!6$	0,545
Inox	136	140, 3	$0,\!524$
Inox	442	$41,\!25$	$0,\!548$
Inox	1348	$13,\! 6$	$0,\!547$
Inox	6940	2,6	$0,\!553$

TABLE $4.3 - Facteurs$	s géométriques	calculés et	$\operatorname{mod}\acute{\mathrm{e}}\mathrm{lis}\acute{\mathrm{e}}\mathrm{s}$	pour le	petit	dispositif.
------------------------	----------------	-------------	--	---------	-------	-------------

Grand dispositif					
$\sigma_{eau}~(\mu{ m S/cm})$	$R_{mesur\acute{e}e}$ (Ω)	K (m)			
120	28,2	2,956			
129	$23,\!8$	$3,\!257$			
112	$26,\! 6$	3,356			
113	$26,\!1$	3,386			
116	26	3,314			
116	$28,\! 6$	$3,\!012$			
150, 15	$20,\!58$	$3,\!236$			
	$\begin{tabular}{ c c c c c c c c c c c c c c c c c c c$	$\begin{tabular}{ c c c c c } \hline \textbf{nd dispositif} \\ \hline \hline \sigma_{eau} \ (\mu \text{S/cm}) & R_{mesur\acute{e}} \ (\varOmega) \\ \hline 120 & 28,2 \\ 129 & 23,8 \\ 112 & 26,6 \\ 113 & 26,1 \\ 116 & 26 \\ 116 & 28,6 \\ 150,15 & 20,58 \\ \hline \end{tabular}$			

TABLE 4.4 – Facteurs géométriques calculés et modélisés pour le grand dispositif.

On notera que pour le petit dispositif, la modélisation avec R3T donne un facteur géométrique très différent de celui obtenu par les mesures. Ceci est du au fait que R3T fait l'approximation d'électrodes ponctuelles, il n'est pas possible de modéliser les électrodes elles-mêmes. Or le petit dispositif a des dimensions trop réduites pour que cette approximation soit valable. Pour le grand dispositif, le facteur géométrique modélisé est du même ordre de grandeur que celui mesuré.

On peut alors comparer le facteur géométrique moyen obtenu avec des électrodes impolarisables avec celui obtenu avec des électrodes en inox. Pour le petit dispositif, on trouve des valeurs très proches pour les 2 types d'électrodes :

Electrodes impolarisables : $K = 0,544 \pm 0,003$

Electrodes en inox : $K = 0,543 \pm 0,005$

Et pour le grand dispositif :

Electrodes impolarisables : $K = 3,254 \pm 0,06$

Electrodes en inox : K = 3,012 (1 seule mesure)

 $Mod \, \acute{e} lisation : K = 3,236$

Pour le grand dispositif, on observe une différence de 0,24 soit approximativement 7% entre les électrodes en inox et les impolarisables. Une seule mesure a été effectuée avec les électrodes en inox, et nous ne sommes donc pas en mesure de déterminer si cette différence est systématique ou si elle pourrait être due à une disposition différente des électrodes autour du milieu, ou à une autre variation dans le dispositif de mesure. Cependant, les résultats obtenus avec les électrodes impolarisables sont très proches de ceux obtenus par modélisation, ce qui reste encourageant quant à la bonne capacité de mesure de nos électrodes impolarisables sur ce dispositif.

Finalement, ce test a montré que les électrodes impolarisables, malgré leur résistance de contact non négligeable ($\approx 1 \text{ k}\Omega$), permettent d'évaluer la résistivité d'un milieu avec une précision tout à fait comparable à celle obtenue avec des électrodes parfaitement conductrices en acier inoxydable, et ce quel que soit le type de filtre utilisé.

Stabilité dans le temps des filtres

Durant les quelques jours qui ont suivi ce test, les électrodes impolarisables ont été stockées avec leur extrémité immergée dans une solution de sulfate de cuivre, en attendant de les réutiliser ultérieurement. Nous avons alors fait des observations qui ont mis en lumière la mauvaise tenue dans le temps des filtres en hêtre par rapport aux filtres industriels : au bout de trois jours, nous avons pu observer à l'œil nu leur dégradation physique, qui commencent à se fragiliser et à s'effriter naturellement, à cause du contact prolongé avec la solution, alors qu'au bout d'une semaine, aucune modification physique n'était visible sur les filtres industriels.

Ainsi, malgré un comportement relativement bon lors des tests présentés précédemment, nous avons finalement exclu l'utilisation de filtres en hêtre pour leur fragilité plus prononcée suite à un contact prolongé avec une solution aqueuse sur-saturée en $CuSO_4$.

Afin de vérifier que les électrodes impolarisables conçues avec des filtres industriels ne subissaient pas de modifications invisibles à l'oeil nu qui pourraient tout de même impacter leur capacité de mesure, nous avons suivi pendant plusieurs jours l'évolution de la résistance de contact entre tous les couples d'électrodes possibles au sein d'un groupe de 4 électrodes. Les résultats, rassemblés dans le tableau 4.5 sont rassurants. Les valeurs mesurées restent dans une gamme acceptable, et semblent stable sur une période de 7 jours.

N° jour	Gamme de $R_{contact}$ $(k\Omega)$
Jour 1	1 - 1,2
Jour 3	1,1 - $1,3$
Jour 4	1 - 1,3
Jour 7	0,9 - 1,3

TABLE 4.5 – Gammes de résistances de contact mesurées sur une période de 7 jours, pour tous les couples d'électrodes possibles au sein d'un groupe de 4 électrodes conçues avec des filtres industriels.

Ainsi, dans la suite de ces travaux, et pour le reste des tests, nous avons utilisé exclusivement des électrodes impolarisables conçues avec des filtres industriels Dionex.

1.2.3.2 Stabilité temporelle des mesures

L'étape suivante a consisté à évaluer la stabilité temporelle de nos électrodes pour des mesures de PPS sur des milieux proches de ceux étudiés lors des expériences d'injection de gaz proprement dites, et pour des échelles de temps similaires à la durée des expériences.

Le réservoir cylindrique utilisé pour les expériences est rempli avec du sable de Fontainebleau totalement saturé en eau dont la conductivité électrique est contrôlée en ajoutant une quantité connue de chlorure de sodium dans de l'eau distillée. Le protocole de remplissage est décrit en section 1.4.2 de ce chapitre. Une période d'attente d'à peu près 20 heures est respectée après le remplissage, afin de s'assurer que le milieu ait atteint l'équilibre chimique, puis l'on effectue des mesures PPS régulièrement au cours d'une période de 2 à 3 heures. L'ensemble du processus est appliqué pour toutes les expériences décrites dans cette section.

La figure 4.10 présente l'évolution des valeurs de phase et de résistivité en fonction du temps, pour chaque valeur de conductivité de l'eau saturante, et pour les fréquence 1 Hz et 12 kHz. Dans la plupart des études en PPS, les auteurs se focalisent sur une gamme de fréquences que l'on pourrait qualifier de basses à moyennes fréquences (généralement entre 1 mHz et 100 Hz). Très peu d'études s'essayent à analyser l'évolution d'une réponse PPS en se focalisant sur les hautes fréquences (>100 Hz) car le problème du couplage électromagnétique entre alors en jeu, compliquant sensiblement l'interprétation des signaux. Toutefois, dans les travaux présentés ici, la gamme des hautes fréquences nous intéresse tout particulièrement, c'est pourquoi nous avons choisi de présenter les résultats de ce test de stabilité temporelle à une fréquence classique (1 Hz), mais également à une fréquence haute (12 kHz).

Quelle que soit la fréquence et la conductivité électrique de l'eau saturante, les valeurs de résistivité mesurées présentent une très bonne stabilité dans le temps (graphiques c et d de la figure 4.10). A la fréquence 1 Hz (graphique a) les valeurs de phase mesurées présentent aussi une très bonne stabilité temporelle sur une période allant de 2 à 3 heures. À la fréquence 12 kHz, les mesures de phase sont légèrement plus instables (graphique b). On observe une très faible décroissance dans le temps, quasiment linéaire, pour les valeurs de conductivité $\sigma_{eau} = 150 \ \mu\text{S.cm}^{-1}$ et $\sigma_{eau} = 400 \ \mu\text{S.cm}^{-1}$. Cette décroissance est cependant très lente : si l'on fait l'approximation linéaire, le taux de décroissance est de l'ordre de 0,1 mrad par heure, ce qui est négligeable par rapport aux variations que nous avons observées lors des expériences d'injection de gaz.

Finalement, nos électrodes impolarisables semblent présenter une bonne stabilité temporelle lors de mesures en PPS sur des milieux similaires à ceux étudié lors de nos expériences, pour les fréquences moyennes comme pour les hautes fréquences.

1.2.4 Conclusions

Au travers de tests de conception, nous sommes parvenus à fabriquer des électrodes impolarisables suffisamment stables chimiquement et physiquement pour être utilisées sur une durée



Stabilité temporelle des électrodes

FIGURE 4.10 – Valeurs du déphasage et de la résistivité mesurées sur un milieu composé de sable de Fontainebleau saturé en eau pour 3 valeurs de conductivité électriques de l'eau saturante : a) Phase à la fréquence 1 Hz. b) Phase à la fréquence 12 kHz. c) Résistivité à la fréquence 1 Hz. d) Résistivité à la fréquence 12 kHz. Pour le graphique a), les barres d'erreur ont été réduites d'un facteur 10 pour plus de visibilité. Pour le graphique b) les barres d'erreur sont celles calculées par l'appareil de mesure. L'absence de barres d'erreurs signifie que les erreurs calculées par l'appareil de mesure sont plus faibles que la dimension des points du graphique. *Remarque importante :* Les barres d'erreur représentées ici sont issues d'un calcul propre à l'appareil de mesure SIP FUCHS III. Il a été montré lors d'études comparatives avec d'autres appareils de mesure de PPS que ces erreurs étaient largement sur-estimées (Weller et al., 2011c). Il faut donc les considérer avec prudence.

de l'ordre de la semaine. Les points clés de cette pérennité sont la solidification de la solution de sulfate de cuivre à l'aide de gélatine alimentaire, ainsi que l'utilisation de filtres industriels en polyéthylène de faible densité (de la marque Dionex).

Les tests de mesure ont ensuite permis de vérifier et de valider la capacité de ces électrodes à mesurer avec précision des valeurs de résistivité, malgré leur résistance de contact relativement élevée ($\approx 1 \text{ k}\Omega$). Nous avons également pu évaluer la stabilité temporelle de ces électrodes lors de mesures PPS, qui s'est avérée satisfaisante sur des période de 1 à 4 heures, pour les moyennes

fréquences (1 Hz) comme pour les hautes fréquences (12 kHz).

Notons également que Blondel *et. al.* (article en préparation c.f. annexe) ont également étudié le comportement d'électrodes impolarisables conçues selon le même procédé que nous, et ont obtenus des résultats corroborant nos propres conclusions, notamment concernant les filtres indutriels, ainsi que la stabilité dans le temps des électrodes.

1.3 Caractérisation des matériaux

1.3.1 Description préliminaire

Gaz d'injection

Nous nous sommes approvisionnés en gaz chez Air Liquide. L'azote et le CO_2 fournis présentent chacun des puretés supérieures à 99,99% de moles, les potentielles impuretés présentes sont de l'eau et du dioxygène.

Dans le tableau ci-dessous nous rassemblons quelques caractéristiques propres à chacun de ces gaz.

	CO_2	N_2
Masse molaire $(g.mol^{-1})$	$44,\!01$	28,01
Masse volumique $(g.L^{-1})$	1,87	$1,\!18$
Solubilité dans l'eau (vol/vol)	0,88	0,016

TABLE 4.6 – Quelques propriétés du diazote et du dioxyde de carbone. Les valeurs sont données pour une pression P = 1,013 bar, $T = 15^{\circ}$ C pour la masse molaire et la masse volumique et $T = 0^{\circ}$ C pour la solubilité. Valeurs extraites de l'encyclopédie des gaz de Air Liquide, accessible sur le site de l'entreprise :

http://encyclopedia.airliquide.com

Eau saturante

Nous contrôlons la conductivité électrique de l'eau utilisée pour saturer le milieu en dissolvant du chlorure de sodium (NaCl) dans de l'eau préalablement déionisée au sein de notre laboratoire. La conductivité électrique de l'eau déionisée que nous produisons est toujours inférieure à 3 μ S.cm⁻¹.

Les quantités approximatives de sel à dissoudre pour obtenir chaque palier de conductivité (150, 400, 1000 μ S.cm⁻¹) ont été déterminées en considérant la solubilité de NaCl dans l'eau, puis ajustées empiriquement pour s'approcher au mieux des valeurs de conductivités recherchées. Lorsque la conductivité électrique de l'eau présente moins de 10 μ S.cm⁻¹ d'écart avec la valeur recherchée, nous considérons que la préparation est satisfaisante.

Milieu granulaire non consolidé

Pour ces expériences en laboratoire, nous avons utilisé deux types de sables distincts.

- Du sable de Fontainebleau composé à 98% de silice et de 2% de feldspaths et de micas. Nous avons restreint sa granulométrie à la gamme 100 μm - 250 μm par des opérations de tamisage.
- Du sable carbonaté (Durcal 130) composé à plus de 98% de carbonate de calcium et moins de 2% de carbonate de magnésium. La distribution granulométrique du sable carbonaté est représentée à la figure 4.11.



FIGURE 4.11 – Histogramme représentant la distribution granulométrique du sable carbonaté, en terme de pourcentage massique. Tous les grains ont un diamètre inférieur à 400 μ m.

Nous avons étudié les caractéristiques hydrauliques et électriques de ces deux sables : porosité, perméabilité à l'eau et facteur de cimentation. Pour mesurer ces propriétés nous avons utilisé un dispositif expérimental conçu au sein de notre laboratoire. Les résultats de ces mesures ont permis de calibrer certains paramètres lors de la modélisation des expériences présentées dans ce chapitre (suivi PPS), mais également lors de la calibration du modèle cellulaire développé sous Matlab pour la modélisation des expériences de Vieira (2013) (c.f. chapitre 3).

Pour le sable de Fontainebleau, nous avons été capables d'obtenir des estimations assez précises des valeurs de porosité, de perméabilité à l'eau et du facteur de formation. Pour le sable carbonaté, nous n'avons pu estimer que la porosité, sans utiliser le dispositif en question. En effet, le dispositif de mesure n'est pas encore bien adapté à la caractérisation de matériaux présentant une solubilité dans l'eau trop élevée, qui provoque une détérioration considérable du système.

1.3.2 Dispositif de mesure

Le dispositif de mesure, que nous appelons "macro-perméamètre", est schématisé sur la figure 4.12. Initialement, ce dispositif a été développé par Jean Baptiste Clavaud au cours de ses travaux de thèse (Clavaud, 2001), nous n'avons effectué que quelques changements mineurs. Il nous a permis d'effectuer des mesures de porosité, de perméabilité à l'eau, ainsi que des mesures électriques lors d'un déplacement miscible, le tout au sein d'une même structure, en utilisant le même porte-échantillon pour toutes les mesures. Le système présente une bonne ergonomie, installer un échantillon sur le dispositif et changer de configuration selon le type de

mesure sont choses aisées grâce à l'utilisation de raccord rapides.



FIGURE 4.12 – Schéma de fonctionnement du macro-perméamètre. (1) Réservoir d'eau douce pour la mesure de la porosité. (2) Réservoir d'eau douce pour la mesure de la perméabilité à l'eau. (3) réservoir d'eau salée pour effectuer des déplacements miscibles.

Le dispositif de mesure est composé de :

- 1. Une cellule de fixation pour accueillir l'échantillon (figure 4.13).
- 2. Une pompe à vide qui permet de faire le vide dans tout le dispositif afin de s'assurer d'un saturation en eau optimale de l'échantillon, et de vérifier que l'ensemble est bien étanche à l'aide d'un manomètre.
- 3. Un manomètre à vide pour contrôler la qualité du vide.
- 4. Un réservoir gradué rempli d'eau douce pour la mesure de la porosité.
- 5. Un réservoir d'eau douce pour la mesure de la perméabilité à l'eau
- 6. Un réservoir d'eau salée pour effectuer des déplacements miscibles.
- 7. Une pompe à palettes, reliée à des réservoirs auxiliaires, permettant de maintenir un niveau constant d'eau dans les réservoirs 5 et 6.
- 8. Un impédance-mètre relié à la cellule de fixation et connecté à un ordinateur pour l'acquisition des mesures.
- 9. Une balance de marque SARTORIUS, connectée à l'ordinateur, permettant de suivre quasiment en continu le débit dans le circuit.
- 10. Une électrode de conductimétrie TetraCon DU/T reliée à un conductimètre numérique (Bioblock Scientific LF 340) qui mesure en continu la conductivité électrique de l'eau en sortie de l'échantillon.

Les réservoirs 4, 5 ou 6 peuvent être placés à trois hauteurs différentes (H1, H2, et H3 sur le schéma de la figure 4.12), ce qui permet à l'utilisateur de générer trois gradients de pression en entrée du circuit, et donc trois débits d'écoulement différents selon ses besoins. Nous verrons que cette caractéristique est particulièrement utile pour effectuer les mesures de perméabilité à l'eau.

L'ensemble de l'acquisition des données est synchronisée par un programme Labview développé par Contraires (2008), qui a également utilisé ce dispositif lors de ses travaux de thèse.

Montage d'un échantillon

La figure 4.13 donne une représentation photographique du porte échantillon (ou cellule de fixation) une fois assemblé, ainsi que des éléments qui le composent et de différents stades du montage.



FIGURE 4.13 – Assemblage d'un échantillon. a) Electrodes cylindriques en inox pour les mesures électriques. Les deux petits trous situés sur la tranche du cylindre permettent le branchement des câbles d'injection et de mesure sur les électrodes. b) Assemblage du cylindre plastique avec une des deux électrodes. c) Injection de silicone dans les jointures. d) Plaques métalliques avant assemblage. e) Bouchon en PVC. Le raccord en plastique blanc permet de relier la cellule de fixation au circuit de mesure.

Dans le cas de mesures sur un milieu non consolidé comme le sable de Fontainebleau, nous utilisons comme cellule un cylindre en plexiglas de diamètre interne 9 cm et de longueur 25 cm. On remplit celui-ci avec le sable, en suivant une procédure de remplissage et de tassage identique pour chaque échantillon. Le cylindre est alors scellé par deux électrodes en inox (photos a et b), et l'on assure l'étanchéité du système et une fixation pérenne en remplissant complètement les jointures avec du silicone (marque SOUDEX) (photo c). L'ensemble est alors isolé électriquement du reste du dispositif en ajoutant de chaque côté de la cellule des bouchons en PVC de forme cylindrique (photo e). Le tout est ensuite maintenu en position serrée à l'aide de plaques métalliques montées sur des tiges filetées cylindriques et maintenues par des écrous. Le porte-échantillon ainsi assemblé peut être monté aisément sur le dispositif grâce à l'utilisation de raccords rapides.

1.3.3 Mesures des propriétés hydrauliques

1.3.3.1 Mesure de la porosité

Sable de Fontainebleau

Ce dispositif nous permet de mesurer la porosité efficace, celle qui participe à la circulation des fluides, mais pas la porosité totale. Toutefois, dans le cas d'un milieu non consolidé comme le sable de Fontainebleau, nous considérons la porosité piégée comme nulle.

Pour cette mesure on utilise le réservoir d'eau douce gradué (numéroté 4 sur la figure 4.12). Une fois rempli d'eau, le réservoir est pesé.

Parallèlement, on fait le vide dans le circuit, puis on ferme les robinets 3 et 4 situés directement à la sortie de l'échantillon. On connecte le réservoir au circuit et on garde le robinet 6 fermé. En ouvrant celui-ci, l'eau sature totalement l'échantillon et atteint les robinets 3 et 4. En effectuant une nouvelle pesée du réservoir, on obtient le volume d'eau effectivement injecté dans le circuit $(V_{inject\acute{e}})$. On lui soustrait le volume des portions de circuit adjacentes au porte échantillon (V_{tuyaux}) (préalablement mesuré à l'aide d'un pied à coulisse), on en déduit alors le volume d'eau contenu dans l'échantillon. En rapportant celui-ci au volume de l'échantillon (de la cellule cylindrique), on obtient une valeur de la porosité Φ :

$$\Phi = \frac{V_{inject\acute{e}} - V_{tuyaux}}{V_{\acute{e}chantillon}}$$
(4.2)

Cette procédure à été appliquée sur deux échantillons distincts pour le sable de Fontainebleau. Nous avons obtenu les valeurs : $\Phi_1 = 42, 4 \%$ et $\Phi_2 = 41, 8 \%$, desquelles nous déduisons :

$$\Phi_{Fontainebleau} = 42, 1\% \pm 0, 3\%$$

Sable carbonaté

Pour le sable carbonaté, nous avons effectué trois mesures de porosité, en mesurant la différence de masse entre un volume déterminé de sable sec, et ce même volume de sable totalement saturé en eau. Nous avons obtenu les valeurs : $\Phi'_1 = 38,7 \%$, $\Phi'_2 = 37,9 \%$ et $\Phi'_3 = 37,8 \%$, desquelles nous déduisons :

$$\Phi_{Carbonates} = 38.1\% \pm 0,5\%$$

1.3.3.2 Mesure de la perméabilité à l'eau

Une fois l'échantillon totalement saturé en eau, on mesure sa perméabilité k en instaurant une circulation d'eau à débit constant dans l'échantillon, en mesurant ce débit, et en appliquant la loi classique de Darcy :

$$k = \frac{\mu q L}{S \Delta P} \tag{4.3}$$

où μ est la viscosité dynamique de l'eau ($\mu = 10^{-3} \text{ Pa.s}^{-1}$ à 20°C dans cette gamme de pressions), q le débit (en m³s⁻¹), L la longueur de l'échantillon (en m), S la section de l'échantillon (en m²) et ΔP la différence de pression entre l'entrée et la sortie de l'échantillon (en Pa).

Pour ce faire, on utilise le réservoir 5, rempli d'eau douce. On positionne ce dernier à une hauteur H donnée (H1, H2, ou H3 sur le schéma de la figure 4.12). La position haute du réservoir induit une pression à l'entrée de l'échantillon équivalente à la hauteur d'eau. On instaure alors la circulation de l'eau dans le circuit et à travers de l'échantillon. Le niveau d'eau dans le réservoir est maintenu constant grâce au réservoir d'eau douce auxiliaire (2) et à la pompe à palette, de telle sorte que le débit de circulation soit constant tout au long de la mesure. On mesure alors le débit en sortie du circuit grâce à la balance Sartorius.

On répète ce processus de mesure pour les 3 hauteurs d'eau H1, H2 et H3, de façon à disposer de plusieurs points de mesure. Nous avons ensuite appliqué ce protocole de mesure à deux échantillons différents. Pour chacun d'eux, les valeurs mesurées sont cohérentes pour les 3 hauteurs d'eau (figure 4.14). En calculant la valeur moyenne et l'incertitude sur la distribution de mesures on obtient :

$$k_1 = 12, 1 \pm 0, 3 \text{ D}$$

 $k_2 = 14, 1 \pm 0, 17 \text{ D}$

Dans les deux cas, la valeur de perméabilité mesurée avec la hauteur d'eau H1 est légèrement inférieure aux deux autres. Nous proposons d'expliquer ce phénomène par le fait que pour les hauteurs d'eau H2 et H3, la pression en entrée de l'échantillon entraîne une compression du sable légèrement plus marquée que pour la hauteur H1.

Les deux échantillons présentent donc des valeurs distinctes de 2 D. Cet écart est probablement dû à des variations de manipulation lors du protocole de remplissage, notamment lors des étapes de compaction. S'il ne nous est donc pas possible d'évaluer la perméabilité du sable de Fontainebleau au Darcy près, ces mesures nous permettent tout de même de disposer d'un ordre de grandeur fiable.



FIGURE 4.14 – Résultats des mesures de perméabilité réalisées avec le macro-perméamètre pour 2 échantillons de sable de Fontainebleau.

1.3.4 Mesures des propriétés électriques

1.3.4.1 Déplacement miscible

Les expériences de déplacements miscibles permettent d'avoir accès à un grand nombre de paramètres hydrauliques et électriques des roches. Lorsqu'elles sont appliquées à des échantillons de roche consolidées, elles permettent notamment d'obtenir des informations sur l'existence ou non de chemins de circulation préférentiels, et d'étudier les phénomènes de dispersion hydrodynamique qui se produisent lors de la circulation d'un fluide dans la roche (Clavaud, 2001).

Dans notre cas (milieu granulaire non-consolidé), nous avons réalisé ces expériences en nous limitant à la détermination du facteur de formation, de l'exposant de cimentation et de la tortuosité électrique.

Principe

Le principe des mesures est le suivant : l'échantillon est initialement saturé avec de l'eau distillée (de conductivité électrique très faible). On procède alors à l'injection d'une eau plus saline, donc plus conductrice, et l'on mesure à intervalles réguliers rapprochés l'évolution de la conductivité de la roche σ_r au cours de l'injection. C'est en observant la forme de cette courbe d'évolution, en fonction du temps ou du volume d'eau saline injectée, que l'on obtient des informations utiles sur le mode de circulation d'un fluide dans l'échantillon.



FIGURE 4.15 – Illustration du principe d'un déplacement miscible. À droite, exemple d'une courbe d'évolution de σ_r en fonction du volume d'eau saline injectée. A gauche, représentation schématique des trois stades du déplacement miscible correspondant aux trois zones de la courbe. Extrait de Clavaud (2001).

La figure 4.15 donne un exemple simplifié du type de signaux que l'on peut observer. La courbe représentant l'évolution de la conductivité de la roche σ_r en fonction du volume d'eau saline injectée V_{inj} est composée de trois parties distinctes, qui correspondent à trois différents stades de l'expérience, décrits schématiquement sur la partie gauche de la figure 4.15.

- 1. Pendant le premier stade, la conductivité de l'échantillon mesurée reste très faible, traduisant le fait que l'eau saline injectée n'a pas encore eu le temps d'atteindre la sortie de l'échantillon.
- 2. Le deuxième stade débute au moment où l'eau injecté atteint effectivement la sortie de l'échantillon. À partir de là, la conductivité mesurée augmente rapidement jusqu'à se stabiliser. On peut faire référence à ce stade comme la "zone percolante".
- 3. Le troisième stade débute lorsque l'échantillon est uniformément saturé en eau saline. Cet état correspond à la zone de la courbe pour laquelle la conductivité de l'échantillon est stabilisée.

A partir de cette courbe, on peut estimer le seuil de percolation électrique de l'échantillon. Il correspond à la fraction du volume poreux de l'échantillon envahie par la solution saline (volume injecté V_{inj}) au moment où la conductivité de l'échantillon commence à augmenter. Ce seuil apporte des informations sur le mode de circulation du fluide injecté dans l'échantillon. S'il est proche du volume poreux total de l'échantillon, cela signifie que le fluide s'est déplacé selon un front unique et homogène. En revanche, s'il est faible par rapport au volume poreux total, cela indique que le fluide a emprunté un chemin de circulation préférentiel : il atteint la sortie de l'échantillon alors que celui-ci est loin d'être totalement saturé par la solution saline injectée (c.f. exemple figure 4.16).



FIGURE 4.16 – a) Exemple d'une progression du fluide sous forme d'un front homogène. b) Exemple d'une progression selon un chemin préférentiel. Modifié d'après Clavaud (2001).

Mesures sur le sable de Fontainebleau

Nous avons donc effectué une expérience de déplacement miscible sur le sable de Fontainebleau. L'échantillon est initialement saturé par de l'eau distillée dont la conductivité électrique a été mesurée : $\sigma_0 = 2,7.10^{-3}$ mS.cm⁻¹. La solution saline utilisée comme fluide remplaçant à elle une conductivité électrique $\sigma_{inj} = 39,2$ mS.cm⁻¹, ce qui correspond à une concentration en chlorure de sodium d'à peu près 25 g.L⁻¹.

La conductivité de l'échantillon est mesurée à l'aide de l'impédance-mètre, branché sur les 2 électrodes du porte-échantillon. La conductivité du fluide en sortie de l'échantillon est également surveillée à l'aide de la cellule conductimétrique. Le débit d'injection est mesuré grâce à la balance Sartorius qui, placée en fin de circuit, pèse en continu la masse d'eau qui sort du circuit, et calcule automatiquement le débit d'écoulement correspondant. L'ensemble de ces appareils est relié à l'ordinateur via une centrale d'acquisition, et un programme Labview développé par Contraires (2008) permet de synchroniser les mesures. Dans le cas présent, on effectue l'acquisition de chacun des paramètres toutes les 3 secondes, pour une durée totale de l'expérience d'une quinzaine de minutes.

La figure 4.17 présente la courbe d'évolution de la conductivité de l'échantillon σ_r . La conductivité de l'échantillon semble commencer à augmenter aux alentours de $V_{inj} \approx 0,65$ L.

La cellule d'accueil de l'échantillon possède une longueur L = 25 cm, un diamètre d = 9 cm. On a mesuré précédemment la porosité du Sable de Fontainebleau ($\Phi = 42, 1\% \pm 0, 3\%$). On peut donc calculer le volume poreux total au sein de l'échantillon de sable de Fontainbleau :

$$V_{poreux} = \frac{\pi d^2}{4} L\phi \tag{4.4}$$

 soit

$$V_{poreux} = 0,66$$
 L

Le seuil de percolation électrique et le volume poreux de l'échantillon présentent des valeurs similaires. On en déduit que le fluide salin progresse dans l'échantillon selon un front homogène unique, et que le sable de Fontainebleau constitue un milieu très faiblement hétérogène.



FIGURE 4.17 – Evolution de la conductivité électrique de l'échantillon de sable de Fontainebleau en fonction du volume d'eau saline injecté. Le seuil de percolation électrique survient aux alentours de $V_{inj} \approx 0,65$ L.

1.3.4.2 Calcul du facteur de formation

Une fois la courbe de conductivité électrique stabilisée (stade 3 sur la figure 4.15), l'échantillon est totalement saturé en eau saline. On peut alors calculer le facteur de formation F, dont la forme générale est donnée (Johnson and Sen, 1988) par l'équation :

$$\sigma_r = \frac{\sigma_f}{F} + \sigma_s \tag{4.5}$$

où σ_r est la conductivité de la roche saturée (ici de l'échantillon de sable), σ_f la conductivité du fluide et σ_s la conductivité de surface.

Lorsque la salinité de l'eau saturante est suffisamment élevée, et en l'absence d'argiles, la conductivité de surface σ_s devient négligeable devant la conductivité du fluide. La conductivité électrique de la roche saturée évolue alors linéairement avec la conductivité électrique du fluide saturant. Glover et al. (1994) observent sur des grès de Berea possédant une faible concentration en argiles que ce comportement linéaire débute à partir d'une conductivité du fluide aux alentours de 1 S.m⁻¹. Revil and Skold (2011b) observent sur des sables siliceux un comportement linéaire à partir de $\sigma_f = 0,01$ S.m⁻¹. Notre sable de Fontainebleau ne contient aucun argile, et le fluide utilisé lors des expériences de déplacement miscible présente une conductivité électrique de 3.92 S.m⁻¹. La conductivité de surface est donc probablement négligeable lors de ces mesures, et l'on peut faire l'approximation :

$$F = \frac{\sigma_f}{\sigma_r} \tag{4.6}$$

Nous avons donc calculé la valeur du facteur de formation au cours de la phase 3, sur une plage temporelle de 100 secondes, ce qui correspond à 32 mesures, nous avons obtenu comme valeur moyenne :

$$F = 3,98 \pm 3.10^{-5}$$

Finalement, on peut en déduire la valeur du facteur de cimentation m utilisé dans la loi d'Archie. Archie (1942) relie le facteur de formation à la porosité par la relation :

$$F = \Phi^{-m} \tag{4.7}$$

 soit

$$m = -\frac{\log(F)}{\log(\phi)}$$

On obtient, avec la propagation des erreurs sur la mesure de la porosité :

$$m = 1,55 \pm 0,05$$

Pour finir, nous pouvons calculer un dernier paramètre structural, *la tortuosité électrique* (Wyllie, 1957; Worthington, 1993), reliée au facteur de formation F et à la porosité Φ par la relation :

$$\tau^2 = F * \Phi \tag{4.8}$$

On obtient, avec la propagation des incertitudes :

$$\tau=1,29\pm0,0046$$

Soit une tortuosité électrique assez proche de 1, révélatrice d'un réseau poreux homogène, en concordance avec les conclusions issues de la mesure du seuil de percolation.

1.4 Protocoles expérimentaux

1.4.1 Description des expériences

Comme expliqué en introduction de ce chapitre, les expériences présentées ici ont pour objectif d'évaluer l'impact sur les mesures PPS d'une injection de CO_2 dans un milieu granulaire non-consolidé saturé en eau. Afin de pouvoir discerner les effets induits par les différents processus physico-chimiques mis en jeu (e.g., désaturation du milieu et processus de dissolution), nous avons organisé notre campagne d'expériences de façon à pouvoir étudier indépendamment l'influence de 3 paramètres expérimentaux :

• La nature du gaz injecté : CO_2 (soluble dans l'eau) ou N_2 (peu soluble dans l'eau)

- Le type de milieu granulaire : sable siliceux de Fontainebleau (peu soluble) et sable carbonaté (soluble).
- La conductivité de l'eau saturante σ_f : 3 paliers de conductivité ont été choisis (150, 400, et 1000 μ S.cm⁻¹).

Les caractéristiques des gaz sont présentées brièvement à la section 1.3.1. Les sables utilisés ont été caractérisés expérimentalement, particulièrement le sable de Fontainebleau (c.f section 1.3.3).

Les 3 paliers de conductivité électrique de l'eau saturante sont obtenus par dissolution de NaCl dans de l'eau distillée. Le premier palier (150 μ S.cm⁻¹) correspond à un eau faiblement minéralisée. Le deuxième palier (400 μ S.cm⁻¹) correspond à une conductivité du même ordre de grandeur que l'eau potable rencontrée dans les aquifères exploités par l'homme, et le troisième palier (1000 μ S.cm⁻¹) correspond à une eau plus fortement minéralisée, et vise ainsi à représenter une eau que l'on peut rencontrer dans des aquifères salins non exploités pour l'approvisionnement en eau potable mais néanmoins présents dans la subsurface.

Afin d'explorer l'ensemble de ces paramètres expérimentaux, nous avons réalisé une expérience pour chacune des combinaisons possibles des différents paramètres. La campagne de mesure a donc été structurée en 12 expériences distinctes, nommées de E1 à E12, dont les caractéristiques sont résumées dans le tableau 4.7.

N° expérience	Sable	Gaz	Conductivité σ_f (µS.cm ⁻¹)	Résistivité $ ho_f$ (Ω .m)
E1	${ m Fontainebleau}$	N_2	150	66,7
$\mathbf{E2}$	${ m Fontainebleau}$	N_2	400	25
$\mathbf{E3}$	${ m Fontainebleau}$	N_2	1000	10
E4	${ m Fontainebleau}$	CO_2	150	66,7
$\mathbf{E5}$	${ m Fontainebleau}$	CO_2	400	25
$\mathbf{E6}$	${ m Fontainebleau}$	CO_2	1000	10
E7	Carbonates	N_2	150	66,7
$\mathbf{E8}$	Carbonates	N_2	400	25
$\mathbf{E9}$	Carbonates	N_2	1000	10
E10	Carbonates	CO_2	150	66,7
$\mathbf{E11}$	Carbonates	CO_2	400	25
E12	Carbonates	CO_2	1000	10

TABLE 4.7 – Tableau récapitulatif des 12 expériences distinctes et des paramètres expérimentaux associés.

Dans la suite de ce rapport, nous ferons parfois référence aux différentes expériences selon les triplets mis en évidence dans le tableau 4.7, correspondant aux trois valeurs de conductivité de l'eau pour un système sable/gaz donné.

Paramètres d'injection

Nous avons décidé de faire varier le débit d'injection de gaz au cours des expériences, dans le but de générer des états de désaturation plus ou moins marqués au sein du milieu. Durant chaque expérience, nous avons donc fait évoluer le débit d'injection selon les étapes schématisées sur la figure 4.18 :



FIGURE 4.18 – Evolution du débit d'injection de gaz au cours des expériences.

- Etat 0 : on effectue selon l'expérience entre 3 et 6 mesures de l'état initial à quelques minutes d'intervalle. Si les valeurs de phase et de résistivité mesurées restent équivalentes, nous considérons que le système est stable et nous commençons l'injection du gaz.
- Débit 1 (Q1 = 3 L.h⁻¹) : c'est la phase la plus longue de l'expérience, on injecte le gaz au débit Q1 pendant une période qui peut varier de 120 à 180 minutes selon l'expérience en effectuant des mesures à intervalles réguliers (entre 4 et 7 mesures).
- Débit 2 (Q2 = 8 L.h⁻¹) : on augmente ensuite le débit d'injection, que l'on maintient pendant une durée généralement inférieure à celle du débit 1 (entre 100 et 150 minutes) toujours en réalisant des mesures à intervalle régulier.
- Débit 3 (Q3 = 25 L.h⁻¹) : le passage au débit 3 est schématisé en pointillés car il a seulement été réalisé lors des expériences préliminaires. De simples observations visuelles (surveillance de l'élévation du niveau d'eau dans le réservoir) ont montré que ce débit ne provoquait pas de variation significative du niveau saturation en gaz dans le milieu. De plus, il est responsable de fortes perturbations au sein du système (création rapide de nombreuses poches de gaz qui se vident très rapidement, grosses bulles en surface). Ces perturbations se produisent à des échelles de temps bien inférieures à la durée d'une mesure (qui est d'environ 3 minutes). Après ces observations, nous avons donc exclu le passage au débit Q3.

Finalement, les expériences consistent en l'acquisition de l'état initial, puis plusieurs acquisitions lors de l'injection au débit Q1 et enfin plusieurs acquisitions pendant la période d'injection au débit Q2. Nous n'avons pas effectué de mesures post-injection.

Paramètres d'acquisition

Les expériences proprement dites durent entre 2 h et 6 h selon le couple sable / gaz étudié. Lorsque des processus de dissolution sont attendus (sable carbonaté $et/ou CO_2$), les expériences sont plus longues afin de s'approcher au plus près de l'équilibre chimique des réactions de dissolution en cours. Etant données de telles échelles de temps, nous avons choisi de réaliser des acquisitions relativement courtes (≈ 3 min) afin d'obtenir une bonne discrétisation dans le temps de la réponse PPS du système étudié. Nous avons donc choisi de nous affranchir des mesures aux fréquences inférieures à 0,05 Hz, pour lesquelles le temps d'acquisition devient trop important (cf tableau 4.1). Toutes les acquisitions PPS ont donc été réalisées dans la gamme de fréquences [0,05 Hz - 20 kHz].

Le nombre de mesures effectuées durant chaque expérience peut varier sensiblement selon la durée de l'expérience en question. En moyenne, on effectue à peu près une mesure toutes les 20-30 min, et certaines d'entre elles sont doublées (à 3-4 minutes d'intervalle).

1.4.2 Procédure de remplissage de la cuve

Pour chaque expérience, la procédure de remplissage de la cuve suit le même protocole. L'objectif principal est de s'assurer que le sable est totalement saturé en eau, et qu'il est disposé de la façon la plus homogène possible dans le réservoir. Pour cela, nous avons choisi de remplir d'abord le réservoir avec l'eau saturante jusqu'à la moitié de sa hauteur. On verse ensuite le sable délicatement sur un tamis dont la taille des mailles est juste supérieure au diamètre des grains (un tamis différent pour chaque sable). Ce procédé permet une répartition du sable homogène sur la section du réservoir, en pluie fine et suffisamment lente pour empêcher la formation d'agglomérats de sable qui peuvent potentiellement piéger des bulles d'air. A chaque fois qu'une couche de 3 cm de sable a été versée, on procède à un rapide tassage de la surface du sable, afin de la rendre bien horizontale, puis l'on verse une nouvelle couche de sable. Lors de cette procédure le sable est en permanence immergé dans l'eau, et l'on est donc certain de sa totale saturation. Une fois que le sable a atteint la hauteur z = 34 cm, on vient retirer la couche d'eau restante en surface (figure 4.19) à l'aide d'une pompe manuelle de façon à ce qu'il ne reste qu'un fin film d'eau à la surface du sable.



FIGURE 4.19 – Photo du réservoir rempli de sable carbonaté. Le sable est immergé pendant toute la procédure de remplissage, à la fin de laquelle on retire la couche d'eau restante à l'aide d'une pompe manuelle.

La fine pellicule d'eau restante après le pompage de la couche d'eau de surface permet

d'une part de s'assurer de la saturation totale en eau du système au cours de l'expérience, et est également utilisée comme un niveau de référence permettant de suivre l'évolution de la saturation en gaz dans le milieu. En effet, lorsque du gaz est introduit dans la milieu, le niveau d'eau à la surface du réservoir augmente, et la mesure de cette augmentation permet de calculer le volume de gaz piégé dans le milieu.

1.4.3 Mesures et prélèvements annexes pendant les expériences

Saturation en gaz

Nous avons donc pour chaque expérience mesuré le niveau de saturation en gaz au sein du milieu en surveillant l'élévation du niveau d'eau à la surface du sable. Connaissant la hauteur de la colonne de sable h = 34 cm, le niveau d'élévation de l'eau z_{eau} à la surface et la porosité Φ du sable utilisé, on peut en déduire la valeur de saturation en gaz S_g :

$$S_g = \frac{z_{eau}}{\Phi h} \tag{4.9}$$

Composition chimique de l'eau saturante

Afin de surveiller et quantifier l'ampleur des phénomènes de dissolution se produisant au cours de certaines expériences, nous avons procédé à des prélèvements du fluide saturant lors de ces expériences, le plus souvent à trois moments distincts : à l'état initial (pré-injection), avant de passer du débit d'injection $Q1 = 3 \text{ L.h}^{-1}$ au débit $Q2 = 8 \text{ L.h}^{-1}$, et à la fin de l'expérience.

À chaque fois, ces prélèvements sont filtrés de toute impureté solide à l'aide d'une seringue munie d'un filtre poreux. On mesure alors le pH et la conductivité électrique de ces échantillons d'eau saturante. Dans certains cas, nous avons procédé à des analyses en chromatographie ionique afin d'étudier la concentration en carbonates dissouts d'une part, et la composition en anions d'autre part (avec deux appareils de chromatographie ionique différents). L'ensemble des procédures d'analyse étant relativement lourd, nous avons seulement effectué ces études chromatographiques pour les triplets d'expériences impliquant le sable carbonaté.

Parmi les résultats obtenus grâce à ces études chromatographiques, nous avons notamment pu vérifier que la solution gélatineuse de sulfate de cuivre ne diffusait pas ou très peu dans le milieu d'étude. Le tableau 4.8 rassemble les concentrations en ion SO_4^{2-} mesurées aux trois stades (état initial, avant augmentation du débit et état final) des expériences E7 à E12. Pour chacune de ces expériences, et pour chacun des trois stades, des prélèvements ont été effectués au centre du cylindre à une hauteur $z \approx 20$ cm, et sur le côté du cylindre (proche des électrodes), à une hauteur similaire.

Dans l'ensemble, les valeurs de concentrations en ion sulfate sont faibles (de l'ordre de 1 ppm). En comparaison, les valeurs mesurées en ions Cl⁻ lors des mêmes analyses chromatographiques sur ces mêmes prélèvements, sont en moyenne de 33 ppm pour les expériences E7 et E10, 48 ppm pour les expériences E8 et E11 et 100 ppm pour les expériences E9 et E12. En



FIGURE 4.20 – Photo d'un appareil d'analyse en chromatographie ionique utilisé pour les mesures des concentrations en espèces dissoutes sur les prélèvements d'eau effectués lors des expériences.

	Etat initial		Etat intermédiare		Etat final	
Expérience	Milieu	Côté	Milieu	Côté	Milieu	Côté
E7	1,48	$1,\!38$	$1,\!17$	1,41	1,21	1,42
E8	1,20	$1,\!21$	$0,\!93$	$1,\!23$	0,94	1,27
E9	0,73	$1,\!14$	$1,\!01$	$1,\!26$	0,92	$1,\!29$
E10	1,36	$1,\!23$	$1,\!32$	$1,\!28$	1,09	1,26
E11	1,24	$1,\!24$	0,76	$1,\!28$	0,75	1,28
E12	4,00	1,76	$1,\!03$	$1,\!28$	0,97	1,35

TABLE 4.8 – Concentrations en SO_4^{2-} mesurées (en ppm) par analyses chromatographiques réalisées sur les échantillons prélevés lors des expériences E7 à E12.

outre, l'observation importante est que les concentrations en ions sulfates ne varient pas (ou très peu) au cours des expériences. Nos électrodes ont probablement diffusé très légèrement dans le milieu lors de la phase de remplissage.

2 Résultats

Lors d'une étude impliquant des mesures en PPS, les paramètres mesurés par l'appareil d'acquisition sont le déphasage Φ et la résistivité ρ . Ce sont donc ces deux paramètres que l'on utilise généralement pour évaluer la qualité des mesures effectuées.

A partir du déphasage et de la résistivité, on peut alors calculer les paramètres complexes σ' et σ'' . Ces deux termes sont particulièrement adaptés pour décrire et comprendre les phénomènes physiques mis en jeu. En effet, la conductivité en phase σ' rend compte de l'ampleur des phénomènes de conduction ohmique dans le milieu, alors que la conductivité en quadrature de phase σ'' est principalement liée aux propriétés capacitives du milieu (c.f. section 2.5).

2.1 Réponse PPS de l'état pré-injection

2.1.1 Dépendance fréquentielle

Dans cette section nous présentons et comparons la forme des réponses PPS mesurées sur le sable de Fontainebleau et le sable carbonaté dans leur état initial, c'est-à-dire totalement saturés en eau, avant l'injection de gaz. Nous avons choisi de présenter des cas où la conductivité de l'eau saturante vaut $\sigma_f = 400 \ \mu \text{S.cm}^{-1}$. C'est un choix arbitraire, les caractéristiques décrites ci-après peuvent être observées sur les autres états initiaux, indifféremment de la conductivité électrique de l'eau saturante.

Les figures 4.21 et 4.22 présentent les spectres fréquentiels de la résistivité ρ et de la phase Φ , et de la conductivité en phase σ' et de la conductivité en quadrature σ'' , pour chacun des sables totalement saturés.



FIGURE 4.21 – Spectres de résistivité et de phase mesurés dans la gamme de fréquences [0,05 Hz - 20 kHz] pour le sable de Fontainebleau et le sable carbonaté totalement saturés en eau de conductivité $\sigma_f = 400 \ \mu \text{S.cm}^{-1}$, avant l'injection de gaz. Les barres d'erreur sont celles calculées par l'appareil. L'absence de barre d'erreur signifie que l'erreur est plus petite que la taille du symbole.



FIGURE 4.22 – Spectres fréquentiels des parties réelle et imaginaire de la conductivité complexe, mesurés avant l'injection de gaz sur le sable de Fontainebleau et le sable carbonaté totalement saturés en eau de conductivité $\sigma_f = 400 \ \mu S.cm^{-1}$. Les acquisitions sont effectuées dans la gamme de fréquences 0,05 Hz – 20 k Hz. L'absence de barre d'erreur signifie que l'erreur est plus petite que la taille du symbole. Certaines barres d'erreur sortent du graphique à cause de l'échelle logarithmique.

A partir de ces graphiques, nous pouvons faire quatre observations majeures :

1. Tout d'abord, les données de déphasage sont de bonne qualité dès lors que la fréquence de mesure est supérieure à 1 Hz. En dessous, les barres d'erreur sur les valeurs de phase mesurées (calculées par l'appareil d'acquisition) sont relativement larges. On notera toutefois que les erreurs calculées par l'appareil SIP FUCHS III que nous utilisons sont considérablement surestimées (Weller et al., 2011c). Les mesures de résistivité sont de très bonne qualité sur l'ensemble du spectre fréquentiel (les barres d'erreurs sont plus petites que la taille des symboles).

2. Sur les spectres de la partie réelle de la conductivité complexe et les spectres de résistivité, on observe que les valeurs diminuent (ou augmentent) légèrement lorsque la fréquence de mesure augmente. La dépendance fréquentielle est légèrement plus marquée pour le sable de Fontainebleau que pour le sable carbonaté.

3. Au vu des graphiques représentant les spectres de *phase* et de *conductivité en quadrature* (graphiques b) des figures 4.21 et 4.22), les deux sables semblent posséder des propriétés capacitives différentes. Dans la gamme de fréquences [0.05 Hz - 100 Hz], le sable de Fontainebleau montre des phases apparentes de l'ordre de 1 mrad, ce qui correspond à une polarisation relativement peu marquée, mais cohérente avec les mesures effectuées sur des sables siliceux non consolidés par Skold et al. (2011) et celles effectuées sur du sable de Fontainebleau par Vaudelet et al. (2011). Le sable carbonaté montre quant à lui des valeurs de phases encore plus faibles, de l'ordre de 0,1 mrad. Il semble que les mécanismes de polarisation soient de très faible amplitude dans cette gamme de fréquences, voir quasi-inexistants, pour le sable carbonaté.

4. En s'approchant des hautes fréquences (f > 100 Hz), la phase et la conductivité en
quadrature de chacun des sables semblent converger vers des valeurs proches, qui suivent une évolution linéaire avec la fréquence. Ces spectres fréquentiels présentent donc deux comportements distincts entre les hautes et basses fréquences. La distinction est marquée par une rupture de pente qui semble se produire aux alentours de f = 100 Hz pour le sable carbonaté, et f = 300 Hz pour le sable de Fontainebleau.

2.1.2 Influence de la conductivité de surface

A la section 1.3.4.2 de ce chapitre, nous avons déterminé le facteur de formation associé au sable de Fontainebleau totalement saturé en eau de conductivité électrique $\sigma_f = 3,92 \text{ S.m}^{-1}$. D'après les travaux de Glover et al. (1994) et Revil and Skold (2011b), dans cette gamme de salinités la conductivité de surface de la silice est négligeable. Nous pouvons donc considérer la valeur du facteur de formation obtenue (F = 3,98) comme une valeur de référence pour caractériser l'influence ou non de la conductivité de surface des minéraux sur la conductivité électrique effective du milieu.

En utilisant les valeurs de résistivité mesurées à l'état initial de nos expériences impliquant du sable de Fontainebleau, nous avons calculé les valeurs du facteur de formation correspondantes, en faisant l'hypothèse que la conductivité de surface est négligeable. On a donc :

$$F = \frac{\sigma_f}{\sigma_r} \tag{4.10}$$

avec σ_f la conductivité électrique de l'eau saturante (en S.m⁻¹) et σ_r la conductivité électrique effective du milieu. Les valeurs obtenues sont rassemblées dans le tableau 2.1.2

Conductivité de l'eau ($\mu S.cm^{-1}$)	150	400	1000
Résistivité à $f=1~{\rm Hz}~(\varOmega.{\rm m})$	210	85	$37,\!5$
Facteur de formation F	3,15	$3,\!36$	3,75

TABLE 4.9 – Valeurs du facteur de formation calculées à partir de la résistivité de l'état initial des expériences avec le sable de Fontainebleau. Ces valeurs sont calculées en considérant la conductivité de surface négligeable.

On observe que les valeurs obtenues sont d'autant plus éloignées de la valeur de référence $(F = 3, 98 \pm 3.10^{-5})$ que la conductivité de l'eau saturante est faible. Nous pouvons donc en déduire que dans la gamme de salinités utilisée pour réaliser nos expériences, la conductivité de surface contribue de façon non négligeable à la conductivité électrique effective du milieu.

2.2 Evolution de la réponse PPS au cours de l'expérience selon la gamme de fréquences

Nous nous sommes aperçu rapidement qu'au cours de nos expériences, les paramètre PPS σ' et σ'' évoluaient différemment selon la fréquence du signal d'injection.

2.2.1 Evolution de la conductivité en quadrature $\sigma^{''}$.

Afin de ne pas surcharger ce rapport en graphiques, nous allons décrire ici la dépendance fréquentielle de la conductivité en quadrature σ'' et son évolution au cours du temps, en nous appuyant uniquement sur les résultats des expériences E2 et E11, qui correspondent respectivement aux systèmes sable de Fontainebleau / N₂ et sable carbonaté / CO₂, avec une eau saturante de conductivité $\sigma_f = 400 \ \mu \text{S.cm}^{-1}$ dans les 2 cas. Ces deux expériences représentent en quelque sorte les deux extrêmes de la campagne. L'expérience E2 correspond à un système non réactif chimiquement (gaz et sable non solubles dans l'eau dans les conditions expérimentales), et l'expérience E11 implique un système sujet à des processus de dissolution (gaz et sable tous les deux solubles dans l'eau). In fine, les observations qui suivent sont valables pour chacune des 12 expériences.

Expérience E2

L'expérience E2 correspond au couple sable de Fontainebleau / N₂, tout deux très faiblement solubles dans l'eau dans nos conditions expérimentales. L'évolution des spectres fréquentiels de la conductivité en quadrature σ'' est représentée sur la figure 4.23. On note à nouveau une évolution distincte selon les trois gammes de fréquences décrites précédemment.

1. Aux basses fréquences (f < 1 Hz), la conductivité en quadrature ne suit aucune tendance cohérente associable à l'évolution de l'expérience. On peut relier ce comportement disparate aux erreurs de mesure, particulièrement élevées dans cette gamme de fréquences (c.f. figure 4.22 et 4.21). Bien que les erreurs calculées par l'appareil d'acquisition soient probablement surestimées Weller et al. (2011c), il est probable que le caractère dynamique de l'expérience soit également responsable de ces erreurs élevées et du comportement disparate observé aux basses fréquences. En effet, la résolution spectrale du SIP FUCHS III diminue avec la fréquence (c.f. tableau 4.1, p.184). Par exemple, pour f = 0, 1 Hz, l'appareil effectue la mesure totale sur seulement 4 périodes d'injection et calcule l'erreur moyenne sur ces 4 périodes. Or, dans ces expériences le milieu est instable sur les périodes de temps correspondant à ces fréquences. Les chemins de circulation du gaz changent constamment, des poches de gaz se forment et se vident sur des échelles de temps de l'ordre de la seconde. Si le milieu est différent à chacune des 4 périodes de mesure il est donc logique que l'erreur associée soit particulièrement élevée.

2. Aux moyennes fréquences (1 Hz < f < 100 Hz), les variations observées sont extrêmement faibles (figure 4.23 graphique a)) et ne présentent aucune tendance cohérente entre chaque fréquence. L'amplitude de ces variations est comprise dans l'intervalle d'incertitude de la mesure.

3. Aux hautes fréquences (f > 1 kHz), les mesures évoluent de la même façon pour chacune des fréquences de la gamme. La tendance est difficilement observable lorsque l'on regarde le spectre entier, signe de variations relativement faibles, mais en effectuant un agrandissement sur une fréquence en particulier cette tendance devient visible (figure 4.23 graphique b)).



FIGURE 4.23 – Evolution des spectres fréquentiels de σ'' au cours de l'expérience E2. L'échelle de couleur correspond à l'avancement de l'expérience, de l'état initial (couleur froides) vers la fin de l'expérience (couleur chaudes). Les valeurs de σ'' évoluent de façon totalement désordonnée aux basses fréquences, ne varient quasiment pas aux moyennes fréquences et ne présentent aucune tendance (graphique a)). Aux hautes fréquences, une tendance se répète (graphique b)). Les cadres noirs entourent un agrandissement aux fréquences 3 kHz et 20 kHz permetant de visualiser globalement cette tendance.

Expérience E11

La figure 4.24 représente l'évolution des spectres fréquentiels de la conductivité en quadrature σ'' au fur et à mesure des acquisitions effectuées au cours de l'expérience E11 (sable carbonaté / CO₂). Il semble se distinguer trois comportements :

1. Aux basses fréquences (f < 1 Hz), on n'observe à nouveau aucune tendance systèmatique. Les valeurs évoluent de façon totalement désordonnée, là-encore probablement à cause de la faible résolution spectrale des acquisitions dans cette gamme de fréquences. Dans ce cas,



FIGURE 4.24 – Evolution des spectres fréquentiels de σ'' au cours de l'expérience E11. L'échelle de couleur correspond à l'avancement de l'expérience, de l'état initial (couleur froides) vers la fin de l'expérience (couleurs chaudes). Les croix correspondent au spectre fréquentiel de l'état initial de l'expérience E2. Les valeurs de σ'' évoluent de façon totalement désordonnée aux basses fréquences, varient aux moyennes fréquences sans montrer de tendance systématique (a) et présentent une tendance nette aux hautes fréquences (b).

l'erreur moyenne calculée par le SIP FUCHS III pour l'ensemble des mesures de cette gamme de fréquences est de $\Delta \sigma'' = 1,47.10^{-4} \text{ S.m}^{-1}$, soit un ordre de grandeur au dessus des valeurs effectivement mesurées. Il est fort probable que cette erreur soit sur-estimée, nous en avons discuté précédemment, mais même si elle l'était d'un ordre de grandeur elle resterait toujours trop importante par rapport aux variations observées.

2. Aux moyennes fréquences (1 Hz < f < 100 Hz), les valeurs sont moins dispersées, mais ne présentent pas de tendance répétée sur toute la gamme, certains points ne sont pas positionnés de la même façon par rapport aux autres (figure 4.24 graphique a)). La moyenne des erreurs calculées pour l'appareil dans cette gamme de fréquences vaut $\Delta \sigma'' = 3, 12.10^{-6} \text{ S.m}^{-1}$. Elle est donc du même ordre de grandeur que les valeurs mesurées, ce qui peut expliquer en partie l'absence de tendance répétée pour ces fréquences moyennes.

3. Pour les hautes fréquences cependant (f > 500 Hz), figure 4.24 graphique b)), on observe une tendance évolutive bien marquée : la conductivité en quadrature σ'' augmente au cours de l'expérience. L'erreur moyenne calculée par l'appareil vaut $\Delta \sigma'' = 1, 18.10^{-6}$, ce qui est de 1 à 3 ordres de grandeur plus petit que les valeurs mesurées. Les hautes fréquences semblent donc être la gamme la plus réactive aux changements induits par l'injection de CO₂.

Conclusions

En observant l'évolution des spectres fréquentiels pour les 12 expériences de la campagne, nous avons pu tirer les conclusions suivantes.

- L'appareil de mesure ne semble pas adapté pour des mesures de PPS à basses fréquences (f < 1 Hz) sur des systèmes dynamiquement changeants tels que ceux étudiés dans notre campagne d'expériences. Les mesures sont systématiquement désordonnées dans cette gamme de fréquences.
- Les mesures dans la gamme des fréquences moyennes (1 Hz < f < 100 Hz) présentent des variations non négligeables dans le cas d'un système sable/gaz sujet aux processus de dissolution (e.g., expérience E11), mais ces variations ne se répètent pas systématiquement pour chaque fréquence de la gamme. L'hypothèse de mesures bruitées à cause de la résolution spectrale décroissante de l'acquisition est proposée. Pour un système sable/gaz non solubles dans l'eau (e.g., expérience E2), les variations sont négligeables. Toutes les autres expériences ont montré aux moyennes fréquences des comportements similaires à celui des expériences E2 ou E11 : variations non systématiques ou variations négligeables.
- Dans la gamme des hautes fréquences (f > 1 kHz), pour une expérience donnée, les valeurs de σ["] évoluent selon une tendance qui se répète quelle que soit la fréquence de mesure. Ces tendances différent selon l'expérience, mais leur caractère systématique, ainsi que les très faibles erreurs de mesures associées à cette gamme de fréquences suggèrent qu'elles reflètent les changements physico-chimiques survenant dans le milieu. Dans les expériences avec le sable carbonaté, ce comportement apparaît dès la fréquence f = 100 Hz (e.g., expérience E11) et pour le sable de Fontainebleau, à partir de f = 500 Hz. La transition entre la réponse "hautes fréquences" et la réponse "moyennes fréquences" du système semble donc dépendre des paramètres expérimentaux.

En conclusion principale, c'est dans la gamme des hautes fréquences (f > 1 kHz) que la conductivité en quadrature σ'' semble répondre de la façon la plus stable et quantifiable à l'injection d'un gaz dans un sable saturé en eau. Dans la suite, nous privilégierons particulièrement cette gamme de fréquences pour l'étude des résultats de cette campagne d'expériences. Nous nous intéresserons en moindre proportions à la gamme des moyennes fréquences (1 Hz – 100

Hz), et, étant donné l'absence de tendance observable pour les fréquences inférieures à 1 Hz, nous n'évoquerons pas les résultats des mesures obtenues aux basses fréquences.

2.2.2 Evolution de la partie réelle de la conductivité complexe.

Sur la figure 4.25 nous avons représenté l'évolution des spectres fréquentiels de la partie réelle de la conductivité complexe σ' (ou conductivité en phase), au cours des 4 expériences pour lesquelles la conductivité de l'eau vaut $\sigma_f = 400 \ \mu \text{S.cm}^{-1}$ (expériences E2, E5, E8 et E11). Ces 4 expériences permettent d'observer les quatre systèmes sable / gaz étudiés lors de cette campagne de mesure. Le choix du deuxième palier de conductivité est encore une fois arbitraire, les observations décrites ci-après peuvent également être faites sur les expériences correspondant au premier ($\sigma_f = 150 \ \mu \text{S.cm}^{-1}$) ou au troisième palier ($\sigma_f = 1000 \ \mu \text{S.cm}^{-1}$).

Les spectres fréquentiels sont plats et stables tout au long des expériences, la dépendance fréquentielle est très faible. Les erreurs calculées par l'appareil sont de l'ordre de 10^{-10} S.m⁻¹, soit très inférieures aux valeurs mesurées.

Représenter ces résultats avec une même échelle de valeur permet de mesurer combien l'amplitude des variations de conductivité en phase dépend du couple sable / gaz étudié :

Effets de l'injection de CO₂ sur la partie réelle de la conductivité complexe

Lorsque l'on injecte du CO_2 (expériences E5 et E11), σ' augmente au cours de l'expérience, et davantage avec le sable carbonaté qu'avec le sable de Fontainebleau. Cette évolution est logique puisque la dissolution du CO_2 et/ou du sable carbonaté accroît la concentration en espèces dissoutes dans l'eau saturante, et donc sa conductivité électrique. Les analyses en chromatographie ionique et la mesure de la conductivité électrique d'échantillons d'eau prélevés au cours de l'expérience E11 ont confirmé cette interprétation. Les résultats de ces analyses sont présentés plus en détail en section 2.3.4 de ce chapitre.

Effets de l'injection de N₂ sur la partie réelle de la conductivité complexe

Lorsque l'on injecte du N₂ (expériences E2 et E8), les variations de σ' sont très faibles. Il est difficile de distinguer une tendance évolutive au cours de l'expérience avec l'échelle de valeurs utilisée sur ces graphiques. La figure 4.26 présente ces résultats avec une échelle adaptée aux gammes de valeurs mesurée :

- On observe à nouveau, pour tous les spectres mesurés, la dépendance fréquentielle plus marquée pour l'expérience E2 (sable de Fontainebleau), qu'on associe à une plus grande conductivité de surface des minéraux siliceux par rapport aux carbonates.
- Dans les deux cas, les spectres mesurés à la fin de l'expérience (couleurs chaudes) sont situés en dessous des spectres mesurés au début de l'expérience (couleurs froides). L'injection de N₂ dans le sable de Fontainebleau et le sable carbonaté induit une diminution



FIGURE 4.25 – Evolution des spectres fréquentiels de σ' au cours des expériences E2, E5, E8 et E11 avec les mêmes échelles de valeurs. Pour les quatres expériences, la conductivité de l'eau saturante vaut $\sigma_f = 400$ μ S.cm⁻¹ Les spectres de différentes couleurs correspondent à l'avancement de l'expérience, de l'état initial (couleur froides) vers la fin de l'expérience (couleur chaudes). a)Expérience E5 : sable de Fontainebleau + injection de CO₂. b) Expérience E11 : sable carbonaté + injection de CO₂. c) Expérience E2 : sable de Fontainebleau + injection de N₂. d) Expérience E8 : sable carbonaté + injection de N₂. Les erreurs calculées par le SIP FUCHS III sont plus petites que la taille des symboles.

de la conductivité en phase σ' . En terme de résistivité, les variations observées sont de l'ordre de 1 Ω .m, soit une diminution très faible. Le sable de Fontainebleau et le diazote étant très peu solubles dans l'eau, ces variations sont probablement induites par la présence d'une phase gazeuse piégée dans le milieu, et la diminution de la saturation en eau conséquente.

Par ailleurs, les variations observées sont du même ordre de grandeur pour le sable de Fontainebleau et le sable carbonaté. On peut en déduire que les processus de dissolution sont absents ou du moins très minoritaires dans les expériences impliquant du sable carbonaté et l'injection de diazote (e.g., expérience E8). Lors de la période d'attente de plusieurs heures qui précède le début de l'expérience (remplissage 24 h avant le début de



FIGURE 4.26 – Evolution des spectres fréquentiels de σ' au cours des expériences E2 et E8 avec une échelle de valeurs adaptée à chaque graphique. Les spectres de différentes couleurs correspondent à l'avancement de l'expérience, de l'état initial (couleur froides) vers la fin de l'expérience (couleur chaudes). a)Expérience E2 : sable de Fontainebleau + injection de N₂. b) Expérience E8 : sable carbonaté + injection de N₂. Les erreurs calculées par le SIP FUCHS III sont plus petites que la taille des symboles.

l'injection), le système se rapproche de l'équilibre de la réaction de dissolution de la calcite dans l'eau. Les mouvements de convection induits par l'injection de N_2 ne provoquent pas - ou peu - de dissolution supplémentaire de la calcite. Ce dernier point a été confirmé lors des analyses chromatographiques et conductimétriques effectuées sur des échantillons de fluide prélevés au cours de l'expérience E8 (c.f. tableau 4.10, p.228).

Conclusions

Tout d'abord, nous avons pu observer que la conductivité en phase σ' présente une dépendance fréquentielle légèrement plus marquée pour les expériences avec le sable de Fontainebleau que pour celles avec le sable carbonaté. Cette dépendance reste toutefois très faible dans les 2 cas, et surtout, n'est aucunement modifiée au cours de l'expérience.

La partie réelle de la conductivité complexe est *a priori* principalement contrôlée par les propriétés de conduction ohmique du milieu étudié. L'injection de CO_2 étant principalement responsable d'une augmentation de σ' , d'autant plus marquée si le milieu granulaire est le sable carbonaté, nous émettons l'hypothèse que les phénomènes majoritaires lors de ces expériences sont les processus de dissolution du CO_2 . L'injection de N₂ entraîne une diminution relativement faible mais non négligeable de la conductivité en phase, du même ordre de grandeur quel que soit la nature du milieu granulaire. Nous attribuons cet effet à la diminution de la saturation effective en eau du milieu, induite par l'injection de gaz. Dans la suite, nous parlerons généralement de *désaturation du milieu*.

2.2.3 Evolution du déphasage

Nous avons représenté sur la figure 4.27 les spectres de déphasage correspondant aux expériences E2 et E11.



FIGURE 4.27 – Evolution des spectres fréquentiels de déphasage au cours des expériences E2 et E11 . Les spectres de différentes couleurs correspondent à l'avancement de l'expérience, de l'état initial (couleur froides) vers la fin de l'expérience (couleur chaudes). Les barres d'erreur ne sont pas représentées pour plus de lisibilité.

Nous observons que dans les deux cas, dans la gamme des hautes fréquences (f > 1 kHz), les valeurs de phase sont élevées (entre 1 mrad et 70 mrad selon la fréquence). Cette observation est importante car elle permet d'affirmer que les variations de conductivité en quadrature σ'' observées (c.f. figures 4.23 et 4.24) sont bien associées à des phénomènes d'ordre capacitif et/ou inductif, et non aux propriétés de conduction ohmiques du milieu. En effet, par définition, le calcul de la conductivité en quadrature se fait d'après la relation :

$$\sigma^{''} = |\sigma| \sin\varphi$$

avec $|\sigma|$ l'inverse de l'amplitude $|\rho|$ et φ la phase. De fait, si le déphasage mesuré aux hautes fréquences était très faible, les variations de la conductivité en quadrature pourraient être induites par des variations d'amplitude, laquelle est liée aux propriétés de conduction ohmique du milieu.

En l'occurrence, dans notre cas, les valeurs de phase sont très élevées, et les spectres de déphasage et de conductivité en quadrature ont de plus des formes très similaires. En comparaison, les spectres d'amplitude mesurés ne présente aucune variation significative aux hautes fréquences. Nous pouvons donc en déduire que les variations de conductivité en quadrature observées aux hautes fréquences (f > 1 kHz) sont bien contrôlées par les variations du déphasage, et peuvent donc être associées principalement à des phénomènes d'ordre capacitif et/ou inductif.

Cette observation est valable pour l'ensemble des expériences réalisées, c'est pourquoi dans la suite, nous nous intéresserons principalement aux variations de conductivité en quadrature σ'' , et moins aux variations du déphasage.

2.3 Evolution temporelle des paramètres PPS à haute fréquence.

Ainsi que nous l'avons vu précédemment (section 2.2), c'est dans la gamme des hautes fréquences (f > 1 kHz) que la conductivité en quadrature mesurée au cours de nos expériences présente les variations les plus élevées et le meilleur rapport signal sur bruit. La conductivité en phase, elle, ne présente pas ou peu de dépendance fréquentielle, nous pouvons donc étudier son évolution au cours du temps indépendamment de la fréquence de mesure.

Dans cette section nous détaillons les résultats issus des 12 expériences, aux hautes fréquences, selon le cas-type présenté sur la figure 4.28 (expérience E4) : nous représentons l'évolution temporelle de la conductivité en phase σ' et en quadrature σ'' mesurées à la fréquence f = 12 kHz. Les deux grandeurs sont présentées sur le même graphique, les carrés verts représentent la conductivité en phase σ' , les ronds bleus la conductivité en quadrature σ'' et les axes des ordonnées sont colorés en concordance. Le titre du graphique résume les paramètres expérimentaux de chaque expérience sous la forme type de sable / type de gaz injecté / conductivité électrique de l'eau saturante. On utilise l'abréviation "Font" pour le sable de Fontainebleau et "Carb" pour le sable carbonaté. Le premier point de mesure correspond à l'état pré-injection, et des flèches oranges désignent les moments où l'injection débute (Q = 3 L/h) et où le débit d'injection est augmenté (Q = 8 L/h).

Avant de présenter l'ensemble des résultats, concentrons nous sur l'expérience E4 (figure 4.28). On observe une diminution nette de σ' et de σ'' quelques minutes après le début de l'injection. Nous attribuons ce phénomène à la diminution de la saturation en eau dans le milieu induite par l'introduction d'une phase gazeuse. Dans la suite de la description des résultats, nous observerons souvent cette diminution relativement brusque, rapidement après le début de l'injection de gaz. C'est pourquoi nous avons choisi de faire référence à ce comportement comme une « chute de désaturation ».

Lorsque l'expérience se poursuit, σ' et σ'' augmentent de façon de façon continue. Cet accroissement est corrélé à une augmentation de la conductivité électrique du fluide, conséquence de la dissolution du CO₂ au cours de l'injection. C'est pourquoi dans la suite, nous avons choisi de dénommer ce comportement « **accroissement de dissolution** ».

Ces deux comportements (chute de désaturation et accroissement de dissolution) sont visibles simultanément ou séparément dans tous les graphiques représentant l'évolution temporelle de chacune des 12 expériences réalisées. Nous allons désormais présenter ces résultats, en nous concentrant sur chaque triplet d'expérience correspondant à chacun des 4 systèmes sable / gaz étudiés.



FIGURE 4.28 – Evolution temporelle des conductivités en quadrature et en phase σ'' et σ' à la fréquence f = 12 kHz. Le premier point de mesure correspond à l'état initial pré-injection. Les flèches oranges dénotent respectivement le début de l'injection de gaz (Q = 3 L/h) et le moment où l'on augmente le débit (Q = 8 L/h).

2.3.1 Sable de Fontainebleau - Injection de N_2

Pour ce couple sable-gaz, aucun processus de dissolution significatif n'est attendu, étant donné les conditions de pression et de température auxquelles nous travaillons. De fait, sur les trois graphiques de la figure 4.29 on observe principalement des « chutes de désaturation ».

Pour l'expérience E1, la chute de désaturation immédiatement après le début de l'injection correspond à une augmentation du niveau d'eau en surface de 1 mm. Cette couche superficielle d'eau est retirée à l'aide d'une seringue avant d'effectuer l'acquisition PPS, afin que le volume investigué lors de chaque acquisition soit le même. Le volume total du cylindre est connu, ainsi que la porosité du sable. Une augmentation du niveau d'eau de 1 mm correspond à une diminution de la saturation en eau de 0,007 (équation 4.9). C'est un changement très faible, mais qui semble tout de même avoir un impact sur les paramètres PPS mesurés. Lorsque l'on passe au débit supérieur Q = 8 L/h, on observe une nouvelle augmentation du niveau d'eau de 1 mm, soit une diminution totale de la saturation en eau dans le milieu de 0,014 ($S_{eau}=0.986$). Les chutes de désaturation sont donc plus marquées avec l'augmentation du débit et la diminution de la saturation en eau, ce qui corrobore la relation présumée entre diminution de σ' et σ'' et l'introduction d'une phase gazeuse piégée dans le milieu. Aux alentours de t = 60 min, nous avons stoppé l'injection de gaz. Cette étape a été réalisée seulement pour l'expérience E1. Les valeurs semblent alors se stabiliser, après une légère ré-augmentation, probablement du à l'échappement d'une partie du gaz piégé dans le milieu.

Pour l'expérience E2, la chute de désaturation immédiatement après l'injection est bien marquée. Elle correspond à une augmentation du niveau d'eau de 2 mm, soit une saturation en eau $S_{eau}=0.986$. Après cette diminution nette, aux alentours du temps t = 60 min, le niveau d'eau à la surface n'augmente plus, les valeurs de conductivité en phase restent bien stables, signe que les chemins de circulation du gaz sont bien établis et que le système n'est pas en mesure de piéger davantage de gaz. Paradoxalement, on observe une légère mais constante augmentation de la conductivité en quadrature pendant cette période, que nous supposons due à un ré-arrangement progressif de la phase gazeuse au sein des pores envahis. Au passage à un débit d'injection supérieur, on observe à nouveau une légère diminution de la conductivité en phase.

L'expérience E3 montre à nouveau cette chute de désaturation immédiatement après l'injection. La saturation en eau effective atteinte vaut à nouveau $S_{eau}=0.986$ (augmentation de 2



FIGURE 4.29 – Evolution temporelle des conductivités en quadrature et en phase mesurées à la fréquence f = 12 kHz, pour le triplet d'expériences E1, E2 et E3 (sable de Fontainebleau, injection de N₂, trois paliers de conductivité).

mm du niveau d'eau). Une fois les chemins de circulation du gaz définis ($t \approx 35$ min) les valeurs de σ' et σ'' restent stables. On observe alors un comportement inattendu lorsque l'on augmente le débit d'injection : les valeurs augmentent de façon marquée. Il est difficile de proposer une explication rigoureuse pour ce comportement, d'autant plus que les valeurs de conductivité en phase augmentent jusqu'à dépasser (de peu) les valeurs de l'état initial. Nous proposons néanmoins comme hypothèse que l'augmentation du débit à 8 L/h perturbe le milieu en terme de structure. Il est vrai qu'au cours de ces expériences, on observe parfois la formation de poches de gaz, qui peuvent être petites et dispersées, ou plus grosses et bien localisées, et qui se forment et se vident relativement rapidement en déplaçant le sable (figure 4.30). On observe également des zones d'accumulation préférentielle parfaitement horizontales : la forte pression induite par l'injection disloque les couches de sable. Une fois que les chemins de circulation sont établis, la pression dans ces différentes zones diminuent, elles ne sont plus envahies par le gaz qui circule de façon plus directe vers la surface, mais elles perdurent néanmoins dans le temps et sont alors des zones remplies d'eau libre.





Notre hypothèse est donc que ces poches d'eau libre pourraient être responsables de ces augmentations de conductivité inattendues et néanmoins observées dans l'expérience E3. Ces modifications structurales ont également été observées pour d'autres expériences, ainsi que pour le débit d'injection initial (3 L/h). Pour ce débit, elles sont cependant moins marquées. Il est probable que selon leur localisation dans le réservoir et leurs dimensions, ces hétérogénéités peuvent avoir un impact plus ou moins fort sur les mesures.

2.3.2 Sable carbonaté - Injection de N₂

Pour le couple sable carbonaté / N_2 , on observe un comportement à nouveau principalement basé sur des chutes de désaturation (figure 4.31). Comme nous avons brièvement discuté à la section 2.2.2, il ne se produit aucune dissolution significative de la calcite lors de l'injection de N_2 . Dans la table 4.10 nous avons rassemblé les mesures conductimétriques et les mesures de pH que nous avons effectué sur des échantillons d'eau saturante prélevés respectivement à l'état initial pré-injection, juste avant d'augmenter le débit d'injection, et à la toute fin de l'expérience :

	E7 (σ_f	$_i = 150 \ \mu \mathrm{S.cm}^{-1}$	E8 (σ_f	$\mu_i = 400 \ \mu S.cm^{-1}$	E9 (σ_{fi} :	$= 1000 \ \mu S.cm^{-1})$
N° prélèvement	σ_{f}	$_{\mathrm{pH}}$	σ_{f}	$_{\mathrm{pH}}$	σ_{f}	pН
t1 (initial)	236	$8,\!65$	503	8,7	1090	8,84
t2 (milieu)	240	$8,\!49$	508	8,34	1010	8,56
t3 (final)	235	$8,\!58$	512	8,41	1007	8,61

TABLE 4.10 – Valeurs de conductivité et de pH mesurées sur des prélèvements de l'eau saturante à trois temps t1, t2 et t3 au cours de l'expérience (1 seule mesure par valeur). Le temps t1 correspond à l'état initial du système, avant le début de l'injection, t2 au prélèvement effectué juste avant l'augmentation du débit d'injection et t3 au prélèvement effectué à la fin de l'expérience.

Pour chacune des expériences, on observe qu'à l'état pré-injection la conductivité du fluide à augmenté d'approximativement 100 μ S par rapport à la conductivité initiale de l'eau saturante (150, 400 et 1000 μ S.cm⁻¹). Cette augmentation témoigne de la dissolution d'une partie de la calcite lors de la période d'attente de 20 h qui suit le remplissage de la cuve. Ensuite, la conductivité du fluide reste stable pour les expériences E7 et E8 au cours de l'injection de gaz. Cela montre bien que l'injection de N₂ n'induit pas de processus de dissolution supplémentaires, et que le sable calcaire est très proche de l'équilibre avec l'eau saturante. Pour l'expérience E9 par contre, les valeurs de conductivité au temps t2 et t3 sont plus faibles qu'au temps t1. Ce comportement est difficilement explicable, et est peut être la conséquence d'une dissolution non homogène de la calcite lors de la période d'attente de 20 h.

La chute de désaturation est bien observée pour les trois expériences. Au bout d'un certain temps, les chemins de circulation du gaz se stabilisent et les valeurs de σ' et σ'' n'évoluent quasiment plus. Le temps de stabilisation (que nous définissons comme le temps au bout duquel les 2 paramètres σ' et σ'' n'évoluent plus de façon significative dans le temps) est plus élevé pour ces expériences que pour celles avec le sable de Fontainebleau. Pour les expériences E7, E8, et E9, les temps de stabilisation sont respectivement de l'ordre de 300, 140, et 110 minutes, contre 60 et 35 minutes pour les expériences E2 et E3. Cette différence est probablement à mettre en relation avec la distribution granulométrique de chacun des sables. Le sable carbonaté présente un diamètre moyen de grain inférieur à celui du sable de Fontainebleau, et une distribution plus large, qui implique une porosité inférieure. Bien que nous ne disposions pas des valeurs de perméabilité, il est probable que celle du sable carbonaté soit inférieure à celle du sable de Fontainebleau. Pour toutes ces raisons nous émettons l'hypothèse que le gaz progresse plus lentement dans le milieu, et met donc plus de temps avant d'atteindre un schéma de circulation établi. Cette assertion est également corroborée par le fait que le niveau d'eau à la surface du milieu augmente lentement et de façon continue pour les expériences avec le sable carbonaté. Pour l'expérience E7, on observe une augmentation du niveau d'eau de 1 mm à t = 20 min (juste après le début de l'injection), puis 2 mm (au total) à t = 70 min, et enfin un niveau stable



FIGURE 4.31 – Représentation de l'évolution temporelle des conductivités en quadrature et en phase mesurées à la fréquence f = 12 kHz, pour le triplet d'expériences E7, E8 et E9 (sable carbonaté, injection de N₂, trois paliers de conductivité).

à 3 mm (au total) à t = 250 min, qui correspond à une saturation en eau $S_{eau} = 0, 98$. Pour les expériences E8 et E9, les augmentations du niveau d'eau après stabilisation sont respectivement de 2,5 mm et 3 mm.

D'autre part, le temps de stabilisation pour les 2 paramètres PPS semble également augmenter lorsque la conductivité électrique de l'eau saturante diminue. Pour les expériences E7, E8, et E9, les temps de stabilisation sont respectivement de l'ordre de 300, 140, et 110 minutes. Cette observation s'applique aussi aux expériences E2 et E3 pour lesquels les temps de stabilisation sont respectivement de l'ordre de 60 et 35 minutes. Pour l'expérience E1 nous ne pouvons pas estimer le temps de stabilisation puisque l'injection a été coupée au cours de l'expérience. La salinité de l'eau saturante semble donc avoir un impact sur la dynamique des chutes de désaturation.

2.3.3 Sable de Fontainebleau - Injection de CO₂

Comme nous avons pu le voir au début de cette section pour l'expérience E4, l'injection de CO_2 dans un sable de Fontainebleau saturé provoque deux comportements distincts dans l'évolution des mesures : une chute de désaturation immédiatement après le début de l'injection, conséquence de la diminution relativement faible mais rapide du niveau de saturation en eau du milieu. Puis une augmentation à peu près linéaire dans le temps, induite par les processus de dissolution du CO_2 . Les valeurs de pH mesurées au cours de l'expérience E4 montent que le milieu s'acidifie rapidement (table 4.11), corroborant l'implication des processus de dissolution du CO_2 dans les variations des paramètres PPS observées.

Temps du prélèvement	$_{\mathrm{pH}}$
${ m t0}=0\min$	8,19
${ m t1}=+~48~{ m min}$	5,24
${ m t2}=+~160~{ m min}$	5,24
${ m t3}=+~210~{ m min}$	5,07

TABLE 4.11 – Valeurs de pH mesurées au cours de l'expérience E4 sur des échantillons d'eau prélevés à différents intervalles de temps pendant l'expérience. Le temps t0 correspond à l'état initial pré-injection.

On observe que les chutes de désaturation sont plus marquées pour la partie imaginaire que pour la partie réelle de la conductivité complexe (figure 4.32), et ce pour les trois expériences. Pour l'expérience E5, notamment, la partie réelle σ' ne subit pas de diminution après le début de l'injection, alors que la partie imaginaire σ'' diminue nettement (de l'ordre de 3×10^{-5}).

L'accroissement de dissolution présente une forme relativement linéaire, surtout pour les expériences E5 et E6. Il semble que la saturation en CO_2 dissout n'ait pas été atteinte à la fin des expériences, car les valeurs de conductivité en phase et en quadrature ne se sont pas stabilisées.

L'augmentation du débit d'injection de 3 L/h à 8 L/h n'a qu'un impact faible sur les valeurs de σ' et σ'' mesurées. Pour les expérience E4 et E6, on peut observer une très légère diminution des conductivités que l'on peut relier à l'augmentation de débit. Pour l'expérience E5, aucune modification n'est observable, malgré des mesures effectuées rapidement après le changement de débit.

2.3.4 Sable carbonaté - Injection de CO₂

Dans le cas du système sable carbonaté / CO_2 , on n'observe plus du tout de chute de désaturation. Pour les trois expériences, les réponses sont dominées par les phénomènes de dissolution du CO_2 et de la calcite (figure 4.33). Le niveau de désaturation atteint suite à l'injection de gaz est sensiblement plus faible que celui mesuré lors de l'injection de N₂. Nous avons observé des augmentations du niveau d'eau respectivement de 2 mm, 0,5 mm et 0 mm pour les expériences E10, E11 et E12. De plus, il est important de préciser que lors de l'expérience E10, quelques minutes après le début l'injection le niveau d'eau était retourné à son niveau d'origine. Pour



FIGURE 4.32 – Représentation de l'évolution temporelle des conductivités en quadrature et en phase mesurées à la fréquence f = 12 kHz, pour le triplet d'expériences E4, E5 et E6 (sable de Fontainebleau, injection de CO₂, trois paliers de conductivité).

ce triplet d'expérience, l'absence de chute de désaturation peut selon nous s'expliquer ainsi : d'une part, les fractions de gaz piégées immédiatement après l'injection se dissolvent rapidement dans l'eau saturante, ce qui, associé aux temps de stabilisation apparemment élevés pour le sable carbonaté, ne permet pas une accumulation suffisante de gaz dans le milieu pour affecter sensiblement les mesures. D'autre part, la dissolution du CO_2 dans l'eau est un phénomène très rapide. L'acidification conséquente, rapide, du milieu, accélère aussi la dissolution des carbonates. Si l'on raisonne alors en terme de compétition entre l'effet sur les mesures de la désaturation du milieu et de l'augmentation de la conductivité électrique de l'eau saturante, il est légitime de penser que la chute de désaturation puisse simplement être masquée par l'accroissement de dissolution, plus rapide. Cette approche est d'ailleurs supportée et bien illustrée si l'on regarde l'évolution des spectres fréquentiels de la conductivité en phase (section 2.2.2 figure 4.25), sur lesquels la différence d'amplitude des variations est flagrante pour le triplet d'expériences (E10, E11, E12) par rapport aux triplets (E1, E2, E3) et (E7, E8, E9) où les processus de dissolution n'interviennent pas. Afin de comprendre au mieux l'évolution des signaux et leur dépendance à la chimie du fluide saturant, nous avons mesuré pour ces trois expériences, toujours à trois intervalles de temps différents (état initial, avant l'augmentation du débit, état final) le pH, la conductivité électrique du fluide, et avons également mené des analyses en chromatographie ionique sur ces prélèvements, afin de suivre l'évolution globale des concentrations en espèces dissoutes dans le milieu au cours des expériences. Les analyses chromatographiques nous ont donné accès aux concentrations en ions Ca^{2+} , Mg^{2+} , K^+ , Na^+ , SO_4^{2-} , HCO_3^- et Cl^- . Les concentrations en ions calcium et en ions hydrogénocarbonates nous intéressent particulièrement puisqu'elles témoignent de l'état d'avancement de la réaction de dissolution de la calcite dans l'eau dans le contexte d'un système calco-carbonique (équation 4.11).

$$CaCO_3 + CO_2 + H_2O \rightleftharpoons Ca^{2+} + 2HCO_3^{-}$$

$$(4.11)$$

Les concentrations en ions potassium, magnésium et sulfate sont systématiquement très



FIGURE 4.33 – Représentation de l'évolution temporelle des conductivités en quadrature et en phase mesurées à la fréquence f = 12 kHz, pour le triplet d'expériences E10, E11 et E12 (sable carbonaté, injection de CO₂, trois paliers de conductivité).

faibles (< 0,1 mmol.L⁻¹), et n'évoluent pas au cours des expériences. Les concentrations en ions sodium et chlorure sont élevées puisque l'eau utilisée pour saturer le milieu d'étude est initialement une solution de NaCl, mais elles n'évoluent pas non plus au cours de l'expérience.

Dans les tableaux 4.12, 4.13 et 4.14, nous avons rassemblé les principaux résultats des analyses, à savoir le pH, la conductivité électrique de l'échantillon d'eau, ainsi que les concentrations en ions HCO_3^- et Ca^{2+} (en mmol. L^{-1}).

E10	Temps (h)	$\sigma_f~(\mu { m S.cm^{-1}})$	pH	$[\mathrm{HCO}_{3}^{-}] \ (\mathrm{mmol.}^{-1})$	$[Ca^{2+}] \pmod{L^{-1}}$
	0	270	8,7	0,49	$0,\!45$
	4,5	402	$7,\!21$	1,23	$0,\!68$
	7	650	6,21	13	5,75

TABLE 4.12 – Données conductimétriques et chromatographiques issues de l'analyse d'échantillons d'eau prélevés lors de l'expérience E10 (la colonne Carbonates correspond aux concentrations en espèces carbonatées dissoutes).

E11	Temps (h)	$\sigma_f ~(\mu { m S.cm^{-1}})$	$_{\rm pH}$	$[\mathrm{HCO}_{3}^{-}] \ (\mathrm{mmol.}^{-1})$	$[Ca^{2+}] \pmod{-1}$
	0	511	8,8	$0,\!22$	0,31
	7	1050	$6,\!07$	$7,\!37$	8,04
	9	1100	$6,\!02$	$7,\!94$	7,66

TABLE 4.13 – Données conductimétriques et chromatographiques issues de l'analyse d'échantillons d'eau prélevés lors de l'expérience E11 (la colonne Carbonates correspond aux concentrations en espèces carbonatées dissoutes).

$\mathbf{E12}$	Temps (h)	$\sigma_f~(\mu { m S.cm^{-1}})$	$_{\rm pH}$	$[\mathrm{HCO}_3^-] \pmod{-1}$	$[Ca^{2+}] \pmod{-1}$
	0	1250	8,55	0,36	0,4
	7	1700	$6,\!19$	16,4	$8,\!18$
	9,5	1900	$6,\!17$	22,4	$6,\!98$

TABLE 4.14 – Données conductimétriques et chromatographiques issues de l'analyse d'échantillons d'eau prélevés lors de l'expérience E12. La colonne Carbonates correspond aux concentrations en espèces carbonatées dissoutes.

Au premier regard, ces résultats mettent bien en évidence l'implication des phénomènes de dissolution de la calcite et du CO_2 dans les variations des paramètres PPS observées : les concentrations en ions hydrogénocarbonates et calcium subissent des variations de 1 à 2 ordres de grandeurs par rapport à l'état initial, et ce pour les trois expériences.

Cependant, en approfondissant l'analyse des concentrations mesurées, on observe des comportements différents. Dans le cas de l'expérience E10, le pH diminue et la conductivité σ_f augmente progressivement au cours de l'expérience, et les concentrations en HCO_3^- et Ca^{2+} ont augmenté assez faiblement à t = 4,5 h mais ont subit une forte augmentation à t = 7 h.

Les expériences E11 et E12 présentent un comportement différent. Tout d'abord, dans les deux cas, à partir de t = 7 h, le pH n'évolue plus (ou très peu) dans la suite de l'expérience.

Pourtant des réactions chimiques continuent de se produire puisque la concentration en $HCO_3^$ continue d'augmenter jusqu'à la fin de l'expérience, alors que la concentration en Ca^{2+} , elle diminue sensiblement. Cette évolution opposée est difficilement explicable. En théorie si la dissolution de la calcite et/ou du CO_2 continue de se produire, les deux concentrations en $HCO_3^$ et Ca^{2+} sont censées augmenter. Si l'on tente d'expliquer la diminution de la concentration en ions Ca^{2+} par des phénomènes de précipitation, et l'augmentation de la concentration en ions HCO_3^- par la dissolution du CO_2 qui se poursuit, alors le pH devrait également continuer à diminuer. En somme les variations des observables géochimiques considérées sont difficilement explicables.

A partir des concentrations mesurées, nous avons calculé pour chaque intervalle de temps de chaque expérience, la balance ionique (BI) en %, de l'échantillon d'eau prélevé. Cette quantité permet de vérifier que l'équilibre des charges est bien respecté dans la solution et ainsi de s'assurer de la qualité des analyses effectuées. Concrètement, la balance ionique d'une solution aqueuse doit être nulle. Les méthodes analytiques usuelles considèrent un écart de $\pm 5\%$ de la valeur nulle comme acceptable (Didier Jézéquel, communication personnelle). Au delà, cela signifie qu'une ou plusieurs des concentrations mesurées sont fausses ou qu'une espèce en concentration importante a été négligée dans le calcul. Dans notre cas, nous estimons avoir pris en compte l'ensemble des espèces dissoutes dans nos échantillons d'eau. La balance ionique se calcule à partir de l'expression :

$$BI_{(\%)} = \frac{\Sigma^+ - \Sigma^-}{\Sigma^+ + \Sigma^-} \times 100$$
(4.12)

avec Σ^+ et Σ^- la somme des charges positives et négatives présentes dans la solution, qui dépendent de la valence et des concentrations en ions présents dans la solution.

$$\Sigma^+ = \sum_i z_i [+]_i \tag{4.13}$$

$$\Sigma^{-} = \sum_{i} z_{i} [-]_{i} \tag{4.14}$$

avec z_i la valence de l'espèce i, et $[+]_i$ et $[-]_i$, les concentrations molaires de l'espèce i selon si celle-ci est un cation ou un anion.

Le tableau 2.3.4, rassemble l'ensemble des valeurs de balances ioniques ioniques calculées à partir des concentrations en espèces dissoutes mesurées sur chacun des échantillon prélevé au cours des expériences.

Dans seulement 3 cas sur 9, la balance ionique calculée présente une valeur « acceptable ». Si l'on considère que nos analyses chromatographiques n'ont négligé aucune espèce dissoute d'importance, ces résultats signifient que les concentrations mesurées sont peu fiables. Nous considérons comme crédibles les augmentations très importantes en ions calcium et hydrogénocarbonates observées, lesquels attestent des réactions de dissolution du CO_2 et de la calcite dans l'eau au cours de l'injection de CO_2 . Cependant, les probables erreurs associées aux analyses

Expérience E10		Expérience E11		Expérience E12	
Temps (h)	BI (%)	Temps (h)	BI (%)	Temps (h)	BI (%)
0	12,0689907	0	$11,\!8398395$	0	-1,90902261
4,5	$18,\!0927812$	7	$15,\!1702696$	7	$0,\!84979234$
7	-2,03488429	9	10,4320411	9,5	$-15,\!5495461$

TABLE 4.15 – Tableau récapitulatif des valeurs de balances ioniques calculées pour chaque prélèvement effectué lors des expériences. Les valeurs en gras correspondent à des balance ionique "acceptables" (< 5%).

chromatographiques ne nous permettent pas de proposer une étude et une interprétation plus poussée des phénomènes chimiques qui se produisent.

2.3.5 Amplitude des variations

Variations absolues

Au cours de cette campagne d'expériences, nous avons donc pu observer qu'aux hautes fréquences (f > 100 Hz), l'injection de gaz induit des variations significatives sur les paramètres PPS (σ' et σ'') mesurés. Nous qualifions ces variations de significatives car dans tous les cas, les erreurs associées aux mesures sont extrêmement faibles dans cette gamme de fréquences, d'au moins un ordre de grandeur en dessous des variations observées. Ces variations ont donc une origine physique, et ne sont pas induite par un bruit environnant. Cependant, il est intéressant d'observer qu'entre les différents systèmes gaz/sable étudiés, les variations de la réponse PPS ont des amplitudes très variées. La figure 4.34 représente l'évolution des parties réelle et imaginaire de la conductivité complexe mesurées à la fréquence f = 12 kHz au cours des expériences E2, E5, E8 et E11 (pour lesquelles la conductivité initiale de l'eau saturante est de 400 μ S.cm⁻¹). Les quatre systèmes gaz/sable sont donc représentés, et l'on peut voir immédiatement que les variations observées sur le systèmes. De façon générale, les variations induites par les processus de dissolution (E5 et E11) sont plus importantes que celles induites par les processus de désaturation.

Variations relatives

Il est également intéressant d'observer l'amplitude relative de ces variations, c'est-à-dire le pourcentage d'augmentation ou de diminution que subissent les valeurs des paramètres PPS au cours de l'expérience, selon le phénomène impliqué (désaturation, dissolution etc..), par rapport à leur valeur initiale. Nous avons également étudié les éventuelles relations existant entre ces pourcentages de variation relatives et les paramètres expérimentaux qui définissent les expériences. Nous nous sommes notamment intéressés à :

1. La chute de désaturation immédiatement après l'injection de gaz, c'est-à-dire la différence mesurée entre l'état initial (pré-injection) et le premier point de mesure, dont l'acquisition



FIGURE 4.34 – Evolution des valeurs de σ' et σ'' mesurées à la fréquence f = 12 kHz lors des expériences. Système sable de Fontainebleau / N₂ et sable carbonaté / N₂.

est généralement réalisée entre 10 et 20 minutes après le début de l'injection. Ce point concerne toutes les expériences excepté le triplet d'expériences (E10, E11, E12) pour lesquelles on n'observe aucune chute de désaturation.

- 2. La chute de désaturation une fois le système stabilisé, c'est-à-dire une fois que les chemins de circulation du gaz sont bien établis, et que les mesures de σ' et σ'' semblent avoir atteint un palier. On calcule alors le pourcentage de variation entre l'état initial et ce palier de stabilisation. Ce point 2 concerne uniquement les expériences impliquant l'injection de N₂ : E2, E3, E7, E8 et E9. L'expérience E1 ne rentre pas dans cette catégorie à cause du protocole particulier qui lui a été appliqué (coupure de l'injection et augmentation rapide du débit d'injection). On n'observe pas de période de stabilisation pour les deux autres triplets d'expériences (E4, E5, E6) et (E10, E11, E12) car les processus de dissolution ont un impact prédominant sur l'évolution des paramètres.
- 3. L'accroissement de dissolution, qui ne concerne donc que les expériences impliquant l'injection de CO₂. Les durées totales des expériences étant sensiblement variables, nous avons choisi de normaliser cet accroissement en fonction du temps, afin de pouvoir comparer les variations observées. Concrètement nous avons calculé l'accroissement moyen sur une période de 100 minutes à partir du début de l'augmentation, c'est-à-dire :

- À partir de l'état initial si l'on observe pas de chute de désaturation pour l'expérience en question (cas des expériences E10, E11 et E12 : sable carbonaté / injection de CO_2).

À partir de la première mesure qui suit la chute de désaturation si cette dernière est présente (cas des expériences E4, E5 et E6 : sable de Fontainebleau / injection de CO₂).
Pour ces trois expériences, le point de mesure en question est la première mesure après l'état initial. Les pourcentages de variation sont toujours donnés positifs, qu'il s'agisse d'une diminution ou d'une augmentation des valeurs. Ils sont calculés par rapport à la valeur du point de mesure à partir duquel débute le phénomène, selon la formule :

$$\Delta X_{\%} = \frac{|X_{t_1} - X_{t_2}|}{X_{t_1}} * 100 \tag{4.15}$$

où X correspond à la grandeur mesurée (σ' ou σ''), t_1 le point de mesure au début du phénomène mesuré (accroissement de dissolution ou chute de désaturation), t_2 le point de mesure à la fin du phénomène ($t_2 = 100$ min pour l'accroissement de dissolution), avec donc $t_1 < t_2$.

Chute de désaturation immédiate

La chute de désaturation immédiate ne concerne pas le triplet d'expérience E10, E11 et E12, correspondant au système carbonates/CO₂, car l'injection de gaz n'induit aucune diminution sur les paramètres σ' ou σ'' . On a donc uniquement représenté sur la figure 4.35 les variations relatives correspondant aux trois autres triplets d'expériences.

Le premier constat que l'on peut faire est que les conductivités en quadrature mesurées subissent systématiquement des variations plus élevées que les conductivités en phase, et ce quelles que soient les expériences.

Le paramètre conductivité en phase σ' évolue très faiblement immédiatement après l'injection. La variation maximale, de l'ordre de 4%, est observée pour l'expérience E4. Pour la majorité des autres expériences la variation est quasi-nulle (< 1%). La conductivité en quadrature σ'' présente des variations plus marquées : entre 6% et 10% pour le système Fontainebleau / N₂ (graphique a), entre 1% et 4% pour le système Carbonates / N₂ (graphique b) et entre 7% et 14% pour le système Fontainebleau / CO₂ (graphique a). Les variations du système Carbonates / N₂ sont sensiblement plus faibles. Ceci peut s'expliquer en partie en comparant les quantités de gaz piégé dans le milieu (i.e., l'augmentation du niveau d'eau) au moment de la mesure (tableau 4.16).

Fontainebleau / N_2		Carbon	nates / N_2	Fontainebleau / CO_2	
Expérience	Augmentation	Expérience	Augmentation	Expérience	Augmentation
E1	$1 \mathrm{mm}$	E7	$1 \mathrm{mm}$	E4	$2 \mathrm{mm}$
${ m E2}$	$2 \mathrm{mm}$	E8	$1 \mathrm{mm}$	E5	$1 \mathrm{mm}$
E3	$2\mathrm{mm}$	E9	$1 \mathrm{mm}$	E6	$1,5 \mathrm{mm}$

TABLE 4.16 – Augmentation du niveau d'eau, en mm, pour chacune des 9 expériences, au moment de la première mesure après le début de l'injection.

Comme nous en avons discuté précédemment, l'azote circule plus lentement dans le sable carbonaté que dans le sable de Fontainebleau, et met davantage de temps à établir une distribution de saturations stable. Au moment où l'on effectue la première mesure après le début de l'injection, la quantité de gaz piégé dans le milieu est donc plus faible (1 mm pour les trois



 $\label{eq:FIGURE 4.35} FIGURE 4.35 - Représentation de l'amplitude des chutes de désaturation observées immédiatement après l'injection de gaz en fonction de la conductivité initiale de l'eau saturante. Variations relatives à l'état initial pré-injection. a) Système sable de Fontainebleau / N_2. b) Sable carbonaté / N_2. c) sable de Fontainebleau / CO_2.$

expériences, contre 1,5 - 2 mm pour les autres expériences avec le sable de Fontainebleau). Cette explication joue probablement un rôle dans les différences observées, mais n'est cependant pas totalement satisfaisante. En effet, pour les expériences E1 et E7 (salinité de l'eau initiale identique), le niveau de saturation en gaz est le même au moment de la mesure (4.16), mais l'expérience E1 présente néanmoins des variations deux fois plus élevées ($\approx 10\%$) que l'expérience E7 ($\approx 4\%$).

On note également que pour les expériences impliquant du sable de Fontainebleau (graphique a) et c) de la figure 4.35), l'amplitude des variations de la conductivité en quadrature décroît lorsque la salinité du fluide augmente. On peut difficilement faire cette observation pour la conductivité en phase puisque les amplitudes de variation sont très faibles. On notera tout de même que les plus fortes variations de σ' sont observées pour l'expérience E4 (graphique c) de la figure 4.35), pour laquelle la salinité du fluide est la plus faible (150 μ S.cm⁻¹). Dans le cas du système Carbonates/N₂ (graphique b)), cette relation à la salinité n'est pas observée.

Chute de désaturation après stabilisation

La stabilisation des mesures ne concerne pas les expériences où l'on injecte du CO_2 puisque l'accroissement de dissolution ne permet pas l'observation d'un palier de stabilisation. On s'intéresse uniquement aux expériences impliquant l'injection de diazote. On observe en premier lieu que la conductivité en quadrature montre systématiquement des variations supérieures à celles de la conductivité en phase (figure 4.36).



FIGURE 4.36 – Représentation de l'amplitude des chutes de désaturation observées immédiatement après l'injection de gaz en fonction de la conductivité initiale de l'eau saturante. Variations relatives à l'état initial pré-injection. a) Système sable de Fontainebleau / N₂. b) Sable carbonaté / N₂.

Le tableau 4.17 rassemble les valeurs d'augmentation du niveau d'eau observée pour chaque expérience au moment ou les mesures sont stabilisées.

Fontainebleau / N_2			Carbonates / N_2		
	Expérience	Augmentation (mm)	Expérience	Augmentation (mm)	
	E1	2	${ m E7}$	3	
	E2	2	$\mathbf{E8}$	2,5	
	E3	2	${ m E9}$	2	

TABLE 4.17 – Augmentation du niveau d'eau, pour chacune des expériences impliquant l'injection de diazote (E1, E2, E3, E7, E8 et E9) au moment où les mesures semblent stabilisées.

Pour le couple Fontainebleau/N₂, la quantité de gaz piégée dans le milieu au moment de la mesure est *a priori* la même. On observe alors que l'amplitude des variations de σ'' diminue lorsque la conductivité initiale du fluide augmente. Cette tendance n'est toujours pas observée pour le couple carbonates/N₂. Au contraire, les variations les plus élevées (de σ' et de σ'') sont observées pour l'expérience E9, qui présente la salinité la plus élevée ($\sigma_f = 1000 \ \mu S.cm^{-1}$)

Une seconde observation intéressante concerne les variations de la conductivité en phase σ' . Leur amplitude n'évolue pas pour le couple Fontainebleau/N₂, alors que pour le couple Carbonates/N₂, on observe après stabilisation des amplitudes de variation plus marquées, assez proches des variations de la conductivité en quadrature σ'' . La conductivité en phase est davantage impactée par l'injection de gaz dans le cas du sable carbonaté que dans le cas du sable de Fontainebleau. Cette observation est flagrante si l'on compare les expériences E3 et E9, qui présentent une saturation en gaz identique (augmentation du niveau d'eau de 2 mm) et la même salinité initiale de l'eau saturante. Pourtant, σ' n'évolue quasiment pas dans le cas de l'expérience E3 alors qu'elle présente des variations de l'ordre de 8% dans le cas de l'expérience E9.

Ainsi, bien que les tendances d'évolution des paramètres PPS soient similaires pour le système Fontainebleau/ N₂ et carbonates/N₂, à savoir que l'injection de N₂ induit une diminution de σ' et σ'' , l'amplitude des variations observées n'évolue pas de la même façon pour les deux systèmes. Cette différence est donc probablement à relier à la nature du sable utilisé.

Accroissement de dissolution

On rappelle que pour l'accroissement de dissolution nous avons choisi de calculer pour chaque expérience la variation relative sur une période de 100 minutes à partir du début de la courbe d'augmentation. Cette limite de 100 minutes permet de s'affranchir des éventuels effets dus à l'augmentation du débit d'injection, qui, pour les expériences avec le sable de Fontainebleau, survient aux alentours de t = 150 min. Les valeurs obtenues pour les expériences concernées sont représentées sur la figure 4.37.



FIGURE 4.37 – Représentation de l'amplitude de l'accroissement de dissolution observé lors des expériences impliquant l'injection de CO₂ en fonction de la conductivité initiale de l'eau saturante. Variations relatives à l'état initial pré-injection. a) Système sable de Fontainebleau / CO₂. b) Sable carbonaté / CO₂.

On observe à nouveau des variations systématiquement plus élevées pour la conductivité en

quadrature σ'' que pour la conductivité en phase σ' . Les variations relatives sont plus élevées pour le système carbonates/CO₂, particulièrement réactif chimiquement. L'amplitude de variation des paramètres PPS σ'' et σ' montrent clairement une dépendance avec la conductivité initiale de l'eau saturante. Elle décroit de façon quasi-linéaire lorsque la salinité initiale de l'eau augmente.

Résumé des observations

Dans cette partie, nous avons décrit l'amplitude des variations de la conductivité en phase et en quadrature mesurées à une fréquence f = 12 kHz. Il convient de rappeler que ces observations sont visibles sur l'ensemble de la gamme des hautes fréquences (f > 100 Hz). L'observation principale concerne le fait que les variations de la conductivité en quadrature σ'' sont toujours plus élevées que celles de la conductivité en phase σ' . Les propriétés capacitives du milieu sont davantage affectées par l'injection de gaz que les propriétés de conduction ohmique. Ensuite, l'amplitude de ces variations semble montrer une dépendance vis-à-vis de certains paramètres expérimentaux.

1. Chute de désaturation :

- Lorsque le milieu granulaire est le sable de Fontainebleau, l'amplitude des variations de σ'' induites par la désaturation du milieu semble décroître lorsque la salinité initiale du fluide augmente. Si le milieu granulaire est le sable carbonaté, cette tendance n'est pas observable.

- Lorsque la salinité initiale de l'eau saturante est élevée (e.g., expérience E9 et E3), le paramètre conductivité en phase σ' présente des variations supérieures dans le cas du sable carbonaté par rapport au cas du sable de Fontainebleau, où elles sont quasi nulles.

2. Accroissement de dissolution :

- L'amplitude de l'accroissement de dissolution diminue lorsque la salinité du fluide augmente, de façon quasi-linéaire.

2.3.6 Conclusions sur les résultats des mesures aux hautes fréquences

En observant en détail l'évolution temporelle des paramètres PPS σ' et σ'' au cours de nos expériences, nous avons pu dissocier au sein des tendances observées celles induites par les processus de désaturation du milieu de celles conséquentes aux phénomènes de dissolution. Les premières se traduisent par une diminution des paramètres σ' et σ'' et les secondes par une augmentation. Ces considérations ont été validées par le suivi de la quantité de gaz piégée dans le milieu d'une part, et le suivi d'observables chimiques d'autre part à travers des mesures en chromatographie ionique et conductimétriques.

Ces observations ont également révélé que la partie imaginaire de la conductivité complexe, σ'' , est systématiquement le paramètre le plus affecté par les modifications physico-chimiques survenant dans nos milieux d'études. Ainsi, dans cette gamme de fréquences (f > 500 Hz), la technique de polarisation provoquée spectrale semble présenter une capacité remarquable à détecter des transferts de gaz dans un milieu granulaire non consolidé saturé en eau, par rapport à la technique "classique" de mesure de la résistivité électrique.

Nous avons également observé diverses tendances, qui suggèrent des relations entre l'ampleur et l'évolution des variations des paramètres PPS avec certains paramètres expérimentaux, tels que la salinité de l'eau saturante et la nature du milieu granulaire.

2.4 Etude de la transition entre la réponse PPS "moyennes fréquences" et "hautes fréquences"

2.4.1 Rupture de pente dans le spectre fréquentiel

En section 2.1, nous avons décrit en détail la forme des spectres de conductivité en quadrature et en phase de l'état pré-injection de nos expériences. Une rupture de pente marque la distinction entre la réponse haute fréquence du système (f > 100 Hz), pour laquelle on observe l'évolution la plus marquée des paramètre PPS au cours de l'expérience, et la réponse basse fréquence, pour laquelle l'évolution des paramètres est moins marquée, et le rapport signal sur bruit plus mauvais (figure 4.38).



FIGURE 4.38 – Spectre fréquentiel de la conductivité en quadrature mesuré dans la gamme de fréquences [0,05 Hz - 20 k Hz] pour le sable de Fontainebleau et le sable carbonaté totalement saturés en eau de conductivité $\sigma_f = 400 \ \mu \text{S.cm}^{-1}$, avant l'injection de gaz. La rupture de pente se produit aux alentours de la fréquence $f_{Font} \approx 300 \text{ Hz}$ pour le sable de Fontainebleau, et $f_{carb} \approx 60 \text{ Hz}$ pour le sable carbonaté.

2.4.2 Transition fréquentielle des variations - Dissolution

Cette transition dans la réponse PPS peut également être identifiée si l'on étudie et compare l'amplitude de variation des paramètres PPS au cours des expériences, en fonction de la fréquence de mesure. Sur la figure 4.39, on peut observer, pour chaque fréquence de la gamme [2 Hz - 20 kHz], l'évolution des variations relatives à l'état initial de la conductivité en quadrature σ'' , au cours de l'expérience E11 (sable carbonaté / injection de CO₂ / $\sigma_f = 400 \ \mu \text{S.cm}^{-1}$). On calcule, pour chaque mesure effectuée au cours du temps, le pourcentage de variation du paramètre PPS en question par rapport à sa valeur mesurée à l'état initial.

$$\Delta X_{\% init} = \frac{|X_{t_i} - X_{t_0}|}{X_{t_0}} * 100 \tag{4.16}$$

où X correspond au paramètre PPS mesuré, X_{t_i} sa valeur à l'instant t_i au cours de l'expérience, et X_{t_0} sa valeur mesurée à l'état initial (pré-injection).

Ces représentations graphiques sont riches en enseignements. Dans le cas de l'expérience E11, on observe notamment que le taux d'augmentation semble diminuer lorsque la fréquence diminue. En réalité, son comportement est légèrement plus complexe.

- Pour les fréquences inférieures ou égales à 23 Hz (courbes jaunes oranges et rouges) $\Delta \sigma''_{\% init}$ est à peu près stable. Une légère augmentation est observée après l'injection, puis les valeurs de σ'' n'évoluent plus ou très peu.
- Pour les fréquences supérieures à 23 Hz (courbes vertes et bleus), Δσ["]_{%init} augmente en continu au cours de l'expérience. Le taux d'augmentation (assimilable à la pente des courbe), à un instant t de l'expérience augmente quasi-linéairement avec la fréquence. Puis, en s'approchant des plus hautes fréquences, il n'augmente plus. Le taux d'augmentation de Δσ["]_{%init} semble avoir atteint un palier.

La figure 4.40 illustre ces tendances pour la mesure effectuée à l'état final de l'expérience $(t_i \approx 500 \text{ min})$. La forme de cette courbe montre bien le caractère transitoire de la dépendance fréquentielle des variations de la réponse PPS. On observe deux valeurs asymptotiques qui entourent une zone de transition centrée sur une fréquence que nous appellerons par la suite fréquence de rupture. En effet la fréquence en question correspond approximativement à la rupture de pente observée sur le spectre fréquentiel (figure 4.38). Ce type de courbe suggère donc l'existence de phénomènes de polarisation distincts entre les moyennes fréquences (1 Hz - 100 Hz) et les hautes fréquences (f > 1 kHz), et qui se produisent simultanément aux fréquences intermédiaires à ces deux gammes.

La rupture de pente observée sur le spectre fréquentiel de la figure 4.38 se situe au milieu de la courbe de transition. Ces observations mettent donc en relief une gamme de fréquences transitoire dans laquelle l'origine de la réponse PPS semble changer. La nature des phénomènes de polarisation qui interviennent aux moyennes fréquences et aux hautes fréquences est discutée plus en détail en section 3, lors de l'interprétation des résultats. Dans la suite nous ferons simplement référence aux "phénomènes de polarisation aux moyennes fréquences" et aux "phénomènes de polarisation aux hautes fréquences", pour évoquer chacun des domaines.



FIGURE 4.39 – Evolution temporelle des variations relatives à l'état initial de la conductivité en quadrature $(\Delta \sigma''_{\% init})$, au cours de l'expérience E11, pour chaque fréquence de la gamme 2 Hz - 20 kHz. Les couleurs des points évoluent selon la fréquence en question, des couleurs froides (fréquences élevées) vers les couleurs chaudes (fréquences basses).



FIGURE 4.40 – Représentation de la dépendance fréquentielle des variations relatives à l'état initial pour l'expérience E11. Cas de la dernière mesure, effectuée au temps $t \approx 500$ min. Les barres grises soulignent la forme globale de la courbe, notamment les asymptotes aux basses et hautes fréquences.

2.4.3 Apport du déphasage dans l'étude de la zone de transition

Si l'on observe maintenant les variations relatives à l'état initial du paramètre phase ϕ (figure 4.41), toujours pour l'expérience E11, on note une répartition des courbes liées à chaque fréquence autour de l'axe des abcisses. Pour les fréquence 93 Hz et 187 Hz les variations sont quasiment nulles tout au long de l'expérience. Pour des fréquences supérieures la phase augmente et pour des fréquences inférieures elle diminue.



FIGURE 4.41 – Evolution temporelle des variations relatives à l'état initial de la phase ϕ , au cours de l'expérience E11, pour chaque fréquence de la gamme 2 Hz - 20 kHz. Les couleurs des points évoluent selon la fréquence en question, des couleurs froides (fréquences élevées) vers les couleurs chaudes (fréquences basses). On observe une répartition quasi-symétrique des courbes autour de l'axe des abscisses.

La phase permet de quantifier le rapport des phénomènes de polarisation et de conduction ohmique. Elle est reliée aux conductivités en phase et en quadrature par la relation :

$$\tan(\phi) = \frac{\sigma''}{\sigma'} \tag{4.17}$$

Si l'on considère l'angle de déphasage suffisamment petit on peut raisonner selon l'approximation suivante :

$$\phi \approx \frac{\sigma^{''}}{\sigma^{'}} \tag{4.18}$$

Au cours de l'expérience E11, les processus de dissolution entraînent une augmentation de la conductivité en phase σ' . Cette augmentation est cependant quasiment indépendante de la fréquence (c.f. figure 4.25 p.221).

La phase étant assimilable au rapport entre conductivité en quadrature et conductivité en phase, si elle n'évolue pas au cours de l'expérience (comme par exemple pour les fréquences

93 Hz et 187 Hz), cela signifie nécessairement que σ' et σ'' augmentent tous les deux, dans des proportions comparables. Si la phase augmente, comme c'est le cas ici pour les fréquences supérieures à 187 Hz, cela implique que σ'' est le terme dominant et que les phénomènes de polarisation sont davantage impactés par les changements physico-chimiques survenant dans le milieu. A contrario, si la phase diminue, comme c'est le cas pour les plus faibles fréquences, le terme dominant est σ' , et ce sont les variations des propriétés de conduction ohmique qui rendent le mieux compte des modifications du milieu. Ces observations mettent en évidence le fait que, pour ce cas, et surtout selon la fréquence de mesure, le suivi des paramètres "classiques" de conduction ohmique (assimilable à la résistivité du milieu) peut apporter davantage d'informations sur les phénomènes étudiés que le terme de polarisation. En l'occurrence ici, aux moyennes fréquences (1 Hz < f < 100 Hz), la circulation du CO₂ sera détectée plus efficacement par le suivi des paramètres liés à la conduction ohmique du milieu que par l'étude des paramètres de polarisation.

2.4.4 Transition fréquentielle des variations - Dissolution et désaturation.

Observons maintenant l'évolution temporelle de $\Delta \sigma_{\% init}''$ lors de l'expérience E5 (sable de Fontainebleau / injection de CO₂ / $\sigma_f = 400 \ \mu \text{S.cm}^{-1}$) pour chaque fréquence de la gamme [2 Hz - 20 kHz] (figure 4.42).



FIGURE 4.42 – Evolution temporelle des variations relatives à l'état initial de la conductivité en quadrature, au cours de l'expérience E5, pour chaque fréquence de la gamme 2 Hz - 20 kHz. Les couleurs des points évoluent selon la fréquence en question, des couleurs froides (fréquences élevées) vers les couleurs chaudes (fréquences faibles). Les cadres noirs entourent les acquisitions effectuées immédiatement après le début de l'injection et à la fin de l'expérience, dont on a représenté la dépendance fréquentielle à la figure 4.43.

Ainsi que nous l'avons vu précédemment, la réponse en conductivité en quadrature à haute fréquence diminue directement après le début de l'injection de gaz (chute de désaturation), puis augmente continuellement dans la suite de l'expérience (dissolution du CO_2 - accroissement de dissolution). Ce comportement est clairement visible si l'on observe les courbes "hautes fréquences" (courbes bleues) de la figure 4.42.

Pour les fréquences les plus basses (courbes oranges et jaunes) ce comportement n'est plus visible. La désaturation induite par l'injection de gaz n'a aucun impact sur les valeurs de σ'' (on n'observe pas de chute de désaturation). Les processus de dissolution du CO₂ entraînent eux une diminution de la conductivité en quadrature σ'' , et non une augmentation.

Dans l'intervalle entre les deux domaines fréquentiels, la conductivité en quadrature évolue de façon transitoire. On a représenté sur la figure 4.43 l'évolution du taux de variation de $\Delta \sigma''_{\% init}$ en fonction de la fréquence pour le point correspondant aux chutes de désaturation à hautes fréquences, et pour le point correspondant à l'état final de l'expérience (dernier point de mesure). La forme des courbes rappelle à nouveau un comportement transitoire centré sur une fréquence, qui semble dans le cas présent être aux alentours de $f \approx 300$ Hz. Aux fréquences extrêmes la conductivité en quadrature évolue dans les mêmes proportions au cours de l'expérience, on est sorti de la zone de transition, elle n'est plus dominée que par les phénomènes de polarisation propres à chaque gamme de fréquences.



FIGURE 4.43 – Représentation de la dépendance fréquentielle des variations relatives à l'état initial. a) Dépendance fréquentielle des chutes de désaturation. L'acquisition a été effectuée quelques minutes après le début de l'injection ($t \approx 15$ min). b) Dépendance fréquentielle de l'accroissement de dissolution. Acquisition à l'état final de l'expérience ($t \approx 270$ min).

Remarque: Dans le cas de l'expérience E5, l'étude du déphasage n'apporte pas foncièrement d'informations supplémentaires sur les processus physico-chimiques en cours. De fait, dans toute la gamme de fréquences le paramètre phase ($\phi = \frac{\sigma^{''}}{\sigma^{'}}$) est dominé par le terme de polarisation $\sigma^{''}$, et présente donc des formes et des amplitudes similaires aux courbes observées sur la figure 4.42.

2.4.5 Transition fréquentielle des variations - Chutes de désaturation.

Au cours des expériences E1 (Fontainebleau / N₂ / $\sigma_f = 150 \ \mu S.cm^{-1}$) et E9 (Carbonates / N₂ / $\sigma_f = 1000 \ \mu S.cm^{-1}$), seules les chutes de désaturation associées à la diminution du niveau de saturaiton en eau du milieu entraînent des modifications de la réponse PPS.

Expérience E1 : La figure 4.44 rassemble le graphique de l'évolution temporelle de $\Delta \sigma''_{\% nit}$ pour chaque fréquence de la gamme [2 Hz - 20 kHz], et le graphique de la transition fréquentielle du dernier point de mesure, à l'état final de l'expérience. A cet instant, l'injection de gaz est coupée depuis environ 1 h, le système est stable et une partie du gaz injecté est toujours piégée dans le milieu.



FIGURE 4.44 – a) Evolution temporelle des variations relatives à l'état initial de la conductivité en quadrature, au cours de l'expérience E1, pour chaque fréquence de la gamme 2 Hz - 20 kHz. Les variations sont quasiment nulles aux moyennes fréquences. b) Dépendance fréquentielle des variations relatives correspondant à l'acquisition finale ($t \approx 120$ min). La forme transitoire est à nouveau observée. Les couleurs des points évoluent selon la fréquence correspondante, des couleurs froides (hautes fréquences) vers les couleurs chaudes (moyennes fréquences).

Sur le graphique a), on observe que la désaturation du milieu n'a d'effet que sur la réponse haute fréquence de la conductivité en quadrature. Pour les moyennes fréquences les variations sont nulles, signe que les phénomènes de polarisation à basse fréquence ne sont pas affectés par la présence de N₂ dans le milieu. Sur le graphique b), on observe à nouveau un comportement transitoire centré sur une fréquence de rupture aux alentours de f = 300 Hz.

Expérience E9 : La figure 4.45 présente le graphique de l'évolution temporelle de $\Delta \sigma''_{\% init}$, pour une gamme de fréquences légèrement réduite par rapport aux autres expériences : [22 Hz - 20 kHz].

Pour des fréquences supérieures à 300 Hz les variations de $\Delta \sigma_{\% init}^{''}$ sont quasiment identiques. La transition entre le domaine de polarisation haute fréquence et le domaine moyenne fréquence



FIGURE 4.45 - a) Evolution temporelle des variations relatives à l'état initial de la conductivité en quadrature, au cours de l'expérience E9, pour chaque fréquence de la gamme 22 Hz - 20 kHz. Les variations sont complètement désordonnées lorsque la fréquence est inférieure à 300 Hz.

n'est pas visible sur ce graphique. En effet, lorsque l'on diminue la fréquence, les variations de σ'' deviennent désordonnées, elles ne présentent pas de tendance temporelle claire. Ceci est lié au fait que les valeurs effectives de σ'' sont très faibles vers les moyennes fréquences (de l'ordre de 10^{-6}), conséquence de la faible conductivité de surface des carbonates. Une variation minime, potentiellement du même ordre de grandeur que l'erreur sur la mesure, donne lieu à des pourcentages de variation relatifs élevés. En réalité, comme dans le cas du sable de Fontainebleau, l'injection d'azote dans le sable carbonaté n'a simplement pas d'impact sur la conductivité de surface effective du milieu (figure 4.46). Lorsque les valeurs de σ'' deviennent trop faibles, les variations mesurées sont à mettre au compte du trop faible rapport signal sur bruit.

2.4.6 Résumé des observations

L'étude de l'évolution des variations des paramètres PPS, et particulièrement de la conductivité en quadrature, nous a permis d'identifier un intervalle de fréquences de transition au sein duquel la réponse PPS semble régie par deux phénomènes de polarisation distincts. Dans la partie basse de cet intervalle, la réponse PPS est contrôlée par un (ou des) phénomène(s) de polarisation spécifique(s). Lorsque la fréquence augmente, une autre contribution vient s'ajouter à la réponse globale, dont les effets finissent par être prépondérants au fur et à mesure que la fréquence augmente. Ce comportement transitoire est particulièrement visible si l'on observe les graphiques de dépendance fréquentielle des variations, pour lesquels la fréquence de rupture semble se situer aux alentours de f = 300 Hz pour toutes les expériences pour lesquelles cette transition est observable. L'étude du paramètre phase ϕ nous a également permis de distinguer, dans certains cas, lesquelles des propriétés de conduction ohmique ou de polarisation sont



FIGURE 4.46 – Evolution temporelle de la conductivité en quadrature au cours de l'expérience E9, pour la fréquence f = 187 Hz. Les variations observées sont largement comprises dans les barres d'erreur calculées par l'appareil.

les plus impactées par les changements physico-chimiques survenant dans le milieu, selon la fréquence de la mesure.

Des observations intéressantes ont également été faites en étudiant l'expérience E5 (N.B. les expériences E4 et E6 donnent lieu aux mêmes types d'observations). La dissolution du CO₂ a des conséquences différentes sur l'évolution des valeurs de la conductivité en quadrature, selon la nature des phénomènes de polarisation qui prédominent (et donc selon la fréquence de mesure). Aux hautes fréquences (f > 1 kHz), les phénomènes de dissolution entraînent une augmentation des valeurs de σ'' . Aux moyennes fréquences (1 Hz – 100 Hz), l'effet inverse est observé, les valeurs diminuent au cours de l'expérience. Finalement, un même phénomène physico-chimique (en l'occurrence la dissolution du CO₂) entraîne donc des réponses opposées selon la fréquence, c'est-à-dire, selon la nature des phénomènes de polarisation qui régissent la réponse PPS. Cette observation est particulièrement intéressante car elle suggère l'existence d'une signature PPS spécifique à un transfert de CO₂ dans un milieu granulaire saturé en eau, i.e., caractérisée par des variations de sens opposé selon la gamme de fréquence.

Il est important de préciser que l'ensemble des variations observées au cours de ces expériences dans la gamme des hautes fréquences ont nécessairement une origine physique, liée à l'évolution du milieu d'étude. Pour des fréquences si élevées, des phénomènes inductifs tels que le couplage EM entre les câbles d'injection et de mesure sont souvent évoqués pour expliquer les observations. Dans notre cas, nous avons travaillé à limiter ces effets par l'utilisation de câbles coaxiaux BNC. Cependant, quels que soient les phénomènes inductifs liés au dispositif d'acquisition qui se produisent, leur intensité est constante au cours des expériences car nous avons systématiquement utilisé un dispositif d'acquisition (appareil, électrodes, position des câbles) strictement identique entre chaque expérience. Il en résulte que les variations observées
aux hautes fréquences au cours de ces expériences sont bien induites par des modifications significatives des caractéristiques physico-chimiques de nos milieux d'étude.

2.5 Conclusions

En premier lieu, cette campagne d'expériences a mis en évidence le fait que la technique de polarisation provoquée spectrale présente un intérêt notable pour le suivi et la détection de transferts de CO₂ dans un milieu granulaire non consolidé saturé en eau. En effet, les propriétés capacitives de nos milieux d'études sont particulièrement affectées par l'injection de CO₂ dans la gamme des hautes fréquences (f > 1 kHz).

Grâce aux différentes expériences réalisées, nous sommes parvenus à distinguer les variations induites par la désaturation du milieu de celles provoquées par les phénomènes de dissolution du gaz et l'accroissement de la conductivité électrique du fluide saturant.

En termes de variations relatives, la partie imaginaire de la conductivité complexe σ'' est systématiquement plus affectée par l'injection de gaz que la partie réelle σ' . Les propriétés capacitives du milieu sont davantage sensibles aux modification physico-chimiques induites par l'injection de CO₂ que les propriétés de conduction ohmique. L'amplitude des variations observées semble corrélée aux paramètres expérimentaux tels que la salinité initiale du fluide ou la nature du milieu granulaire étudié.

En étudiant de façon plus approfondie la dépendance fréquentielle des variations de la réponse PPS, nous avons identifié un domaine de transition au cours duquel le phénomène de polarisation prédominant change. Certains phénomènes de polarisation semblent dominer la réponse PPS aux moyennes fréquences (1 Hz - 100 Hz). Aux hautes fréquences (> 1 kHz) la réponse PPS est dominée par des phénomènes de polarisation de nature distincte. Dans l'intervalle, les deux types de phénomènes sont présents conjointement, et leurs poids respectifs dans la réponse PPS totale dépend directement de la fréquence de mesure.

3 Interprétation - Modélisation - Discussions

Dans cette partie nous présentons en premier lieu des éléments d'interprétations phénoménologiques pour expliquer les résultats observés aux moyennes fréquences, c'est-à-dire dans la gamme [1 Hz - 100 Hz]. Dans un second temps, nous exposons le développement et les résultats de travaux de modélisation qui ont pour objectif de reproduire les réponses PPS observées lors de la campagne expérimentale. Enfin, à partir de ces résultats, nous proposons des éléments d'explications pour interpréter la forme, l'amplitude, et l'origine des variations de conductivité en quadrature observées au cours de nos expériences, dans la gamme des hautes fréquences (f > 100 Hz).

3.1 Interprétation des résultats aux moyennes fréquences

Sur la figure 4.22 (c.f. section 2.1, page 213), nous avons pu observer que les valeurs de conductivité en quadrature σ'' mesurées dans la gamme des moyennes fréquences (1 Hz – 100 Hz) sur le sable carbonaté sont inférieures de quasiment un ordre de grandeur à celles mesurées sur le sable de Fontainebleau.

3.1.1 Conductivité complexe aux moyennes fréquences

Vinegar and Waxman (1984) ont développé un modèle permettant de décrire la réponse en PPS de sables argileux pour des fréquences inférieures à 1 kHz. Ce modèle suppose que la conductivité complexe résulte de l'addition en parallèle d'une contribution liée à la conduction électrolytique ("bulk conductivity" dans la littérature) et d'une contribution σ^*_{surf} , liée aux mécanismes de conduction et de polarisation qui se produisent à la surface des minéraux (conductivité de surface complexe).

Avec cette approche, le milieu d'étude peut être représenté par un circuit électrique équivalent (figure 4.47) dont la réponse en conductivité complexe s'écrit (Lesmes and Frye, 2001) :

$$\sigma^* = (\sigma_{bulk} + i\omega\kappa_{\infty}\varepsilon_0) + \left[\sigma'_{surf}(\omega) + i\sigma''_{surf}(\omega)\right]$$
(4.19)

où σ_{bulk} représente la conductivité électrolytique aux moyennes fréquences (< 1 kHz) et κ_{∞} la constante diélectrique aux hautes fréquences, ϵ_0 est la permittivité diélectrique du vide, ω la fréquence angulaire, et σ'_{surf} et σ''_{surf} sont les parties réelle et imaginaire de la conductivité de surface complexe.



FIGURE 4.47 – Circuit électrique équivalent pour le modèle de Vinegar and Waxman (1984). Modifié d'après Lesmes and Frye (2001).

La grandeur σ_{bulk} correspond à la conductivité du milieu que l'on aurait mesurée en courant continu, qui, d'après la première loi d'Archie, est reliée au facteur de formation F et à la conductivité du fluide poral σ_f par la relation :

$$\sigma_{bulk} = \frac{\sigma_f}{F}$$

Par ailleurs, pour des fréquences inférieures à 1 kHz, le terme $\omega \kappa_{\infty} \varepsilon_0$ est négligeable devant σ_{bulk} . On peut alors écrire l'équation 4.19 sous la forme :

$$\sigma^* = \left[\frac{\sigma_f}{F} + \sigma'_{surf}(\omega)\right] + i\sigma''_{surf}(\omega)$$
(4.20)

En se basant sur le modèle de Vinegar and Waxman (1984) ainsi défini, nous pouvons proposer des éléments d'interprétation pour expliquer les différentes réponses PPS observées à l'état initial pour le sable de Fontainebleau et le sable carbonaté (c.f. figure 4.22) :

1. Partie réelle de la conductivité complexe : la dépendance fréquentielle des spectres de σ' est plus marquée pour le sable de Fontainebleau que pour le sable carbonaté. Or d'après l'équation 4.20, c'est le terme $\sigma'_{surf}(\omega)$, lié à la conductivité de surface des minéraux, qui contrôle le comportement fréquentiel, puisque les autres paramètres (σ_f et F) sont indépendants de la fréquence. Ce raisonnement implique que le sable de Fontainebleau présente une conductivité de surface plus importante que le sable carbonaté.

2. Conductivité en quadrature : cette hypothèse est concordante avec les différences observées sur les spectres de conductivité en quadrature. D'après l'équation 4.20, la partie imaginaire de la conductivité complexe dépend uniquement du terme $\sigma''_{surf}(\omega)$, et donc de la conductivité de surface du milieu. D'après le modèle, les différences de conductivité en quadrature observées sur la figure 4.22 impliquent donc également que le sable de Fontainebleau présente une conductivité de surface supérieure à celle du sable carbonaté.

3.1.2 Discussion sur les propriétés électriques de surface du sable carbonaté et du sable de Fontainebleau

Il existe à notre connaissance peu d'études décrivant le comportement en polarisation provoquée de la calcite pour nous permettre d'appuyer cette interprétation. On peut tout de même citer les travaux de Wu et al. (2008, 2009, 2010) qui étudient selon plusieurs angles d'approche l'évolution des paramètres PPS lors de la précipitation de calcite. Wu et al. (2008) montrent notamment que la précipitation de calcite inhibe fortement la réponse PPS de milieux où sont présents des oxydes de fer, malgré le fait que les carbonates précipités participent grandement à augmenter la surface spécifique totale du milieu. Ils mettent ainsi en évidence les faibles propriétés polarisantes des carbonates. Toutefois, cette étude propose une comparaison avec des oxydes de fer, qui sont des minéraux métalliques conducteurs, et donc fortement polarisants. Nous n'avons pas trouvé d'études spécifiquement orientées dans le domaine de la polarisation provoquée qui nous permettent d'appuyer l'hypothèse de propriétés surfaciques différentes entre carbonates et silice. Des pistes probantes peuvent toutefois être avancées si l'on se réfère à la littérature qui concerne le potentiel Zeta apparent (ζ) des minéraux immergés dans un électrolyte. Par exemple, Guichet et al. (2006) observent que le potentiel de surface ζ apparent de sables siliceux diminue significativement lorsqu'une phase minérale secondaire de calcite précipite à la surface des grains.

Le potentiel ζ reflète l'amplitude de la charge de surface d'un minéral associée à la double couche électrique qui se forme lorsque celui-ci est immergé dans un électrolyte. L'amplitude du potentiel Zeta est en partie régie par le pH de l'électrolyte. Pour un minéral donné, il existe une valeur de pH pour laquelle le potentiel Zeta devient nul, conséquence du fait que la double couche électrique est alors composée d'autant de charges positives que de charges négatives et présente donc une charge de surface nette nulle. Cette valeur correspond à ce qu'on appelle le *point isoélectrique*. De part et d'autre du point iso-électrique le potentiel Zeta est généralement de signe opposé. Un autre paramètre qui contrôle l'amplitude du potentiel Zeta est la concentration ionique de l'électrolyte. Pour la silice immergée dans un électrolyte salin (NaCl) à pH neutre, le potentiel Zeta décroit quand la salinité augmente (e.g. Morgan et al., 1989; Revil et al., 1999).

À l'état initial des expériences avec le sable de Fontainebleau, le pH mesuré sur des prélèvements d'eau saturante est de l'ordre de 8, et ce pour les trois paliers de conductivité. Les 3 paliers de conductivité de l'eau saturante que nous utilisons dans nos expériences correspondent à la gamme de concentrations ioniques $10^{-2} - 10^{-3}$ mol.L⁻¹.

Potentiel zeta de la silice : Júnior (2014) a étudié le comportement du potentiel Zeta apparent de particules de silice en suspensions dans un électrolyte monovalent (KCl dissout) de concentration [KCl]=0,02 mol.L⁻¹, en fonction du pH de l'électrolyte. Ils montrent ainsi que le point isoélectrique de la silice est atteint pour un pH de l'ordre de 2. À pH = 8, ils mesurent des valeurs de potentiel Zeta apparent de l'ordre de -25 mV ou supérieures (en valeur absolue) selon le type de silice étudié. Si l'on tient compte de la dépendance théorique à la concentration ionique de l'électrolyte, le potentiel Zeta apparent devrait présenter des valeurs encore plus élevées (en valeur absolue) pour les gammes de concentration correspondant à nos expériences.

Revil et al. (1999) mettent en évidence les travaux de Li and De Bruyn (1966) et Gaudin and Fuerstenau (1955) qui ont étudié l'évolution du potentiel Zeta apparent avec la concentration électrolytique, à pH neutre, pour des minéraux siliceux immergés dans des solution saline (NaCl dissout). Les résultats des deux études concordent, et dans la gamme de concentrations correspondant à nos expériences $(10^{-2} - 10^{-3} \text{ mol.L}^{-1})$ le potentiel Zeta apparent mesuré est compris entre -60 mV et -100 mV.

Enfin, Leroy et al. (2013) obtiennent à travers des travaux de modélisation une valeur identique du point isoélectrique pour des nanoparticules de silice amorphe en suspension dans des électrolytes salins (NaCl) de concentration $c_1 = 0, 1 \text{ mol.L}^{-1}, c_2 = 0, 01 \text{ mol.L}^{-1}$ et $c_3 = 0,001$ mol.L⁻¹. Pour un pH et une concentration en NaCl correspondant à celle de nos expériences ([NaCl] = c_3 et pH = 8), ils calculent des potentiels Zeta apparents de l'ordre de -120 mV. **Potentiel zeta de la calcite :** À l'état initial des expériences avec le sable carbonaté (après 24 h d'attente), le pH de l'eau saturante mesuré sur des prélèvements est compris entre 8,4 et 9 pour les trois paliers de conductivité. La gamme de concentrations ioniques de l'électrolyte est bien entendu la même que précédemment : $10^{-3} - 10^{-4}$ mol.L⁻¹.

Les propriétés électriques de surface de la calcite ont été beaucoup étudiées dans la littérature, mais des incertitudes semblent tout de même subsister (Guichet et al., 2006). Au moment où Van Cappellen et al. (1993) publient leurs travaux, les différentes valeurs du point isoélectrique proposées dans la littérature sont comprises dans l'intervalle de pH [7 - 10,8]. Ces différences sont généralement dues à la difficulté de connaître et de contrôler précisément l'état d'équilibre chimique de la calcite en solution.

Plus récemment, Heberling et al. (2011) ont étudié la dépendance du point isoélectrique de la calcite avec la pression partielle de CO₂ dans un gaz à l'équilibre un électrolyte salin (NaCl dissout) de concentration $c = 0.15 \text{ mol.L}^{-1}$. Pour un électrolyte à l'équilibre atmosphérique (nos conditions expérimentales, $P_{CO2} \approx 280 \text{ ppm}$), ils atteignent le point isoélectrique à pH = 8, 4.

Hiorth et al. (2010) modélisent l'évolution en fonction du pH du potentiel Zeta apparent de grains de calcite immergés dans une solution de NaCl de concentration $c = 0,005 \text{ mol.L}^{-1}$. Le pH est ajusté en faisant varier la pression partielle de CO₂. Leur modèle donne des valeurs de potentiel Zeta apparent comprises entre -5 et 5 mV pour un pH compris entre 8 et 9,5, accréditant l'hypothèse d'un point isoélectrique situé dans cette gamme de pH. Ils valident leur modèle en s'appuyant sur les résultats expérimentaux de Thompson and Pownall (1989) qui mesurent des valeurs similaires pour des grains de calcite immergés dans un électrolyte concentré à $c = 0,005 \text{ mol.L}^{-1}$ en NaCl et $c = 0,001 \text{ mol.L}^{-1}$ en NaHCO₃. Pour un électrolyte uniquement concentré en NaCl ($c = 0,005 \text{ mol.L}^{-1}$), Thompson and Pownall (1989) mesurent dans la gamme de pH 8–9 des valeurs de potentiel Zeta apparent comprises entre -15 mV et -20 mV.

Vdović (2001) étudie l'évolution du potentiel Zeta apparent de plusieurs sortes de calcite (naturelles ou synthétiques), en fonction du pH. L'électrolyte est une solution de NaCl de concentration c = 0.001 mol.L⁻¹, soit une concentration du même ordre de grandeur que celles des nos expériences. Ils observent des potentiels négatifs pour les échantillons de calcite d'origine naturelle, et positifs pour les échantillons d'origine synthétique. Au delà des différences de comportement observés selon l'origine du minéral, les potentiels Zeta apparents mesurés sont compris dans l'intervalle [-25 mV +20 mV] dans la gamme de pH [6,5 – 10].

Conclusions : L'ensemble des éléments issus de la littérature semble montrer que la calcite possède une charge électrique surfacique nette inférieure à celle de la silice. Pour les pH et concentrations ioniques correspondants aux états initiaux de nos expériences, les valeurs de potentiel Zeta apparent mesurées sont systématiquement plus élevées en valeur absolue pour la silice que pour la calcite. Notre hypothèse suggère qu'à l'état initial des expériences avec le sable carbonaté, le pH de l'électrolyte est très proche de point isoélectrique, et que la conductivité

de surface est en conséquence plus faible. Pour les expériences avec le sable de Fontainebleau, le pH de l'eau saturante à l'état initial (pH= 8) est davantage éloigné du point isoélectrique (pH_{iso} = 2), d'où un potentiel Zeta apparent et une charge surfacique plus élevés.

Ces observations accréditent notre hypothèse d'une conductivité de surface plus importante pour le sable de Fontainebleau. Des explications plus poussées peuvent probablement être trouvées à travers une étude comparative de la composition des doubles couches électriques propres à la silice et à la calcite (types de complexes formés, constantes de sorption-désorption, épaisseur de la couche de Stern, rôle de l'électrolyte saturant etc...). Nous n'avons malheureusement pas pu développer davantage nos recherches bibliographiques pour proposer au lecteur des éléments d'explications suffisamment probants pour être présentés ici.

3.1.3 Implication sur l'interprétation des résultats observés aux moyennes fréquences

Conduction ohmique vs polarisation

Au paragraphe 2.4.3 (page 245), nous avons étudié la transition fréquentielle des variations de conductivité en quadrature liées aux processus de dissolution, en nous intéressant particulièrement à l'expérience E11 (sable carbonaté - CO₂ - $\sigma_f = 400 \ \mu \text{S.cm}^{-1}$). Nous avons observé qu'aux moyennes fréquences (1 Hz < f < 100 Hz), le suivi des paramètres "classiques" de conduction ohmique (en l'occurrence σ') apporte davantage d'information sur les modifications physico-chimiques qui surviennent dans le milieu que le terme de polarisation σ'' .

A partir des considérations établies précédemment, nous pouvons suggérer que ce comportement est directement lié à l'ampleur de la conductivité de surface du milieu. Si l'on se réfère à nouveau au modèle de Vinegar and Waxman (1984), la conductivité complexe s'écrit, pour des fréquences inférieures à 1 kHz :

$$\sigma^* = \left[\frac{\sigma_f}{F} + \sigma'_{surf}(\omega)\right] + i\sigma''_{surf}(\omega)$$

Ainsi, la conductivité en quadrature, dans cette gamme de fréquences, est exclusivement contrôlée par l'ampleur de la conductivité de surface ($\sigma'' = \sigma''_{surf}$). Si cette dernière est initialement trop faible (comme c'est le cas pour le sable carbonaté), on peut difficilement attendre des variations significatives de σ'' . Dans ce cas, la conductivité en phase σ' , qui ne dépend pas simplement de la conductivité de surface, mais également de la conductivité de l'électrolyte saturant, est susceptible de montrer des variations plus marquées que σ'' .

Diminution de $\sigma^{''}$ aux moyennes fréquences.

Au paragraphe 2.4.4 (page 246), nous avons étudié la transition fréquentielle des variations de conductivité en quadrature liées aux processus de dissolution, dans le cas de l'expérience E5 (sable de Fontainebleau - CO_2 - $\sigma_f = 400 \ \mu S.cm^{-1}$). Nous avons alors observé deux comportements notables.

- Aux moyennes fréquences (1 Hz 100 Hz), nous n'observons pas de chute de désaturation immédiatement après le début de l'injection. Ceci implique que la diminution du niveau de saturation en eau (à un niveau de l'ordre de 0,98) n'a *a priori* pas d'impact sur la conductivité de surface effective du milieu.
- 2. Au fur et à mesure que le CO₂ se dissout dans le milieu, la conductivité en quadrature mesurée aux moyennes fréquences diminue nettement par rapport à l'état initial, alors que l'on observe l'effet inverse dans le cas de l'expérience E11 (c.f. figure 4.39). Cette observation est concordante avec l'hypothèse d'une conductivité en quadrature σ["] contrôlée par la conductivité de surface pour les fréquences les plus basses (σ["] ≈ σ["]_{surf}). En effet, les modèles de conductivité de surface développés par Revil and Glover (1998) et validés expérimentalement montrent que pour une conductivité électrolytique donnée, la conductance spécifique de surface du quartz diminue lorsque le pH de l'électrolyte diminue. Nous émettons l'hypothèse que la chute rapide du pH induite par la dissolution de CO₂ (tableau 4.11) est au moins partiellement responsable de la diminution de σ["] aux moyennes fréquences.

On peut également évoquer l'amplitude des effets de polarisation de membrane comme une autre cause possible de cette diminution de σ'' . En effet, il est démontré que les effets de polarisation de membrane diminuent lorsque la conductivité électrique augmente (e.g., Revil and Glover, 1997; Vanhala, 1997; Titov et al., 2002). Lorsque le CO₂ se dissout, la force ionique de l'eau saturante augmente, la longueur de Debye diminue, et avec elle l'amplitude des effets de polarisation de membrane. Bien que nous ne disposions pas de données nous permettant de quantifier précisément dans quelle mesure les effets de polarisation de membrane participent à la polarisation à basse fréquence dans les milieux que nous étudions, l'explication précédente mérite tout de même d'être proposée.

3.1.4 Conclusions

Nous avons déjà émis des hypothèses sur l'origine de la réponse PPS aux moyennes fréquences (1 Hz - 100 Hz). Nous estimons que la conductivité en quadrature de phase est contrôlée par la conductivité de surface effective du milieu. Nous avons supporté cette hypothèse en nous basant sur la littérature dans le domaine de la polarisation provoquée et dans le domaine de la polarisation spontanée. Ces considérations nous ont permis d'expliquer de façon cohérente certains comportements observés dans les mesures, en nous appuyant également sur l'évolution d'observables telles que le pH ou la conductivité de l'eau saturante. In fine, bien que les moyennes fréquences ne constituent pas dans notre cas le domaine pour lequel les mesures PPS présentent les variations les plus marquées, nous avons tout de même observé des comportements significatifs induits par l'injection de CO₂ dans nos milieux d'étude. En particulier, nous avons montré que le paramètre PPS (σ' ou σ'') le plus sensible à une injection de CO₂ n'est pas nécessairement le même selon l'ampleur de la conductivité de surface des minéraux qui composent le milieu.

3.2 Modélisation de la réponse PPS

Dans cette section nous présentons l'ensemble des travaux de modélisation que nous avons entrepris afin de reproduire les observations expérimentales. Nous développons en premier lieu les étapes qui ont composé la calibration du modèle mécanistique de Leroy et al. (2008) avec nos mesures. Ce modèle s'attache à reproduire la réponse PPS de milieux granulaires non consolidés, composés de grains parfaitement sphériques, dans une gamme de fréquences « large », i.e., entre 1 mHz et 10 kHz.

Dans un second temps, nous présentons un modèle empirique simple permettant de reproduire l'évolution de la conductivité en quadrature σ'' que nous avons observée aux hautes fréquences (f > 1 kHz) lors de nos expériences. Au sein de ce modèle, nous avons notamment développé des relations constitutives exprimant la dépendance de σ'' avec certains paramètres expérimentaux. Ce modèle empirique a été développé dans le but d'être couplé avec un code de simulation de transport réactif. Ce couplage nous a permis de travailler à prévoir la réponse PPS de milieux d'étude similaires aux nôtres, pour lesquels nous faisons varier certains paramètres expérimentaux.

3.2.1 Modèle mécanistique

3.2.1.1 Présentation du modèle TLM

Cette étape a consisté à évaluer la capacité d'un modèle mécanistique à reproduire les réponses PPS des états initiaux de nos expériences, c'est-à-dire avant l'injection de gaz. Nous avons effectué ce travail à l'aide d'un programme Matlab conçu par Philippe Leroy et Ahmad Ghorbani. Ce code permet de modéliser la réponse PPS d'une distribution de grains sphériques immergés dans un électrolyte, sur une gamme de fréquences allant du mHz au MHz. La polarisation électro-chimique associée à la double couche électrique est modélisée, ainsi que la polarisation Maxwell-Wagner, pour les plus hautes fréquences. Les équations implémentées dans le modèle et les bases théoriques associées sont détaillées dans Leroy et al. (2008). Des informations complémentaires concernant ces développement peuvent également être trouvées dans Revil and Florsch (2010) et Vaudelet et al. (2011).

Polarisation électrochimique

Le modèle développe une approche mécanistique pour décrire la polarisation électrochimique d'un grain de silice isolant de forme sphérique, enveloppé par une couche fixe d'électrolyte conducteur. La conductivité complexe d'une telle particule s'écrit (Leroy et al., 2008) :

$$\sigma_s^* = \sigma_s + i\omega\varepsilon_i \tag{4.21}$$

où σ_s est la conductivité électrique de la particule entourée de sa couche conductrice (en S.m⁻¹), ε_i la permittivité diélectrique interne de la particule (en F.m⁻¹) et ω la fréquence angulaire (en Hz).

La conductivité électrique de la particule σ_s peut s'exprimer en fonction de la conductivité spécifique de surface à basse fréquence de la particule Σ_S^0 , qui correspond à la conduction au sein de la couche diffuse, et de la contribution de la couche de Stern à hautes fréquences Σ_S^{∞} , selon l'expression :

$$\sigma_s = \frac{2}{a_0} \left(\Sigma_S^0 + \Sigma_S^\infty \right) - \frac{2}{a_0} \frac{\Sigma_S^\infty}{(1 + i\omega\tau_0)}$$
(4.22)

C'est donc une grandeur complexe, où a_0 correspond au rayon de la particule de silice (en m), et τ_0 est le temps de relaxation associé à la taille de la particule (Leroy et al., 2008).

$$\tau_0 = \frac{{a_0}^2}{2*D_{\rm Na^+}^S} \tag{4.23}$$

avec $D_{Na^+}^S$ le coefficient de diffusion des contres-ions dans la couche de Stern (en m².s⁻¹). Les paramètres Σ_S^0 et Σ_S^∞ sont reliées aux caractéristiques mécanistiques du milieu :

$$\Sigma_S^0 = e\beta_{\mathrm{Na}^+}^d \Gamma_{\mathrm{Na}^+}^d + \Sigma_S^0 \left(\mathrm{H}^+\right) \tag{4.24}$$

$$\Sigma_S^{\infty} = e\beta_{\mathrm{Na}^+}^S \Gamma_{\mathrm{Na}^+}^{S0} \tag{4.25}$$

où $\beta_{\text{Na}^+}^S$ est la mobilité tangentielle des ions Na⁺ dans la couche de Stern (en m².s⁻¹.V⁻¹) et $\beta_{\text{Na}^+}^d$ la mobilité tangentielle dans la couche diffuse, e est la charge électronique ($e = 1.602 \times 10^{-19}$ C), $\Gamma_{\text{Na}^+}^d$ la densité de surface de contre-ions Na⁺ adsorbés dans la couche diffuse, $\Gamma_{\text{Na}^+}^{S0}$ la densité de surface de contre-ions Na⁺ adsorbés dans la couche diffuse, $\Gamma_{\text{Na}^+}^S$ la densité de surface de contre-ions Na⁺ adsorbés dans la couche diffuse, $\Gamma_{\text{Na}^+}^S$ la densité de surface de contre-ions dans la couche de Stern, et Σ_S^0 (H⁺) la contribution à la conductivité de surface des protons adsorbés sur la surface de la particule (e.g., Revil and Glover, 1998).

Dans le cas d'un milieu granulaire caractérisé par une distribution de différentes tailles de grains, on calcule la conductivité complexe effective de l'ensemble en faisant le produit de convolution entre la fonction de distribution de tailles de grains f(a) (a étant le rayon de la particule) avec la conductivité complexe associée à chaque valeur de a:

$$\sigma_s^* = f(a) \otimes \sigma_s^*(a,\omega) \tag{4.26}$$

Pour implémenter cette approche, le modèle utilise une distribution de temps de relaxation de type Cole-Cole (Cole and Cole, 1941), selon laquelle la conductivité complexe effective d'un milieu s'écrit :

$$\sigma_s^* = \sigma_s^\infty + \frac{\sigma_s^0 - \sigma_s^\infty}{1 + (i\omega\tau_0)^\alpha} \tag{4.27}$$

où α est un exposant empirique compris entre 0 et 1. Les quantités σ_s^0 et σ_s^∞ sont des paramètres réels, correspondant respectivement à la conductivité de surface aux basses et hautes fréquences. En prenant $\alpha = 1$, ce qui est équivalent au cas d'une relaxation de Debye, et en faisant le lien avec l'expression de la conductivité électrique de la particule sous sa forme mécanistique (équation 4.22), on peut relier σ_s^0 et σ_s^∞ aux contributions surfaciques de la couche diffuse et de la couche de Stern Σ_S^0 et Σ_S^∞ .

$$\sigma_s^0 = \frac{2}{a_0} \Sigma_S^0 \tag{4.28}$$

$$\sigma_s^{\infty} = \frac{2}{a_0} \left(\Sigma_S^0 + \Sigma_S^{\infty} \right) \tag{4.29}$$

La distribution de tailles de grains associée au modèle Cole-Cole s'écrit (e.g., Vaudelet et al., 2011) :

$$f(a) = \frac{1}{2a\pi} \frac{\sin[\pi (1-\alpha)]}{\cosh[2\alpha \ln(a/a_{moy})] - \cos[\pi (1-\alpha)]}$$
(4.30)

avec a_{moy} le rayon moyen de la distribution de particules (en m).

Finalement, la conductivité électrique de la particule σ_s (équation 4.22) est assimilée à la conductivité complexe du modèle Cole-Cole (équation 4.27). Et la conductivité complexe d'une particule isolante enveloppé par une couche conductrice d'électrolyte s'écrit :

$$\sigma_s^* = \frac{2}{a_0} \left(\left(\Sigma_S^0 + \Sigma_S^\infty \right) - \frac{\Sigma_S^\infty}{(1 + i\omega\tau_0)} \right) + i\omega\varepsilon_s$$
(4.31)

On obtient ensuite la conductivité complexe d'une distribution de grains de tailles différentes en résolvant numériquement le produit de convolution de l'équation 4.26.

Polarisation Maxwell-Wagner

Pour modéliser les effets de la polarisation Maxwell-Wagner, le modèle s'appuie sur la théorie des milieux effectifs (DEM) appliquée aux propriétés diélectriques d'un milieux composite, en adoptant une approche auto-cohérente. Le principe de cette méthode est itératif (figure 2.37), il repose sur le calcul de la réponse d'une particule en suspension dans l'électrolyte. Cette réponse est ensuite considérée comme celle d'un milieu homogène, auquel on ajoute une nouvelle inclusion. On calcule la nouvelle réponse, et l'on répète ce processus jusqu'à ce que la concentration en inclusions soit équivalente à la répartition volumique des différentes phases constituant le milieu.

Notre cas est celui d'un système à deux phases. Les inclusions correspondent aux particules sphériques entourées d'une couche conductrice, dont la réponse a été calculée précédemment par le modèle (équation 4.26), et les fractions volumiques des constituants sont liés à la porosité du milieu. Concrètement, à chaque itération, le modèle calcule l'incrément en conductivité effective $\delta \sigma_n$ induit par chaque inclusion, à partir de l'expression donnée dans Mendelson and Cohen (1982) corrigée par Sen (1984) :

$$\delta\sigma_n = \frac{1}{3} \frac{\sigma_n \delta\phi_n}{(1 - \phi_n)} \frac{(\sigma_s - \sigma_n) \left((1 + 3L)\sigma_s + (5 - 3L)\sigma_n \right)}{(L\sigma_s + (1 - L)\sigma_n) \left((1 - L)\sigma_s + (1 + L)\sigma_n \right)}$$
(4.32)

où $\delta\phi_n$ est la portion volumique infinitésimale d'inclusion ajoutée à chaque itération, σ_n la conductivité effective du milieu (calculée à l'itération précédente, approximation milieu homogène), σ_s est la conductivité effective de l'inclusion (calculée avec l'équation 4.26 et lié à la distribution de tailles des grains), ϕ_n le volume cumulé d'inclusions au fil des itérations, et L un paramètre lié à la géométrie des particules. Dans le cas d'inclusions sphériques (le cas de ce modèle), L vaut d'après l'équation 28 dans Mendelson and Cohen (1982) :

$$L = 3 + \frac{\sqrt{9 - 60m + 36m^2}}{6m} \tag{4.33}$$

où m est l'exposant de cémentation du milieu, issu de la première loi d'Archie.

Une fois l'incrément calculé, on considère à nouveau un milieu homogène dont la conductivité effective est augmentée de l'incrément par rapport à l'étape précédente, on calcule l'incrément lié à l'introduction d'un nouvelle inclusion, et l'on suit ce processus jusqu'à ce que le volume cumulé d'inclusions ϕ_n soit concordant avec la porosité du milieu étudié.

3.2.1.2 Résultats du modèle

Le modèle nécessite donc que l'on définisse les valeurs numériques d'un certain nombre de paramètres :

- $\beta_{Na^+}^S$ et $\beta_{Na^+}^d$, les mobilités ioniques des ions sodium, respectivement dans la couche de Stern et dans la couche diffuse.
- Les caractéristiques de la distribution de tailles de grains : rayon minimum a_{min} , rayon maximum a_{max} , rayon moyen a_{moy} et exposant α du modèle Cole-Cole.
- La conductivité électrique σ_f de l'eau saturante (en S.m⁻¹)
- $\Gamma_{Na^+}^{S0}$ et $\Gamma_{Na^+}^d$ les densités de contre-ions Na⁺ respectivement dans la couche de Stern et dans la couche diffuse.

Le tableau 4.18 rassemble les valeurs des paramètres que nous avons utilisé pour une première tentative de modélisation. Nous qualifions cette tentative de "réaliste" puisque nous avons utilisé des valeurs *a priori* en accord avec la composition de notre milieu d'étude. En l'occurence, cette tentative "réaliste" a visé à reproduire la réponse PPS obtenue sur un milieu composé de sable de Fontainebleau totalement saturé en eau de conductivité $\sigma_f = 150 \ \mu \text{S.cm}^{-1}$, soit l'état initial des expériences E1 et E4. Les valeurs des mobilités ioniques sont tirées de Vaudelet et al. (2011) qui ont également travaillé sur la réponse PPS de sables de Fontainebleau saturés en eau et de Revil et al. (1998). Les valeurs de densités des contre-ions utilisées sont issues de Leroy et al. (2008), qui ont travaillé sur des billes de silice sphériques, et correspondent à un électrolyte de salinité similaire et à une distribution de tailles de grains comparable à celles de nos expériences. La conductivité de l'eau est fixée à $\sigma_f = 150 \mu \text{S.cm}^{-1}$, et les caractéristiques de la distribution de tailles de grains de notre milieu correspondent à sa granulométrie (c.f. section 1.3.1 de ce chapitre).

a_{min} (µm)	a_{max} (µm)	a_{moy} (µm)	α	σ_f (µS.cm ⁻¹)	$\beta_{\mathrm{Na}^+}^S$ (m ² .s ⁻¹ .V)	$\beta^d_{\rm Na^+} \\ ({\rm m^2.s^{-1}.V})$	$\Gamma^{S0}_{ m Na^+}$ $(m m^{-2})$	$ \begin{array}{c} \Gamma^d_{\rm Na^+} \\ ({\rm m^{-2}}) \end{array} $
100	250	175	0,5	150	$5,14{\times}10^{-8}$ (a)	$0,51{ imes}10^{-8}$ (b)	$5,5 \times 10^{16} \ ^{(c)}$	$3 \times 10^{16} (c)$

TABLE 4.18 – Paramètres utilisés pour la modélisation "réaliste" de l'état initial des expériences E1 et E4. Les lettres en indice correspondent aux études de (a) Vaudelet et al. (2011), (b) Revil et al. (1998) et (c) Leroy et al. (2008)

La figure 4.48 montre la comparaison entre les résultats du modèle calculé avec les paramètres du tableau 4.18 et les mesures effectuées à l'état initial lors de l'expérience E1.

Les paramètres utilisés dans le modèle "réaliste" ne permettent pas de reproduire fidèlement les mesures à l'état initial de l'expérience E1. Sur la courbe du modèle, on distingue clairement un pic de relaxation vers les basses fréquences (aux alentours de 2 mHz), associé à la distribution de tailles de grain de notre milieu. Les données de l'expérience E1 présentent un spectre bien plus plat dans cette gamme de fréquences. Afin d'aplatir le spectre produit par le modèle, nous avons choisi d'élargir la distribution de tailles de grains implémentées dans le modèle. La signification physique de cette modification suppose que le milieu effectivement étudié (sable de Fontainebleau saturé) n'est pas correctement décrit par une distribution de temps de relaxation uniquement dépendante de la taille des grains composant le milieu. Vaudelet et al. (2011) font face au même problème, et proposent comme explication l'existence d'interactions non-linéaires entre les moments dipôlaires de chaque grain. Leroy et al. (2008) montrent que l'élargissement de la distribution de tailles des grains modélisée permet de considérer les effets de rugosité de surface. Enfin, une autre explication fait intervenir l'influence des phénomènes de polarisation de membrane, qui sont connus pour augmenter la largeur de la fenêtre des temps de relaxation (de Lima and Sharma, 1992). La figure 4.49 permet d'observer l'évolution du modèle avec une distribution de tailles de grains élargie vers les faibles diamètres. Le tableau 4.19 rassemble les nouveaux paramètres du modèle.

a_{min}	a_{max}	a_{moy}	α	σ_{f}	$\beta^S_{\mathrm{Na}^+}$	$\beta^d_{\mathrm{Na}^+}$	$\Gamma^{S0}_{ m Na^+}$	$arGamma^d_{ m Na^+}$
(μm)	(μm)	(μm)		$(\mu S.cm^{-1})$	$(\mathrm{m}^2.\mathrm{s}^{-1}.\mathrm{V})$	$(\mathrm{m}^2.\mathrm{s}^{-1}.\mathrm{V})$	(m^{-2})	(m^{-2})
0,01	250	175	0,92	150	$5,14{\times}10^{-8}$ (a)	$0,51\! imes\!10^{-8}$ (b)	$5,5 \times 10^{16}$ (c)	$3{ imes}10^{16}~^{(c)}$

TABLE 4.19 – Paramètres utilisés pour la modélisation "élargie" de l'état initial des expériences E1 et E4. Les lettres en indice correspondent aux études de (a) Vaudelet et al. (2011), (b) Revil et al. (1998) et (c) Leroy et al. (2008). Les valeurs numériques en gras correspondent aux paramètres modifiés par rapport au modèle "réaliste".



FIGURE 4.48 – Comparaison entre le modèle "réaliste" et les mesures effectuées à l'état initial de l'expérience E1. Les barres d'erreur représentent l'erreur calculée par l'appareil d'acquisition. Elles sortent du cadre du graphique si l'erreur est supérieure à la valeur mesurée.



FIGURE 4.49 – Comparaison entre le modèle "élargi" et les mesures effectuées à l'état initial de l'expérience E1. Les barres d'erreur représentent l'erreur calculée par l'appareil d'acquisition. Elles sortent du cadre du graphique si l'erreur est supérieure à la valeur mesurée.

Le modèle "élargi" (figure 4.49) montre un comportement fréquentiel similaire aux données effectivement mesurées. Le pic de polarisation n'est plus visible et le spectre est aplati dans la gamme des basses / moyennes fréquences (f < 1 kHz). Cependant, l'amplitude du signal modélisé est significativement inférieure à celle du signal mesuré. Pour influer sur le modèle afin

de l'ajuster avec les données, nous avons modifié les valeurs de la densité de contre-ions dans la couche de Stern et la couche diffuse ($\Gamma_{\text{Na}^+}^{50}$ et $\Gamma_{\text{Na}^+}^d$), qui contrôlent l'ampleur des phénomènes de polarisation électro-chimique qui se produisent à la surface des grains. Le nouveau modèle ainsi ajusté est représenté sur la figure 4.50, et le tableau 4.20 rassemble les valeurs des paramètres du modèle "ajusté". Pour permettre l'ajustement, il a été nécessaire d'augmenter d'un ordre de grandeur $\Gamma_{\text{Na}^+}^{50}$ et $\Gamma_{\text{Na}^+}^d$. Il est difficile de justifier quantitativement une telle augmentation, mais celle-ci suit pourtant une certaine logique. Dans la réalité, les grains de sable ne sont pas parfaitement sphériques et présentent donc des surfaces spécifiques supérieures aux suppositions du modèle. Or le lien entre surface spécifique du milieu et ampleur des phénomènes de polarisation est clairement établi dans la littérature (e.g., Leroy et al., 2008; Wu et al., 2008). L'approximation en sphères parfaites entraîne une sous-estimation de l'amplitude de la conductivité en quadrature parce qu'elle sous-estime la surface spécifique totale du milieu réel. Une possibilité pour contre-balancer cette erreur – si l'on conserve l'approximation en grains sphériques – est d'augmenter la densité de charge dans la double couche électrique.



FIGURE 4.50 – Comparaison entre le modèle "ajusté" et les mesures effectuées à l'état initial de l'expérience E1. Les barres d'erreur représentent l'erreur calculée par l'appareil d'acquisition. Elles sortent du cadre du graphique si l'erreur est supérieure à la valeur mesurée.

a_{min}	a_{max}	a_{moy}	α	σ_{f}	$\beta^S_{\mathrm{Na}^+}$	$\beta^d_{\mathrm{Na}^+}$	$\Gamma^{ m S0}_{ m Na^+}$	$arGamma^d_{ m Na^+}$
(μm)	(μm)	(μm)		$(\mu S. cm^{-1})$	$(\mathrm{m}^2.\mathrm{s}^{-1}.\mathrm{V})$	$(\mathrm{m}^2.\mathrm{s}^{-1}.\mathrm{V})$	(m^{-2})	(m^{-2})
0,01	250	175	0,92	150	$5,14{\times}10^{-8}$ (a)	$0,51{ imes}10^{-8}$ (b)	55×10^{16} (c)	$30 \times 10^{16} (c)$

TABLE 4.20 – Paramètres utilisés pour la modélisation « ajustée »de l'état initial des expériences E1 et E4. Les lettres en indice correspondent aux études de (a) Vaudelet et al. (2011), (b) Revil et al. (1998) et (c) Leroy et al. (2008). Les valeurs numériques en gras correspondent aux paramètres modifiés par rapport au modèle « réaliste ».

Le modèle calculé avec les paramètres du tableau 4.20 reproduit fidèlement les mesures acquises à l'état initial de l'expérience E1 dans la gamme de fréquences 0,1 Hz - 750 Hz. Aux fréquences plus élevées, les valeurs effectivement mesurées augmentent plus rapidement avec la fréquence que le modèle. Dans cette gamme de fréquences, c'est la réponse diélectrique du système qui contrôle l'évolution de la conductivité en quadrature. Dans le modèle utilisé, cette partie de la réponse dépend de la valeur attribuée à la permittivité diélectrique de la particule (ε_i dans l'équation 4.21). Une meilleure correspondance aux hautes fréquences est obtenue en attribuant une valeur de l'ordre de 150 à la permittivité relative de la particule (figure 4.51). On se situe alors plusieurs ordres de grandeur au dessus de la permittivité relative de la silice qui est de l'ordre de 4-5, initialement utilisée. Nous expliquerons et argumenterons la nécessité de valeurs si élevées à la section 3.3 ci-après. La figure 4.51 rend compte de l'amélioration du modèle "final". En implémentant cette haute valeur de permittivité dans le modèle, on parvient à ajuster le modèle aux données dans la gamme des hautes fréquences (f > 1 kHz).



FIGURE 4.51 – Comparaison entre le modèle "final" et les mesures effectuées à l'état initial de l'expérience E1. Les barres d'erreur représentent l'erreur calculée par l'appareil d'acquisition. Elles sortent du cadre du graphique si l'erreur est supérieure à la valeur mesurée.

Afin de reproduire les mesures effectuées sur l'état initial de l'expérience E1, nous avons choisi de modifier un certain nombre de paramètres du modèle développé par Leroy et al. (2008). Pour résumer, l'élargissement de la distribution des tailles de grains et l'ajustement des valeurs numériques des densités de sites de surface ont permis de reproduire les mesures observées dans la gamme des basses / moyennes fréquences (0,1 Hz < f < 750 Hz). Pour les fréquences supérieures ou égales à 1 kHz, l'ajustement du modèle avec les données passe par l'utilisation de très hautes valeurs de permittivité relative de la particule.

En modifiant de façon similaire ces mêmes paramètres, on est capable de reproduire les mesures effectuées à l'état initial de chacune des 6 différents systèmes étudiés au cours de cette campagne d'expériences (sable de Fontainebleau ou carbonaté, 3 valeurs de conductivité électrique de l'eau saturante : 150, 400, 1000 μ S.cm⁻¹). L'ensemble des paramètres ajustés par rapport au modèle initial pour chaque système sont rassemblés dans le tableau 4.21 La distribution des rayons de particules $(a_{max}, a_{max}, a_{moy})$ et les valeurs des mobilités ioniques dans la double couche électrique $\beta^S_{\rm Na^+}$ et $\beta^d_{\rm Na^+}$ sont les mêmes pour les 6 systèmes, et correspondent à celles implémentées dans le modèle « ajusté »(tableau 4.20). Les figures 4.52 et 4.53 présentent pour chaque système la comparaison entre signaux modélisés et signaux mesurés.

Expérience N°	Type de sable	$\sigma_f ~(\mu { m S.cm^{-1}})$	α	$\Gamma_{\rm Na^+}^{S0} \ ({\rm m^2.s^{-1}.V})$	$\Gamma^{d}_{\rm Na^{+}} \ ({\rm m^{2}.s^{-1}.V})$	ε_{ri}
E1 and E4	${ m Fontainebleau}$	150	$0,\!92$	$5,5 \times 10^{17}$	3×10^{17}	158
E2 and E5	${\it Fontainebleau}$	400	$0,\!87$	$4,\!6\! imes\!10^{17}$	$2,\!3{\times}10^{17}$	384
E3 and E6	${ m Fontainebleau}$	1000	$0,\!82$	$4,\!5\!\times\!10^{17}$	$2,\!25{\times}10^{17}$	1151
E7 and E10	Carbonates	150	$0,\!82$	$1,\!6{\times}10^{16}$	$0,8{ imes}10^{16}$	165
$\mathbf{E8}$ and $\mathbf{E11}$	Carbonates	400	$0,\!82$	2×10^{16}	1×10^{16}	475
E9 and E12	Carbonates	1000	0,82	$2,\!4{ imes}10^{16}$	$1,\!2\!\times\!10^{16}$	1090

TABLE 4.21 – Tableau récapitulatif des paramètres utilisés pour la modélisation « finale » de l'état initial de toutes les expériences.



Sable de Fontainebleau

FIGURE 4.52 – Comparaison entre le modèle "final" calculé avec les paramètres du tableau 4.21 et les mesures effectuées à l'état initial des expériences E1, E2 et E3. Les barres d'erreur sont absentes pour plus de lisibilité.

Le modèle mécanistique proposé par Leroy et al. (2008) permet donc de reproduire nos observations expérimentales sur toute la gamme de fréquences d'intérêt (100 mHz - 20 kHz) moyennant l'ajustement de certains paramètres. Il convient toutefois de préciser que cet ajus-



FIGURE 4.53 – Comparaison entre le modèle "final" calculé avec les paramètres du tableau 4.21 et les mesures effectuées à l'état initial des expériences E7, E8 et E9. Les barres d'erreur sont absentes pour plus de lisibilité.

tement a systématiquement été réalisé « à la main ». En effet, le grand nombre de paramètres constituant le modèle exclu la possibilité d'effectuer cet ajustement de manière itérative, par exemple en parcourant l'ensemble de l'espace des paramètres selon une certaine discrétisation, et en calculant l'écart minimal entre le modèle calculé et les données. Dans l'état actuel du code matlab selon lequel est construit le modèle, ce type de procédé aurait requis des temps de calculs extrêmement longs. En outre, même en implémentant une routine d'inversion relativement sophistiquée et rapide, le risque de converger vers une solution physiquement aberrante reste élevé. Nous avons donc préféré ajuster ce modèle « à la main », en tâchant de suivre une certaine logique physique lors de la modification des paramètres du modèle.

Il résulte de ce choix que les paramètres utilisés pour calculer les modèles « finaux »relatifs à l'état initial de nos expériences (c.f. tableau 4.21)

Dans la suite, nous allons nous intéresser plus spécifiquement aux valeurs de conductivité en quadrature mesurées aux hautes fréquences (f > 1 kHz), et à leur modélisation, puisque c'est dans cette gamme que l'on observe les plus fortes variations au cours de nos expériences.

3.2.2 Modélisation empirique

Le modèle mécanistique décrit précédemment présente l'avantage de reproduire les données observées sur toute la gamme de fréquences d'intérêt (100 mHz – 20 kHz). Cependant, il est composé d'un grand nombre de paramètres, peu commodes à manipuler dans leur ensemble. Dans la gamme des hautes fréquences néanmoins (f > 1 kHz), nous avons vu que le paramètre qui contrôle la forme et l'amplitude du spectre de conductivité en quadrature est la permittivité diélectrique de la particule. Or cette gamme de fréquences est celle qui nous intéresse particulièrement puisque l'on y observe les plus fortes variations de σ'' au cours de nos expériences.

Ainsi, dans le but de coupler les résultats des travaux de modélisation avec un code de transport réactif, nous avons décidé de développer un modèle empirique en nous focalisant uniquement sur les valeurs de la conductivité en quadrature observées aux fréquences supérieures à 10 Hz. Cette approche résulte en la conception d'un modèle simple, à seulement deux paramètres, à partir duquel nous avons pu déterminer empiriquement les relations existant entre les spectres de conductivité en quadrature observés, leur évolution, et certains paramètres physicochimiques qui caractérisent nos milieux d'étude (conductivité électrique de l'eau saturante, degré de saturation en eau).

3.2.2.1 Construction du modèle empirique

Le modèle se base sur la définition théorique de la conductivité en quadrature effective d'un milieu (c.f. chapitre 1 section 2.3) :

$$\sigma_{eff}^{''}(\omega) = \sigma^{''}(\omega) + \omega\varepsilon^{'}(\omega) \tag{4.34}$$

où σ'' est la conductivité en quadrature du milieu (en S.m⁻¹), ω la fréquence angulaire (en Hz) et ε' la partie réelle de la permittivité diélectrique complexe du milieu (en F.m⁻¹).

En théorie, σ'' et ε' sont des grandeurs dépendantes de la fréquence. Cependant, pour modéliser les valeurs de σ''_{eff} dans la gamme de fréquences [10 Hz - 20 kHz] (qui est relativement restreinte), nous allons voir que nous pouvons nous dispenser de cette dépendance fréquentielle, et considérer σ'' et ε' comme des constantes. Avec cette approximation, l'expression de σ''_{eff} donnée précédemment est réduite à une relation linéaire avec la fréquence de la forme :

$$y = ax + b$$

où les constantes a et b correspondent respectivement à la partie réelle de la permittivité diélectrique complexe ε' et à la conductivité en quadrature σ'' du milieu, et la variable x correspond à la fréquence f (en Hz).

Influence de la conductivité électrique du fluide saturant

La construction de notre modèle empirique a tout d'abord consisté à déterminer les coefficients a et b (correspondant aux grandeurs ε' et σ'') à partir des mesures de l'état initial (pré-injection) de chaque expérience, qui présentent différents niveaux de conductivité électrique du fluide saturant. Ce faisant, nous avons pu déterminer une relation empirique reliant la conductivité en quadrature mesurée à haute fréquence avec la conductivité électrique de l'eau saturant le milieu. Pour chaque type de sable (carbonaté ou Fontainebleau), et pour chacune des valeurs de conductivité de l'eau saturante (150, 400 et 1000 μ S.cm⁻¹), la partie haute fréquence du spectre de conductivité en quadrature peut être ajustée par une relation affine. Les figures 4.54 et 4.55 représentent les mesures expérimentales et les courbes d'ajustement correspondantes, respectivement pour les expériences E1, E2 et E3 (sable de Fontainebleau, figure 4.54) et pour les expériences E7, E8 et E9 (sable carbonaté, figure 4.55).



FIGURE 4.54 – Ajustement par une relation affine des spectres de conductivité en quadrature mesurés à l'état initial des expériences E1, E2 et E3, dans la gamme de fréquences [10 Hz - 20 kHz]. Les équations affines obtenues et leur coefficient de régression sont indiqués dans les cadres de couleur correspondant à chaque expérience.

Les coefficients de régression associés aux courbes d'ajustement sont extrêmement proches de 1, accréditant bien l'hypothèse d'une évolution linéaire des mesures dans la gamme de fréquences [10 Hz - 20 kHz].

A partir des coefficients a et b obtenus par l'ajustement des mesures, on peut déduire les valeurs "modélisées" de σ'' et ε' correspondantes, pour chacun des milieux étudiés. σ'' est directement égal à b:

$$\sigma^{''} = b$$

Le paramètre ε' est également directement relié au coefficient a, mais dans la suite, nous avons choisi d'utiliser les valeurs de permittivité relative du milieu $\varepsilon_r = \frac{\varepsilon'}{\varepsilon_0}$. On obtient donc les valeurs de ε_r en fonction du coefficient affine *a* à travers la relation :

$$\varepsilon_r = \frac{\varepsilon'}{\varepsilon_0} = \frac{af}{\omega\varepsilon_0}$$



FIGURE 4.55 - Ajustement par une relation affine des spectres de conductivité en quadrature mesurés à l'état initial des expériences E7, E8 et E9, dans la gamme de fréquences [10 Hz - 20 kHz]. Les équations affines obtenues et leur coefficient de régression sont indiqués dans les cadres de couleur correspondant à chaque expérience.

Soit

$$\varepsilon_r = \frac{a}{2\pi\varepsilon_0}$$

	Fontaineb	oleau	Carbonates			
$\sigma_f \; (\mu { m S.cm^{-1}})$	$\sigma^{''}~({ m S.m^{-1}})$	ε_r	$\sigma^{''}~({ m S.m^{-1}})$	ε_r		
150	$1,00{ imes}10^{-5}$	181,7	$1,\!62{ imes}10^{-6}$	178,7		
400	$1,18{ imes}10^{-5}$	474,7	$2,\!46{ imes}10^{-6}$	$446,\!1$		
1000	$1,47{ imes}10^{-5}$	$1217,\! 6$	$3,\!44{ imes}10^{-6}$	1004,7		

TABLE 4.22 – Valeurs de ε_r et σ'' obtenues par le modèle linéaire appliqué à l'état initial des expériences E1, E2, E3, E7, E8 et E9.

Le tableau 4.22 rassemble les valeurs de ε_r et σ'' obtenues par cette modélisation affine. La figure 4.56 représente les valeurs de ε_r et σ'' obtenues en fonction de la conductivité électrique initiale du fluide saturant σ_f . Pour chacun des sables, ε_r et σ'' augmentent linéairement avec σ_f . Cette relation linéaire n'est obtenue qu'à partir de trois points de mesures, et il est possible que pour une gamme de salinités du fluide plus étendue, cette relation ne soit plus linéaire. Pour autant, entre 100 μ S.cm⁻¹ et 1000 μ S.cm⁻¹, les coefficients de régression obtenus par une approximation linéaire sont très proches de 1, notamment dans le cas de ε_r .

L'ensemble des observations précédentes nous permet donc d'établir un modèle empirique qui décrit l'évolution de la conductivité en quadrature effective σ_{eff}'' aux hautes fréquences (10 Hz < f < 20 kHz) en fonction de l'évolution de la conductivité électrique du fluide saturant.



FIGURE 4.56 – Représentation de la dépendance des valeurs de σ'' et ε_r déterminées par le modèle affine avec la conductivité initiale du fluide saturant. Les valeurs augmentent linéairement avec la conductivité du fluide. Les équations et coefficients de régression correspondant à chaque paramètre et à type de sable sont indiquées en couleur sur la figure.

Pour résumer, σ_{eff}'' suit une évolution linéaire avec la fréquence, et les coefficients affines de cette relation évoluent linéairement avec la conductivité du fluide saturant, selon les expressions données sur la figure 4.56.

Influence du niveau de saturation

Les phénomènes de désaturation du milieu que nous avons observés lors de nos expériences sont très faibles. La saturation en eau effective n'a jamais été inférieure à 0,98. Il est donc exclu d'obtenir une relation couvrant plusieurs niveaux de saturation en eau. Ensuite, comme nous avons pu le voir en section 2.3, il est fort probable que la répartition spatiale de la phase gazeuse dans le milieu ait une influence sur les modifications du signal (dans le cas du sable carbonaté, la chute de désaturation met un certain temps à se stabiliser, voir section 2.3.2). Connaître la saturation effective du milieu n'est alors plus suffisant pour appréhender correctement l'impact sur les signaux mesurés.

Malgré ces limitations, nous avons réalisé une étude similaire à celle portant sur l'influence de la conductivité du fluide. En utilisant les données acquises lors des expériences E1, E2, E3, E7, E8, et E9, nous avons appliqué le modèle affine à l'état initial des expériences d'une part, puis au signal mesuré au temps t pour lequel la chute de désaturation est stabilisée (e.g., figure 4.57). De la même façon que pour la conductivité, nous avons alors obtenu les valeurs de ε_r et σ'' correspondantes aux coefficients affine du modèle linéaire, appliqué à chaque acquisition. Ces valeurs sont rassemblées dans le tableau 4.23.

Sur la figure 4.58, nous avons représenté l'évolution de la *diminution* de permittivité relative induite par l'injection de gaz (ligne « Diminution » dans le tableau 4.23), en fonction de la



FIGURE 4.57 – Représentation de la dépendance des valeurs de σ'' et ε_r déterminées par le modèle affine avec la conductivité initiale du fluide saturant. Les valeurs augmentent linéairement avec la conductivité du fluide. Les équations et coefficients de régression correspondant à chaque paramètre et à type de sable sont indiquées en couleur sur la figure.

	Fe	ontainebl	eau	Carbonates			
Expérience	E1	E2	${ m E3}$	E7	E8	$\mathbf{E9}$	
$\sigma_f \; (\mu \mathrm{S.cm^{-1}})$	150	400	1000	150	400	1000	
ε_r état initial	181,71	474,75	$1217,\!56$	178,69	$446,\!15$	1004,72	
ε_r état stabilisé	$150,\!62$	$427,\!36$	$1123,\!52$	168,04	$428,\!69$	$911,\!69$	
Diminution	31,08	$47,\!38$	$94,\!04$	$10,\!65$	17,45	$93,\!02$	

TABLE 4.23 – Valeurs de ε_r obtenues par le modèle affine appliqué à l'état initial des expériences E1, E2, E3, E7, E8 et E9, et à l'état correspondant à la stabilisation de la chute de désaturation (stabilisation de la phase gazeuse). Les valeurs de σ'' obtenues ne sont pas représentées car elles ne sont pas impactées par la présence de la phase gazeuse.

conductivité initiale de l'eau saturante. On observe une évolution linéaire pour le sable de Fontainebleau (R = 0,99927). Pour le sable carbonaté, la linéarité est moins nette (R = 0,97682).

Pour les expériences avec le sable de Fontainebleau E1, E2 et E3, le niveau de saturation en gaz est le même (c.f. tableau 4.17). De plus, on n'observe pas de période de stabilisation de la chute de désaturation, ce qui suggère que le gaz se répartit rapidement dans le milieu, que cette répartition évolue peu au cours de l'expérience, et qu'elle est donc probablement similaire pour chacune des expériences E1, E2 ou E3.

Nous suggérons alors que le comportement non linéaire des points correspondants au sable carbonaté soit dû à une répartition volumique et spatiale de la phase gazeuse différente selon l'expérience E7, E8 ou E9. D'une part, le niveau de saturation atteint n'est pas exactement le même entre chaque expérience (c.f. section 2.3.5 tableau 4.17), et d'autre part, l'existence d'un « temps de stabilisation » de la chute de désaturation suggère que le gaz se répartit plus lentement dans le sable carbonaté. Si le sable carbonaté est en effet moins perméable que le sable de Fontainebleau, le mode de circulation du gaz dans le milieu est davantage sensible aux hétérogénéités, et la répartition spatiale du gaz peut varier sensiblement entre deux expériences.



FIGURE 4.58 – Représentation de la dépendance des valeurs de σ'' et ε_r déterminées par le modèle affine avec la conductivité initiale du fluide saturant. Les valeurs augmentent linéairement avec la conductivité du fluide. Les équations et coefficients de régression correspondant à chaque paramètre et à type de sable sont indiquées en couleur sur la figure.

Pour résumer, nous avons introduit l'influence de la diminution du niveau de saturation selon les modalités suivantes. Pour un niveau de saturation en eau donné (ici $S_{eau} \approx 0.98$) nous considérons que la diminution de permittivité relative par rapport à l'état totalement saturé en eau est proportionnel à la conductivité électrique de l'eau saturante. Nos hypothèses suggèrent que c'est la différence de répartition spatiale de la phase gazeuse qui empêche d'observer cette proportionnalité pour les expériences E7, E8 et E9.

A partir de ces considérations, nous disposons de deux relations linéaires permettant de décrire l'évolution de la diminution de permittivité relative avec la conductivité du fluide saturant, et ce pour le sable de Fontainebleau et le sable carbonaté (figure 4.58).

Modèle empirique final

Les observations précédentes nous ont finalement permis de construire un modèle empirique permettant de reproduire la forme et l'évolution des spectres de conductivité en quadrature observées lors de nos expériences, dans la gamme des hautes fréquences (10 Hz< f <20 kHz). Le modèle reproduit la dépendance du signal à la conductivité électrique du fluide saturant, ainsi que le cas particulier d'une saturation en eau réduite à $S_{eau} \approx 0,98$. Les équations 4.35 à 4.41 sont les équations constitutives du modèle empirique final. La conductivité en quadrature effective du milieu $\sigma_{eff}^{"}$ suit une relation affine avec la fréquence, et les coefficients affines associés (l'ordonnée à l'origine $\sigma^{"}$ et la pente $\varepsilon^{'}$) sont des paramètres indépendants de la fréquence qui évoluent linéairement avec la conductivité électrique de l'eau saturante. De plus, une réduction de la saturation en eau au niveau $S_{eau} \approx 0,98$ induit une diminution $\Delta \varepsilon_{S=0,98}^{'}$ de la pente $\varepsilon^{'}$ proportionnelle à la conductivité électrique du fluide saturant σ_f . En intégrant toutes ces considérations dans le modèle empirique, celui ci s'écrit :

$$\sigma_{eff}^{''}(\omega) = \sigma^{''} + \omega \varepsilon^{'} \tag{4.35}$$

Dans le cas d'un sable de Fontainebleau saturé en eau on a :

$$\sigma'' = 9, 4.10^{-6} + 5, 39.10^{-9}\sigma_f \tag{4.36}$$

$$\varepsilon' = \varepsilon_0 \left(-6,8325 + 1,2222 \ \frac{\sigma_f}{\sigma_1} \right) \tag{4.37}$$

 Et

$$\Delta \varepsilon_{S=0,98}' = \varepsilon_0 \left(18,886 + 0,07475 \ \frac{\sigma_f}{\sigma_1} \right) \tag{4.38}$$

avec σ_f en μ S.cm⁻¹, et σ_1 la "conductivité unitaire" ($\sigma_1 = 1 \ \mu$ S.cm⁻¹), introduite pour homogénéiser l'expression.

Dans le cas du sable carbonaté, les paramètres du modèle s'écrivent :

$$\sigma'' = 1,45.10^{-6} + 2,04.10^{-9}\sigma_f \tag{4.39}$$

$$\varepsilon' = \varepsilon_0 \left(44,951+0,964 \ \frac{\sigma_f}{\sigma_1} \right) \tag{4.40}$$

 Et

$$\Delta \varepsilon_{S=0,98}^{'} = \varepsilon_0 \left(-12,445 + 0,10223 \ \frac{\sigma_f}{\sigma_1} \right)$$

$$(4.41)$$

3.2.2.2 Application du modèle empirique à la simulation d'une expérience - code FEHM (LANL)

Dans cette section, nous présentons une partie du travail que nous avons accompli au cours d'un séjour de deux mois et demi au sein du Los Alamos National Laboratory (LANL), situé dans le nord de Nouveau-Mexique aux Etats-Unis.

L'objectif de ce séjour était de se familiariser avec un code de transport réactif développé au sein du laboratoire "Environmental Science Division" du LANL. Avec cet outil de simulation, nous avons travaillé à concevoir un modèle reproduisant les conditions physico-chimiques de nos expériences en laboratoire, et appliqué le modèle PP empirique détaillé précédemment afin d'étudier plus en profondeur la réponse en conductivité en quadrature d'une injection de CO_2 dans un milieu granulaire totalement saturé en eau.

Présentation du code FEHM

Le principal créateur et développeur de FEHM est Georges Zyvoloski (Zyvoloski, 2007). L'acronyme FEHM est utilisé pour réduire l'expression "Finite Element Heat and Mass Transfer Code". C'est un code puissant, développé au LANL depuis les années 70, qui permet la modélisation de phénomènes de sub-surface complexes. FEHM est particulièrement bien adapté à la modélisation de problématiques hydrologiques, de phénomènes géothermiques et de réservoirs de pétrole. Plus récemment, les chercheurs du LANL ont commencé à utiliser FEHM pour étudier des problématiques liés à la séquestration géologique du CO₂ (e.g., Keating et al., 2010).

Conception du modèle de transport réactif

Le code FEHM est basé sur la méthode des éléments finis. La première étape de construction du modèle a donc consisté à générer d'un maillage volumique représentatif de notre milieu d'étude. En l'occurrence, nous avons généré un volume cylindrique, dont les dimensions correspondent à celles de notre milieu d'étude (30 cm de diamètre, 35 cm de hauteur, voir figure 4.59). Nous avons ensuite défini un ensemble de noeuds situés dans le même plan horizontal, constituant une zone approximativement circulaire et centrée autour de l'axe de révolution du cylindre. L'ensemble de ces noeuds constituent la zone d'injection du CO₂ (figure 4.59) et représentent en quelque sorte la surface du diffuseur (c.f. section 1.1.1). Pour plus de simplicité, nous avons localisé la zone d'injection à la base du cylindre (z = 0 cm), et non pas à la hauteur z = 5 cm comme c'est le cas dans nos expériences.



FIGURE 4.59 – Prise de vue du maillage volumique (éléments tétraédriques) représentant le milieu d'étude cylindrique. Les éléments colorés en vert regroupent l'ensemble des noeuds situé dans le plan z = 0 cm du maillage, qui constituent la zone d'injection de CO₂.

En plus du maillage ainsi défini, FEHM requiert notamment (entre autres fichiers) l'écriture d'un fichier d'entrée qui sera compilé par le code. C'est dans ce fichier que l'on défini les paramètres du problème que l'on souhaite modéliser. Composition de la roche, caractéristiques hydrauliques, structurelles, thermiques, composition de l'eau porale, réactions chimiques, FEHM permet la définition de modèles complexes et variés. Tous ces paramètres sont définis à travers des "macros" pré-compilées dans le code. Dans notre cas, le fichier d'entrée rassemble notamment les paramètres de composition de la roche, de l'eau porale, ceux relatifs à l'injection de CO₂ et aux éventuelles réactions géo-chimiques (dans le cas du sable carbonaté). La définition de ces macros n'est pas triviale, car FEHM requiert d'entrer un certain nombre de paramètres parfois non nécessaires à la définition du problème, mais avec lesquels il faut tout de même être familiarisé si l'on veut aboutir à un modèle fonctionnel.

Exemple d'application : simulation de l'expérience E5

La figure 4.60 présente une visualisation du modèle FEHM à plusieurs temps t de la simulation, lors d'une injection de CO₂ dans un milieu granulaire non réactif (représentant le sable de Fontainebleau), saturé en eau de conductivité initiale $\sigma_f = 430 \ \mu \text{S.cm}^{-1}$. Ce modèle est donc censé reproduire l'expérience E5 de notre campagne en laboratoire. La durée totale de la simulation est de 3,6 h, et l'on a utilisé autant que possible des paramètres similaires aux paramètres du milieu réel (taux d'injection, porosité etc...).

Dans le modèle FEHM, le milieu granulaire est parfaitement homogène. Le gaz évolue donc rapidement vers la surface, à la verticale de la zone d'injection. La dynamique de circulation du gaz ne correspond donc probablement pas au cas réel (où l'on observe la formation de chemins de circulation préférentiels avec une certaine variabilité latérale). Cependant, le modèle FEHM permet de simuler la dynamique de dissolution et de diffusion du CO_2 au cours du temps.



Temps

FIGURE 4.60 – Prise de vue du modèle représentant l'expérience E5 à plusieurs instants au cours de la simulation. Le panache de CO₂ dissout se développe verticalement vers la surface, puis diffuse au fur et à mesure vers les bords du cylindre. L'échelle de couleur correspond à la fraction massique de CO₂ dissout dans l'eau.

A partir des résultats de la simulation, nous disposons donc de la concentration en CO_2 dissout dans le milieu, à chaque intervalle de temps de la simulation. Nous avons alors choisi de calculer la réponse effective du milieu à chaque intervalle de temps en faisant la moyenne des valeurs de chacun des éléments composant le maillage. Ce procédé, certes assez direct, nous permet de raisonner en terme de grandeur effective. A partir des concentrations effectives ainsi déterminées, nous avons utilisé un script PHREEQC afin de déterminer les concentrations respectives en espèces ioniques en tenant compte de l'évolution du pH de la solution, lequel contrôle notamment la répartition des espèces relatives au CO_2 dissout (HCO_3^- , CO_3^{2-} , $CO_{2(aq)}$). A partir des concentrations en espèces dissoutes déterminées, le script PHREEQC permet également de déterminer une estimation de la conductivité électrique de l'eau.

Ainsi, après ces procédures de modélisation et de calcul, nous disposons des valeurs de la conductivité électrique effective de l'eau saturant le milieu, et ce a chaque pas de temps de la simulation. En appliquant le modèle empirique décrit précédemment, nous sommes capables de calculer la réponse en conductivité en quadrature effective ($\sigma_{eff}^{"}$ du système et son évolution au cours du temps). La figure 4.61 représente les résultats obtenus après l'application du modèle PP empirique à la simulation FEHM de l'expérience E5. Le graphique a) présente la partie hautes fréquences des spectres de conductivité en quadrature obtenus, et le graphique b) propose une comparaison entre l'évolution temporelle de la conductivité en quadrature mesurée et modélisée à la fréquence f = 12 kHz.



FIGURE 4.61 – Résultats du couplage entre le modèle de transport réactif FEHM et le modèle PP empirique, pour la simulation de l'expérience E5. Le graphique a) présente les spectres de conductivité en quadrature effective $\sigma_{eff}^{"}$ obtenus en appliquant le modèle empirique à chaque pas de temps de la simulation FEHM. Au delà de 100 Hz, $\sigma_{eff}^{"}$ augmente au cours de la simulation. Pour des fréquences inférieures à 1 Hz (non représentées), $\sigma_{eff}^{"}$ n'évolue pas. Le graphique b) représente la comparaison entre les valeurs de $\sigma_{eff}^{"}$ mesurées au cours de l'expérience E5, et les valeurs modélisées, à la fréquence f = 12 kHz.

La conductivité en quadrature modélisée se situe bien dans la même gamme de valeurs que

celle mesurée lors de l'expérience. La chute de désaturation induite par l'injection au début de l'expérience est notamment bien reproduite. Cependant, sur la courbe correspondant aux mesures, la conductivité en quadrature augmente quasi-linéairement avec le temps alors que le modèle produit lui une augmentation plus rapide, de forme logarithmique, qui semble bornée par une limite correspondant à la concentration maximale de l'eau saturante en CO₂ dissout.

Ainsi, dans le cas de l'expérience E5, le modèle FEHM surestime la vitesse d'augmentation de la conductivité électrique de l'eau saturante. Pour un système à 25° C à la pression atmosphérique, les constantes de dissolution du CO₂ dans l'eau utilisées par FEHM sont bien connues, nous attribuons donc au moins partiellement la surestimation observée à la mauvaise modélisation de la circulation du CO₂ dans l'espace poral. FEHM produit une circulation verticale, en colonne d'un diamètre équivalent à celui de la zone d'injection, alors que nos expériences suggèrent davantage une circulation selon quelques chemins préférentiels variables. Nous supposons qu'à cause de ces différences, la surface totale de contact entre CO₂ gazeux et eau saturante est surestimée dans le modèle, menant ainsi à une surestimation de la cinétique de dissolution, des phénomènes de diffusion, et donc de la vitesse d'augmentation de la conductivité électrique du fluide et de la conductivité en quadrature effective du milieu.

Exemple 2 : simulation de l'expérience E11.

Les mêmes procédures ont été appliquées à la conception d'un modèle FEHM pour l'expérience E11. Nous avons simplement rajouté au modèle de base les paramètres nécessaires à la simulation des réactions de dissolution et de précipitation des carbonates, et défini la roche comme de la calcite pure. La figure 4.62 présente la comparaison entre les données expérimentales et les résultats du modèle.

On observe à nouveau une nette surestimation du taux d'augmentation de la conductivité en quadrature effective du système. Après une augmentation rapide, quasi-linéaire, la courbe du modèle suit une augmentation beaucoup plus lente. Ce brusque changement correspond aux ruptures de pente que l'on peut observer sur les courbes d'évolution des concentration en ions calcium Ca^{2+} et hydrogénocarbonate HCO_3^- (figure 4.63). Le système s'approche de l'équilibre chimique calco-carbonique, le pH se stabilise (figure 4.63, graphique de droite), et les concentrations en espèces dissoutes augmentent plus lentement.

Pour expliquer la surestimation observée, nous pouvons invoquer à nouveau le mode de répartition du CO_2 dans le modèle FEHM, qui diffère probablement significativement du cas réel. Avec FEHM, la dissolution des carbonates a lieu dans l'ensemble du volume modélisé sitôt que du CO_2 dissout a diffusé jusqu'au bords du cylindre. Dans le cas réel, les cinétiques de diffusion sont probablement plus lentes, les chemins de diffusion plus hétérogènes, si bien que le taux de dissolution *effectif* au sein du volume cylindrique est inférieur dans le cas réel par rapport au modèle. Dans le cas du sable carbonaté, une autre hypothèse pour expliquer cette surestimation fait intervenir les constantes spécifiques associées à la réaction de dissolution de



FIGURE 4.62 – Résultats du couplage entre le modèle de transport réactif FEHM et le modèle PP empirique, pour la simulation de l'expérience E11 (comparaison entre les valeurs mesurées au cours de l'expérience E11, et les valeurs modélisées, à la fréquence f = 12 kHz).

la calcite.

Les constantes de réaction de dissolution et de précipitation de la calcite dans l'eau sont encore sujet à des incertitudes et des discussions au sein de la communauté scientifique (e.g., Guichet et al., 2006). Lorsque le CO_2 est impliqué, le problème est encore davantage complexifié. La valeur associée à ce paramètre dans le modèle FEHM est donc peut être erronée. Un autre paramètre du modèle sujet à des incertitudes est la surface spécifique des minéraux composant le milieu. FEHM requiert une surface spécifique effective comme paramètre d'entrée. Dans notre cas, nous ne disposons pas d'estimation plausible de la surface spécifique effective réelle de notre sable carbonaté.

Finalement, les 2 exemples montrent bien l'importance de modéliser correctement la dynamique de circulation du gaz dans l'espace por l si l'on veut reproduire de façon satisfaisante l'évolution chimique du milieu.

Exemple 3 : Dépendance de $\sigma_{eff}^{''}$ avec la concentration en carbonates de la roche.

Dans cet exemple, nous avons utilisé FEHM pour simuler une injection de CO_2 dans un milieu homogène composé cette fois d'une roche possédant une faible concentration en carbonates. Nous avons fait varier la fraction de carbonates dans la roche de 0,2 mmol.kg⁻¹ à 2 mmol.kg⁻¹. L'ensemble des courbes de σ''_{eff} obtenues à partir de ces simulations sont rassemblées sur la figure 4.64.

On observe, comme dans le cas d'une roche totalement composée de calcite (c.f. figure 4.62), une rupture de pente dans la courbe d'évolution temporelle. Immédiatement après la rupture de pente, σ_{eff}'' continue d'augmenter lentement, puis atteint un palier stable. A ce stade, l'ensemble



FIGURE 4.63 – Courbes d'évolution temporelle des concentrations en ions calcium Ca²⁺, hydrogénocarbonate HCO³⁻ (graphique de gauche) et du pH (graphique de droite), issues de la simulation FEHM de l'expérience E11. La forme des courbes suggère le proximité de l'équilibre du système calco-carbonique.



FIGURE 4.64 – Modélisation de l'évolution temporelle de $\sigma_{eff}^{''}$ calculée à la fréquence f = 12 kHz, pour différentes concentrations en calcite de la roche composant le milieu.

de la calcite composant la roche a été dissoute, on a atteint le maximum des concentrations en calcium dissout et donc la valeur maximale de $\sigma_{eff}^{"}$. On remarque que les courbes jaune, orange et rouge, correspondant aux concentrations en calcite les plus élevées, n'atteignent pas ce palier, signe que dans le temps imparti de la simulation (≈ 5 h) la calcite n'a pas le temps de se dissoudre dans sa totalité. Cet exemple illustre l'intérêt des processus de modélisation présentés précédemment. Selon la fraction de calcite présente dans la roche, le signal PP montre des variations nettes à partir desquels nous pouvons obtenir des informations sur l'état physico-chimique des phases solides et liquides composant le milieu. Dans l'éventualité où des lois empiriques robustes seraient établies, nous pourrions également envisager de déterminer la concentration initiale en calcite d'un échantillon de roche, en étudiant le temps d'arrivée de la rupture de pente dans le signal de $\sigma_{eff}^{"}$ mesuré sur cet échantillon lors d'une injection de CO₂.

3.2.3 Conclusions

Dans cette section, nous avons montré que le modèle mécanistique développé par Leroy et al. (2008) peut reproduire les spectres de conductivité en quadrature mesurés à l'état initial de nos expériences, moyennant l'ajustement de certains paramètres. Dans la gamme des hautes fréquences notamment (f > 1 kHz), les mesures peuvent être ajustées en attribuant au milieu modélisé une permittivité diélectrique très élevée.

En développant un modèle empirique focalisé sur les hautes fréquences, nous avons établi des relations empiriques reliant les valeurs de conductivité en quadrature mesurées avec la conductivité électrique de l'eau saturante et une diminution du niveau de saturation à $S_{eau} \approx$ 0,98. Ce modèle empirique à ensuite été couplé au code de transport réactif FEHM, développé au LANL.

Les exemples 1 et 2 d'application de ce couplage montrent que les paramètres de la simulation FEHM doivent encore être calibrés pour reproduire plus fidèlement les mesures observées. L'exemple 3 propose un aperçu du type d'étude que l'approche duale transport réactif / modélisation de la réponse PP permet de mener.

3.3 Discussion sur les valeurs mesurées et modélisées aux hautes fréquences

La réponse hautes fréquences du système (f > 1 kHz) nous intéresse donc particulièrement puisque c'est elle qui présente la plus grande sensibilité aux modifications physico-chimiques induites par une injection de CO₂. En nous appuyant entre autres sur les résultats de nos travaux de modélisation, nous proposons dans cette section des éléments d'interprétation pour expliquer la forme et l'ampleur de la réponse en conductivité en quadrature observée aux hautes fréquences (f > 1 kHz), ainsi que l'origine des phénomènes de polarisation impliqués.

Pour ajuster le modèle mécanistique de Leroy et al. (2008) (section 3.2.1) dans la gamme des hautes fréquences (f > 1 kHz), nous avons modifié le terme ε_i (équation 4.21), défini dans Leroy et al. (2008) comme la permittivité diélectrique interne de la particule. Sans cette modification, et malgré la prise en compte des effets de la polarisation Maxwell-Wagner, les valeurs de conductivité en quadrature modélisées sont systématiquement trop faibles par rapport aux valeurs mesurées.

Lors de la conception de notre modèle empirique linéaire (section 3.2.2), l'ajustement aux hautes fréquences a impliqué d'utiliser des valeurs de la partie réelle de la permittivité complexe (ε') très élevées (permittivités relatives ε_r allant de 100 jusqu'à 1000)

Ainsi, le modèle mécanistique de Leroy et al. (2008) sous-estime la partie haute fréquence des spectres de conductivité en quadrature que nous avons mesurés lors de nos expériences. Cette différence suggère deux possibilités :

- 1. Soit le modèle sous-estime effectivement la réponse PPS du système aux hautes fréquences, de par sa définition, et nécessite d'être modifié.
- 2. Soit les mesures effectuées aux hautes fréquences sont impactées par des effets instrumentaux (couplage EM, polarisation d'électrode...) qui amplifient les valeurs mesurées aux hautes fréquences.

Il est également possible d'envisager que ces deux causes agissent simultanément. Les sections suivantes proposent des éléments d'études et quelques références bibliographiques pour étayer chacune des deux hypothèses.

3.3.1 Hautes valeurs de permittivité diélectrique

La polarisabilité d'un milieu est fonction des propriétés électromagnétiques de ses composants, mais aussi de leur géométrie et de leur orientation par rapport à l'orientation du champ électrique appliqué (e.g. Comparon, 2005).

Or le modèle de Leroy et al. (2008) décrit la polarisation d'un milieu composé de sphères parfaites. Les grains de sable qui composent notre milieu ne sont eux, pas parfaitement sphériques. Nous émettons donc l'hypothèse que le modèle sous-estime au moins partiellement les mesures, car il ne prend pas en compte l'effet de la géométrie des particules sur la polarisation globale du milieu.

En effet, pour ajuster le modèle mécanistique de Leroy et al. (2008) et pour construire notre modèle empirique, nous avons dû dans les deux cas conférer à notre milieu des propriétés diélectriques particulièrement élevées. Or un certain nombre de travaux dans la littérature font justement état de telles "*anomalies de haute permittivité diélectrique*", conséquences de la présence de particules non sphériques dans le milieu (e.g., Sen, 1981; Mendelson and Cohen, 1982; Jones and Friedman, 2000). Ainsi, les modifications et choix que nous avons effectués pour ajuster le modèle mécanistique et construire notre modèle empirique trouvent dans ce constat une justification au moins qualitative.

Quelques éléments théoriques

Afin d'étudier l'influence de la forme des particules sur la réponse diélectrique d'un milieu, la plupart des auteurs travaillent sur le cas de particules ellipsoïdales plus ou moins aplaties, d'orientations variées par rapport au champ appliqué. Les facteurs de dépolarisation ont été introduits pour décrire la façon dont la polarisation varie en fonction de la forme d'une particule et de son orientation. Dans le cas d'un ellipsoïde quelconque on a (Landau and Lifshitz, 1960) :

$$N^{i} = \int_{0}^{\infty} \frac{(abc) \, du}{2 \, (u+i^{2}) \, \sqrt{(u+a^{2}) \, (u+b^{2}) \, (u+c^{2})}} \tag{4.42}$$

où i=a,b ou c; a,b,c étant les demi axes de l'ellipsoïde (figure 4.65)





Ainsi définis, les trois facteurs de dépolarisation N^a , N^b et N^c sont tels que :

$$N^a + N^b + N^c = 1$$

Pour caractériser la forme des ellipsoïdes étudiés, la plupart des auteurs utilisent également le facteur de forme α , ou "aspect ratio" qui caractérise "l'aplatissement" de l'ellipsoïde selon certains de ses axes.

$$\alpha_{a,b} = \frac{a}{b}$$

Les modèles diélectriques (e.g., modèle cohérent, auto-cohérent, modèle de Sen et al. (1981)) peuvent alors être étendus au cas d'inclusions ellipsoïdales. Nous ne présentons pas le détail de ces expressions ici, mais le lecteur pourra se référer aux travaux de thèse de Comparon (2005), qui propose un résumé très complet des modèles diélectriques existants et des expressions associées à l'extension de ces modèles au cas d'inclusions ellipsoïdales.

Anomalies de hautes permittivité diélectriques

En étudiant les propriétés diélectriques de différents géo-matériaux, un certain nombre d'auteurs ont pu observer que la partie réelle de la permittivité diélectrique complexe pouvait présenter des valeurs anormalement élevées aux fréquences de l'ordre du kHz, qui correspondent bien à notre gamme de fréquences d'intérêt (N.B.: en spectroscopie diélectrique, le kHz est considéré comme les "basses fréquences" puisque les fréquences de mesures peuvent aller jusqu'à plusieurs GHz).

De telles anomalies de hautes permittivité diélectriques aux fréquences "basses" ($f \approx 1$ kHz) sont observées depuis longtemps (e.g., Smith-Rose, 1934; Keller et al., 1959; Howell and Licastro, 1961).

Elles sont alors généralement considérées comme la conséquence d'erreurs expérimentales. Scott et al. (1967) attribuent l'origine de ces erreurs aux électrodes de mesure utilisées. Ils proposent alors l'utilisation d'électrodes impolarisables pour réduire ces effets. Avec de telles électrodes, ils mesurent sur des roches saturées en eau des constantes diélectriques effectivement inférieures à celles obtenues sans électrodes impolarisables. Cependant, les valeurs de constantes diélectriques relatives obtenues restent tout de même significativement élevées (de l'ordre de 2000 à une fréquence de 1 kHz).

Depuis, de nombreuses études expérimentales ont confirmé l'existence de ces anomalies. Citons par exemple Poley et al. (1978), qui mesurent sur des roches sédimentaires des valeurs de permittivité relatives de l'ordre de 10^4 à une fréquence de 1 kHz. Kenyon (1984) observent également sur des échantillons de roche calcaire une très forte augmentation de la permittivité diélectrique de l'échantillon lorsque la fréquence de mesure diminue vers des valeurs de l'ordre du kHz. Garrouch and Sharma (1994) étudient les propriétés diélectriques de grés de Berea, de roches et de sables argileux. A la fréquence f = 10kHz, ils mesurent des constantes diélectriques entre 10^3 et 10^4 , et observent des relations avec la capacité d'échange cationique de la roche (CEC), le contenu en argiles et la salinité du fluide saturant. Lorsque ces trois paramètres augmentent, les valeurs de hautes constantes diélectriques augmentent aussi.

Sen (1981) montre que ces anomalies de haute permittivité peuvent être induites par la présence dans le milieu de particules plates, même en faibles concentrations. Il est parmi les premiers à démontrer théoriquement que des effets géométriques peuvent suffire à provoquer de grandes valeurs de permittivité diélectrique réelle. Jones and Friedman (2000) explorent la même question, en étudiant plus en profondeur l'influence de l'orientation de particules sur les valeurs de permittivité mesurées. Tabbagh et al. (2009) tentent, au travers de travaux de modélisation, de déterminer l'amplitude maximale des phénomènes de polarisation observables en présence de particules plates (représentant des feuillets d'argiles). En substance, ils appliquent la méthode des moments (Tabbagh et al., 2002; Cosenza and Tabbagh, 2004) afin de calculer la réponse en permittivité effective d'un ensemble de cellules polarisables ou non, en considérant les champs secondaires produit par chacune des cellules composant le milieu. Ils montrent qu'une permittivité relative effective de 1400 est obtenue avec un sol saturé en eau, une permittivité moléculaire relative de 30, un coefficient de platitude de 100 (particule 100 fois plus longue qu'épaisse) et une concentration en cellules polarisantes de 30 %. A priori, avec un coefficient de platitude bien plus faible, mais une concentration en cellules polarisantes de 100%, il est tout à fait possible d'obtenir des valeur de permittivité relative du même ordre de grandeur que celles utilisées pour la construction de notre modèle empirique (Alain Tabbagh, communication personnelle). Ce dernier exemple vise à illustrer l'hypothèse suivante : "la non-sphéricité des grains de sable qui composent nos milieux d'étude est peut être partiellement responsable des hautes valeurs de permittivité diélectrique nécessaires pour ajuster le modèle mécanistique de Leroy et al. (2008) et construire notre modèle empirique".

Evolution des propriétés diélectriques d'un milieu avec la saturation et la conductivité électrique du fluide saturant.

Dans les deux modèles présentés précédemment, une fois ajustés, les valeurs de permittivité diélectrique augmentent linéairement avec la conductivité du fluide saturant, et diminuent avec la saturation en eau du milieu, selon une relation que n'avons pu identifier. Si l'on considère acquise l'idée que notre milieu présente des propriétés diélectriques élevées dans cette gamme de fréquences à cause de la géométrie non sphérique des grains, il convient de vérifier que les propriétés diélectriques suivent bien les tendances citées plus haut.

Tout d'abord, l'influence de la saturation en eau est assez claire dans la littérature. La loi empirique de Topp (Topp et al., 1980) est en accord avec la tendance proposée. Knight and Nur (1987); Levitskaya and Sternberg (1996); Gardner et al. (1998) montrent aussi clairement cette tendance pour différents types de sol. A f = 1 kHz, Tabbagh (1994) mesure sur un sol sableux argileux des permittivités effectives de l'ordre de 2 si la saturation en eau est de $S_{eau} = 0,03$. Les valeurs mesurées sont de l'ordre de 100 pour une saturation de $S_{eau} = 0,148$, et 1000 si l'échantillon est saturé à $S_{eau} = 0, 43$. Quand bien même le sol étudié contient des argiles, qui participent nécessairement à l'ampleur valeurs mesurées, il est clair qu'à une saturation totale en eau (comme c'est le cas dans nos expériences), l'échantillon présenterait des valeurs de permittivité bien supérieures à celles que nous avons été amené à utiliser pour ajuster nos modèles. En excluant la contribution des argiles, il est raisonnable de penser que la tendance, mais aussi l'ordre de grandeur de nos observations expérimentales sont en accord avec les observations de Tabbagh (1994). Les mesures de permittivité diélectrique effectuées par Gomaa et al. (2008) sur des grès hématitiques montrent aussi la même tendance avec la saturation en eau, et des ordres de grandeurs similaires. Finalement, le simple fait que nos expériences se déroulent sur des milieux totalement saturés en eau semble également justifier l'observation de hautes valeurs de permittivité diélectrique. Par ailleurs, les relations entre permittivité et saturation décrites dans la littérature sont en accord avec la modélisation d'un "décrément de permittivité" induit par l'injection de gaz.

L'influence de la conductivité du fluide sur les valeurs de permittivité diélectrique des géomatériaux est également bien établie dans la littérature. Plus le fluide est conducteur, plus les valeurs de permittivité mesurées sont élevées, ce qui est en accord avec nos observations expérimentales et nos travaux de modélisation. Parmi les travaux qui corroborent cette tendance, nous pouvons citer Sen (1981), Garrouch and Sharma (1994) ou encore Lasne et al. (2008). La nature de la relation entre conductivité du fluide et permittivité relative du milieu n'est toutefois pas clairement appréhendée dans ces travaux. Dans la conception de notre modèle empirique, nous avons introduit une relation linéaire entre conductivité du fluide et partie réelle de la permittivité complexe du milieu. Les travaux de Hilhorst (2000), corroborés par Persson (2002), proposent eux l'existence d'une relation linéaire entre la constante diélectrique et la conductivité apparente du milieu (bulk conductivity). Si l'on s'appuie sur la relation de proportionnalité entre conductivité apparente et conductivité du fluide décrite par la première loi d'Archie, alors notre modèle empirique linéaire est au moins qualitativement en accord avec les travaux de Hilhorst (2000).

3.3.2 Effets instrumentaux

Dans cette section nous essayons d'évaluer l'impact d'éventuels effets instrumentaux sur nos mesures, et notamment sur la partie haute fréquence du spectre PPS.

Mesures sur des résistances pures

En théorie, le spectre de déphasage mesuré sur une résistance pure doit être parfaitement nul sur toute la gamme de fréquences puisque celles-ci ne possèdent aucune propriété capacitive ou inductive. Dans la pratique, on mesure pourtant des déphasages non négligeables, notamment vers les hautes fréquences. Ces déphasages ont plusieurs origines potentielles :

- 1. Influence du bruit ambiant lié à l'environnement du laboratoire (machine en fonctionnement, système d'aération etc...).
- 2. Influence de l'électronique propre à l'appareil d'acquisition.
- 3. Influence du problème de *réjection du mode commun*, problème bien connu en électronique.
- 4. Influence du couplage électronique entre les câbles de mesure et les câbles d'injection.

Les points 1 et 2 sont simplement le résultat d'éventuelles perturbation du signal mesuré par des champs électro-magnétiques secondaires, qui peuvent aussi bien être généré par des appareils en fonctionnement aux alentours du système d'acquisition que par l'électronique interne à l'appareil d'acquisition.

Le point 3 fait référence au rejet par un amplificateur différentiel de la tension commune à ses deux entrées. Ce point sensible est tout particulièrement dépendant de la qualité de conception de l'appareil d'acquisition, car les constructeurs sont conscients de son existence et tentent généralement d'optimiser leur système pour réduire cet effet au maximum. Le type d'amplificateur différentiel utilisé joue notamment un rôle important. Dans ses travaux de thèse, Okay (2011) a pu observer l'influence de ce phénomène sur des mesures effectuées avec un SIP-FUCHS II (version antérieure au SIP-FUCHS III, Radic-Research), sur des résistances pures. Pour résumer, le phénomène survient dans la gamme de résistances 1 Ω - 500 Ω , et la perturbation est d'autant plus plus forte la résistance utilisée est faible.

Enfin, l'influence de l'impédance mutuelle des câbles (point 4) peut également être responsable de perturbations lors de mesures sur des résistances pures. Dans notre cas cependant, cet effet est limité car nous avons systématiquement utilisé des câbles coaxiaux blindés pour la mesure du potentiel.
Pour vérifier l'influence des différents phénomènes décrits précédemment, nous avons effectué des mesures sur des résistance pures allant de 30 Ω à 660 Ω . Cette gamme de résistances couvre la gamme de résistivités des milieux sur lesquels nous avons effectué nos mesures, laquelle va approximativement de 35 Ω .m à 200 Ω .m. La figure 4.66 présente les spectres fréquentiels du déphasage obtenus pour la gamme de fréquences [0,5 Hz - 20 kHz].



FIGURE 4.66 – Spectres fréquentiels du déphasage mesurés avec le SIP FUCHS III sur des résistances pures de 30, 68, 150, 330 et 660 Ω . Les erreurs calculées par l'appareil sont inférieures à la taille des symboles

On observe clairement une augmentation du déphasage avec la fréquence, et cette augmentation est d'autant plus marquée que la valeur de la résistance utilisée est élevée.

Ainsi, à la vue de ces données, on peut exclure le problème de réjection du mode commun comme perturbateur potentiel des mesures. En effet, ce phénomène est censé être de plus en plus marqué lorsque la résistance mesurée diminue, comme l'a observé Okay et al. (2010). Or on observe ici la tendance inverse.

L'impédance mutuelle des câbles d'injection et de mesure ne peut *a priori* être tenue responsable des déphasages observés puisque nos câbles de mesure sont blindés, et ne peuvent ainsi émettre ou recevoir aucun flux inductif.

Les déphasages observés aux hautes fréquences sont donc probablement induits par l'environnement du laboratoire et/ou par l'électronique composant l'appareil d'acquisition lui-même. Quoiqu'il en soit, l'information à retenir de cette étude est que les perturbations observées sont tout à fait négligeables par rapport aux mesures effectuées lors de notre campagne d'expériences. Parmi toutes les expériences réalisées lors de cette campagne, l'expérience E7 est celle qui présente les plus faibles valeurs de déphasage sur tout le spectre fréquentiel. La résistivité du milieu est de l'ordre de 200 Ω .m La figure 4.67 propose une représentation comparative entre le déphasage mesuré à l'état initial de l'expérience E7 avec le déphasage mesuré sur la résistance de 330 Ω (à peu près équivalente en terme de capacité de conduction). Il est très clair d'après cette figure que l'ampleur des signaux observés aux hautes fréquences lors de nos expériences n'est pas due à une perturbation du signal par les phénomènes décrits précédemment.



FIGURE 4.67 – Spectres fréquentiels du déphasage mesurés avec le SIP FUCHS III sur des résistances pures de 30, 68, 150, 330 et 660 Ω . Les erreurs calculées par l'appareil sont inférieures à la taille des symboles

Il est également important de vérifier que les variations du signal PP observées lors de nos expériences d'injection de CO₂ ne sont pas non plus induites par les effets instrumentaux observés sur des résistances. Etudions le cas spécifique des déphasages mesurés à la fréquence f = 12 kHz. La figure 4.68 montre que le déphasage mesuré à f = 12 kHz évolue avec la valeur de résistance selon une simple loi de puissance qui épouse très bien les points de mesure (coefficient de régression R=0.99786). En l'occurrence, ceci est également vrai pour chacune des fréquences de la gamme d'étude.

Au cours de nos expériences, à la fréquence f = 12 kHz, les processus de désaturation du milieu et de dissolution du CO₂ et/ou des carbonates induisent respectivement des variations de déphasage de l'ordre de 2 mrad et de 2 à 20 mrad. Les variations de résistivité associées sont elles - au maximum - de l'ordre de 7 Ω .m et 70 Ω .m (dans certaines expériences elles sont quasiment nulles).

On peut donc estimer l'impact des effets instrumentaux associés aux variations *maximales* de résistivité observées au cours de nos expériences en utilisant la loi de puissance détaillée à la figure 4.68.

Pour les processus de désaturation, on obtient :

$$\Delta \Phi_{dsaturation}^{max} = 0,019597 \times 7^{0,58439}$$
$$= 0,06 \text{ mrad}$$



FIGURE 4.68 – Spectres fréquentiels du déphasage mesurés avec le SIP FUCHS III sur des résistances pures de 30, 68, 150, 330 et 660 Ω . Les erreurs calculées par l'appareil sont inférieures à la taille des symboles

Et pour les processus de dissolution :

$$\Delta \Phi_{dissolution}^{max} = 0,019597 \times \mathbf{70}^{0,58439}$$
$$= 0,23 \text{ mrad}$$

Dans les deux cas, l'influence des effets instrumentaux décrits précédemment sont tout à fait négligeables par rapport aux variations effectivement mesurées lors des expériences.

Influence des électrodes

Le type d'électrodes utilisées pour effectuer les mesures peut avoir une influence non négligeable sur le signal. Le phénomène généralement invoqué est la polarisation des électrodes. L'accumulation des charges à l'interface électrode / échantillon produit des phénomènes de polarisation annexes qui vont s'ajouter à la réponse intrinsèque du milieu d'étude.

A priori, les signaux issus de nos expériences sont exempts de ces perturbations. En effet, nous avons systématiquement utilisé des électrodes impolarisables de type $Cu/CuSO_4$ (description détaillée en section 1.2), pour lesquelles les phénomènes d'interfaces sont grandement réduits par rapport à des électrodes métalliques.

Ensuite, la valeur absolue des effets de polarisation d'électrode diminue avec la fréquence (Gabriel et al., 1996). Si de tels effets sont présents dans nos expériences, ils devraient être plus marqués dans la partie basse fréquence du spectre que dans la partie haute, ce qui n'est pas le cas. Les hautes valeurs de conductivité complexe que nous observons au cours de nos expériences ne peuvent donc pas être attribuées à la polarisation d'électrode. Toutefois, dans la gamme des hautes fréquences (f > 1 kHz), des électrodes impolarisables peuvent avoir une influence sur le signal PPS si elles présentent une impédance de contact élevée (Zimmermann et al., 2008). Cet impact est d'autant plus important que le milieu d'étude est peu conducteur (partiellement saturé, fluide faiblement minéralisé, Huisman et al. (2014)).

Il n'est pas donc pas exclu que nos électrodes aient effectivement une influence sur les signaux mesurés à haute fréquence. Nous avons étudié partiellement cette question lors d'une étude annexe, réalisée quelques mois après la campagne d'expériences en laboratoire. En substance nous avons pu observer que la partie haute fréquence du spectre de déphasage et/ou du spectre de conductivité en quadrature montrait probablement une dépendance vis-à-vis de la résistance intrinsèque (ou résistance de contact) de l'électrode. Cette étude partielle a consisté à effectuer des mesures sur un sable de Fontainebleau saturé en eau en utilisant des jeux d'électrodes impolarisables de type $Cu/CuSO_4$ de longueur différentes (figure 4.69).



FIGURE 4.69 – Photographie des 2 jeux de 4 électrodes impolarisables utilisées. Chaque électrode est composé d'un fil de cuivre plongé dans une solution sur-saturée en sulfate de cuivre, solidifiée avec l'ajout de gélatine alimentaire. Les filtres en contact avec le milieu sont des filtres poreux de marque Dionex. Les extrémités des électrode sont scellées avec une bouchon de colle entourant le fil de cuivre.

En modifiant la taille des électrodes (en l'occurrence leur longueur respectives), on modifie également leur résistance intrinsèque (Nicolas Florsch, communication personnelle). Avec ces deux jeux d'électrodes, nous avons réalisé des mesures sur un milieu composé de sable de Fontainebleau saturé en eau, avec deux valeurs différentes de conductivité électrique du fluide saturant ($\sigma_1 = 3,25 \text{ mS.cm}^{-1}$ et $\sigma_2 = 1,05 \text{ mS.cm}^{-1}$), et sur un milieu uniquement composé d'eau de conductivité électrique $\sigma_f = 2,73 \text{ mS.cm}^{-1}$. La figure 4.70 représente le système expérimental utilisé, à savoir un bac cylindrique d'une quinzaine de centimètres de profondeur et la configuration d'électrodes utilisée pour les mesures (dispositif en carré).

La figure 4.71 représente les spectres de conductivité en quadrature obtenus avec chacun des deux jeux d'électrodes pour les trois milieux d'études.

En premier lieu, on observe, comme lors de notre campagne d'expériences, que les valeurs



FIGURE 4.70 – Photographie du bac cylindrique utilisé pour les mesures. La position des électrodes est représentée par les ellipses noires. Les électrodes A et B sont utilisées pour l'injection de courant et les électrodes M et N pour la mesure du potentiel.

de conductivité en quadrature augmentent avec la conductivité électrique de l'eau saturante (graphique a), et plus généralement, avec la conductivité effective du milieu (eau ou eau + sable). On observe également qu'aux hautes fréquences, les valeurs de conductivité en quadrature mesurées sont plus importantes avec les grandes électrodes qu'avec les petites. C'est également le cas pour le milieu composé uniquement d'eau, bien que le graphique de la figure 4.71 ne permette pas de le visualiser correctement. En outre, cet effet est également visible sur les spectres de déphasage (graphique c) de la figure 4.71, alors que l'amplitude ne varie pas ou très peu.

Ces résultats suggèrent que les caractéristiques géométriques de l'électrode ont bien une influence sur les signaux mesurés à haute fréquence. Une électrode plus longue induit une augmentation de la conductivité en quadrature mesurée. Le fait que les spectres de phase présentent le même comportement alors que les valeurs d'amplitude ne sont pas impactées démontre que cette influence est le résultat de phénomènes capacitifs ou inductifs.

A priori, les deux types d'électrodes sont sujets à des phénomènes de polarisation d'électrode négligeables (électrode impolarisables) ou au moins de même ampleur (puisqu'elle sont constituées de la même façon). Les variations observées ne sont donc pas liées à des phénomènes de polarisation à l'interface électrode / électrolyte, mais bien aux propriétés géométriques intrinsèques de l'électrode. Plus elles sont longues, c'est-à-dire plus elles possèdent une résistance intrinsèque élevée, plus elles induisent une augmentation des valeurs de conductivité en quadrature aux hautes fréquences.

Il est donc légitime de se demander quelle serait la réponse du milieu avec des électrodes « idéales », i.e., exemptes de phénomènes de polarisation à l'interface électrode / milieu d'étude, et dont la géométrie n'influe pas sur la réponse haute fréquence du système. Si nous ne pouvons répondre à cette question pour l'instant, nous pouvons toutefois commenter les 2 possibilités "extrêmes" issues des constats précédents.

1. Effet négligeable : s'il s'avère que la réponse "idéale" du milieu n'est pas très éloignée de la réponse observée avec nos électrodes, alors les variations observées tout au long de notre campagne d'expériences sont à associer directement à une modification des



FIGURE 4.71 – Représentation des spectres fréquentiels de la conductivité en quadrature σ'' mesurés avec les 2 jeux d'électrodes sur 3 milieux différents : eau salée (NaCl) de conductivité $\sigma_f = 2,73 \text{ mS.cm}^{-1}$ (symboles circulaires), sable de Fontainebleau saturé en eau de conductivité $\sigma_f = 3,25 \text{ mS.cm}^{-1}$ (symboles rectangulaires), et sable de Fontainebleau saturé en eau de conductivité $\sigma_f = 1,05 \text{ mS.cm}^{-1}$ (symboles triangulaires). Les symboles pleins correspondent aux petites électrodes et les symboles vides aux grandes électrodes.

propriétés intrinsèque du milieu étudié. En l'occurrence, on pourra alors s'appuyer sur l'hypothèse développée précédemment, qui suppose un milieu caractérisé par des valeurs de permittivité diélectrique réelle très élevées, qui varient avec l'état physico-chimique du milieu.

2. Effet prépondérant : dans le cas opposé où les électrodes sont principalement responsables de la forme des signaux observés aux hautes fréquences, c'est-à-dire que le spectre "idéal" est très éloigné du spectre effectivement mesuré, alors l'hypothèse "diélectrique" précédemment citée serait invalidée. Dans ce cas, cela signifierait que la forme des signaux et leur dépendance à l'état physico-chimique du milieu (les variations observées) soient le résultat d'une interaction entre le milieu d'étude et l'électrode utilisée. Cette situation

mettrait en évidence un phénomène extrêmement intéressant, qui confèrerait aux électrodes un statut non plus de capteur passif, mais de *capteur actif*, amplificateur, d'une sensibilité telle que les variations physico-chimiques survenant au sein du milieu d'étude (désaturation, phénomènes de dissolution) provoquent des variations de la conductivité en quadrature σ'' mesurée bien plus marquées que celles de la conductivité en phase σ' , proche de la valeur "réelle" du milieu (comme nous avons pu l'observer dans notre campagne d'expériences).

L'hypothèse d'une interaction entre les électrodes et le milieu d'étude est également renforcée si l'on observe le spectre de conductivité en quadrature mesuré sur un milieu composé uniquement d'eau. En théorie, quelle que soit sa conductivité électrique, l'eau ne présente aucune propriété polarisante dans cette gamme de fréquences. La partie imaginaire de la conductivité complexe de l'eau s'écrit alors :

$$\sigma_e^{''}au = \omega\varepsilon^{'} \tag{4.43}$$

où ω est la fréquence angulaire (en Hz), et ε' est la constante diélectrique de l'eau, qui elle même est très faiblement dépendante de la salinité.

Si l'on compare la réponse théorique en conductivité en quadrature de l'eau avec la réponse mesurée, on observe une grande différence (figure 4.72). La forme du spectre est la même, mais le spectre des mesures présente une amplitude de 4 ordres de grandeur supérieure au signal théorique. Bien que nous ne disposions pas de mesures sur de l'eau de conductivité plus faible, il est fort probable que des mesures effectuées sur des eaux de conductivité plus faible produisent des spectres de conductivité en quadrature d'amplitude intermédiaire à ceux représentés sur la figure 4.72.

3.3.3 Conclusion

Les observations précédentes soulignent l'importance fondamentale de la question de l'influence des électrodes dans l'interprétation de la partie haute fréquence du spectre de conductivité en quadrature. En particulier, l'utilisation d'électrodes impolarisables ne permet pas nécessairement de s'affranchir d'effets géométriques liés aux dimensions de l'électrode. En perspective de ces travaux de thèse nous envisageons une étude approfondie de cette problématique, à travers des tests impliquant un plus grand nombre de type d'électrodes (Platine, Ag/AgCl, Cu/CuSO₄, cuivre, acier inoxydable, bronze etc..). En disposant d'un grand panel d'électrodes, caractérisées par différentes résistances intrinsèques, et en étudiant des milieux de nature variée (eau, sables ou roches partiellement ou totalement saturées etc..), sur de larges gammes de conductivité effective, nous espérons améliorer notre compréhension de cette problématique.



FIGURE 4.72 – Comparaison entre le spectre de conductivité en quadrature théorique de l'eau (symboles en croix) avec les spectres mesurés sur un milieu composé d'eau salée (NaCl) de conductivité $\sigma_f = 2,73 \text{ mS.cm}^{-1}$ (symboles circulaires). Les symboles pleins correspondent aux petites électrodes et les symboles vides aux grandes électrodes.

3.4 Conclusions

Au sein de cette section, nous avons tout d'abord proposé des éléments d'interprétation pour expliquer les valeurs de conductivité en quadrature σ'' observées aux moyennes fréquences (1 Hz – 100 Hz) lors des expériences. Nous émettons l'hypothèse que dans cette gamme de fréquences, σ'' est principalement contrôlée par la conductivité de surface des minéraux. Cette hypothèse permet d'expliquer les importants écarts observés entre le sable carbonaté et le sable de Fontainebleau à l'état initial des expériences. Elle est également concordante avec la diminution de la conductivité en quadrature observée lors de l'injection de CO_2 dans du sable de Fontainebleau, que l'on attribue alors à la diminution du pH et/ou à l'augmentation de la force ionique de l'eau saturante.

Ensuite, nous avons entrepris des travaux de modélisation, avec pour objectif de reproduire les variations de la conductivité en quadrature observées lors de nos expériences. A partir du modèle mécanistique de Leroy et al. (2008), nous sommes parvenus à reproduire la forme des spectres observés à l'état initial des expériences sur toute la gamme de fréquences investiguée (10 mHz - 20 kHz).

Nos observations expérimentales nous ont conduit à nous intéresser particulièrement à la modélisation de la réponse PPS dans la gamme des hautes fréquences (f > 1 kHz). A l'aide d'un modèle linéaire, nous avons pu reproduire la dépendance fréquentielle de la conductivité en quadrature effective de nos milieux d'étude, et établir des relations empiriques entre la réponse aux hautes fréquence et certains paramètres physico-chimiques caractéristiques de nos

milieux d'étude. Le couplage de ce modèle empirique simple avec un code de transport réactif peut permettre de prévoir la réponse PPS de systèmes similaire à ceux de nos expérience, et d'étudier l'influence de nombreux paramètres expérimentaux.

L'ensemble de ces travaux a soulevé la possibilité d'expliquer les hautes valeurs de conductivité en quadrature observées par des hautes valeurs de la partie réelle de la permittivité complexe. Un certain nombre de travaux disponibles dans la littérature permettent d'appuyer cette hypothèse. Cependant, nous avons montré que la géométrie des électrodes utilisées peut également provoquer des variations non négligeables sur les valeurs de conductivité en quadrature mesurées. La quantification de ces effets géométriques s'impose donc comme un objectif d'importance. Chapitre 5

Expériences sur le terrain - ERT et PP

1 Introduction - site expérimental

Au cours des précédents chapitres, nous avons développé, au travers d'expériences en milieu contrôlé et de travaux de modélisation, notre compréhension des phénomènes physico-chimiques qui peuvent être provoqués par un transfert de CO_2 dans un sol. Nous avons notamment étudié les implications de ces phénomènes sur la réponse électrique d'un sol, par la méthode de tomographie de résistivité électrique et la méthode de polarisation provoquée. L'objectif de ce chapitre est de prolonger notre étude, à un cas de terrain.

Nous présentons ici les résultats de trois expériences de terrain que nous avons effectuées pendant les mois de juin et juillet 2013. L'objectif de ces expériences est d'évaluer les capacités respectives des méthodes de prospection en tomographie de résistivité électrique (ERT), en polarisation provoquée temporelle (PPT), et en polarisation provoquée spectrale (PPS), à détecter et à suivre l'évolution d'une injection de CO₂ gazeux à faible profondeur ($\approx 5, 5$ m).

1.1 Présentation du site d'étude

Ces expériences ont été réalisées sur le site de l'observatoire IPGP de St-Maur-des-Fossés (94), qui regroupe différentes équipes et bâtiments de travail répartis sur un terrain de 4 hectares (figure 5.1).





Sur ce terrain, une parcelle herbeuse d'environ 10 m de large et 20 m de long nous a été allouée pour effectuer nos expériences. La figure 5.2 montre un plan schématique en vue aérienne détaillant approximativement les dimensions de la parcelle, ainsi que les éléments qui l'entourent. Parmi ces éléments environnants, on notera notamment la présence d'un bâtiment, d'un chemin en béton, et d'une ligne électrique située de l'autre côté du mur d'enceinte. Lors d'une étude réalisée 2 ans avant nos expériences (c.f. section 1.2), un puits permettant l'injection de gaz a été foré au centre de la parcelle.



FIGURE 5.2 – Vue en plan du site d'étude et des éléments environnants, accompagné de photos. Les cercles rouges A et B indiquent les endroits où ont été prises les photos. Le point noir au milieu de la parcelle représente la tête du puits d'injection de CO_2 .

La composition géologique du terrain n'est pas bien connue. Nous avons effectué des tentatives de prélèvements à l'aide d'une tarrière manuelle, mais nous ne sommes pas parvenus à forer en dessous des 40 premiers centimètres, lesquels sont essentiellement constitués de terre. En dessous, une couche qui semble composée de gravier grossiers complique le forage. D'après le témoignage du gardien du site, cette couche aurait été mise en place lors de travaux de remblaiement effectués il y a une vingtaine d'années. L'extension de la couche de graviers en question reste cependant indéterminée. D'après les cartes géologiques du BRGM, le site de l'observatoire est localisé à la frontière entre une zone constituée principalement de roches marneuses et d'une zone calcaire. La parcelle de terrain sur laquelle nous avons travaillé est localisée à l'aplomb de cette frontière. Il nous est donc difficile de statuer avec certitude sur la composition des roches majoritaires.

Des relevés piézométriques ont été effectués par l'intermédiaire du puits d'injection de gaz. Nous avons pu descendre notre sonde jusqu'à 4 m de profondeur, sans jamais atteindre la zone saturée. Nous verrons par la suite que la profondeur d'investigation de nos méthodes géoélectriques est inférieure à 4 m, en conséquence de quoi le volume de sol que nous avons exploré est *a priori* situé dans la zone non-saturée.

1.2 Etude préliminaire sur le site - Blanco et al., 2013.

En décembre 2011, Blanco et al. (2013), ont réalisé une expérience similaire aux nôtres. Leur étude a porté sur le monitoring 4D d'une injection de CO_2 à faible profondeur par la méthode de tomographie de résistivité électrique. Pour effectuer cette expérience, un quadrillage d'électrodes composé de 7 lignes de 16 électrodes, espacées de 1 m, a été mis en place (figure 5.4). Le CO_2



Carte géologique de la zone d'étude (BRGM)

FIGURE 5.3 – Carte géologique de la zone d'étude. La parcelle de terrain sur laquelle nous avons travaillé se situe approximativement à la frontière entre la zone marneuse et la zone calcaire. Extrait et modifié d'après les données du réseau InfoTerre (BRGM). http://infoterre.brgm.fr/

gazeux est injecté à une profondeur de 5,5 m grâce à un puits d'injection vertical fait d'un tuyau en plastique intégré dans tube en métal rempli d'argile (pour empêcher la remontée du CO₂ le long du puits d'injection).



FIGURE 5.4 – Schéma en perspective du dispositif d'électrode mis en place par Blanco et al. (2013). Le puits d'injection de CO_2 fait 5,5 m de profondeur. Extrait de (Blanco et al., 2013).

L'expérience a ensuite consisté en l'injection de 5 kg de CO_2 gazeux à une pression de 0,9 bar. La période d'injection totale est de 2 heures et 30 minutes, et les acquisitions ERT sur chaque ligne sont effectuées jusqu'à 1 heure après la fin de l'injection. Le protocole de mesure appliqué à chaque ligne d'électrode est de type Wenner-Schlumberger.

Sur le graphique a) de la figure 5.5, on peut observer les sections de résistivité obtenues après une inversion time-lapse des mesures issues de la ligne d'électrode L4 (la plus proche de la tête du puits d'injection). Les 2 sections supérieures montrent respectivement les distributions de résistivité obtenues au temps T0 (pré-injection) et T1 (≈ 8 min après le début de l'injection), et la section inférieure montre le pourcentage de variation de résistivité entre la dernière mesure (T = +3h10) et la mesure de l'état initial (T=T0). Les changements de résistivité induits par l'injection de CO₂ sont significatifs, on observe une diminution de l'ordre de 7% de la



a) Résultats d'une inversion time lapse sur les mesures de la ligne d'électrodes centrale

b) Interprétation 4D de l'ensemble des données avec le logiciel Blender



FIGURE 5.5 - a) Résultats de l'inversion time-lapse des données issues de la ligne d'électrode la plus proche du point d'injection (ligne L4 sur la figure 5.4). b)Prise de vue d'une interprétation 4D effectuée avec le logiciel Blender. Le panache de CO₂ atteint la surface au bout de 4 h. Modifié d'après (Blanco et al., 2013).

résistivité dans la zone centrale à l'aplomb du point d'injection. Blanco et al. (2013) attribuent cette diminution à la dissolution d'une partie ou de tout le CO_2 injecté. Les phénomènes de dissolution induisent une augmentation de la conductivité électrique du fluide saturant et donc une diminution de la résistivité du milieu. Ils n'apportent cependant pas de preuve indiscutable de l'origine physique de ces variations. En utilisant le logiciel Blender, Blanco et al. (2013) ont mis au point une reconstitution 4D de l'évolution du panache de CO_2 à partir des mesures sur l'ensemble de la grille d'acquisition. Cette interprétation suggère que le développement du panache de CO_2 suit une extension principalement latérale au cours de l'expérience, et n'atteint la surface qu'au bout de 4 heures (graphique b) de la figure 5.5).

1.3 Description générale des protocoles expérimentaux

Nous avons donc utilisé ce site expérimental pour effectuer trois études distinctes, consistant au suivi géo-électrique d'une injection de CO_2 gazeux par trois méthodes différentes : ERT, PPT et PPS. Pour chaque méthode une nouvelle injection de CO_2 est réalisée, et un intervalle de 15 jours a été respecté entre chaque étude afin de permettre au milieu un retour à un état d'équilibre stable.

Les études en ERT et PPT ont été réalisées sous la forme d'un monitoring en tomographie 2D. Le monitoring avec la méthode PPS a pris la forme d'un sondage vertical. Dans les trois cas, les électrodes sont disposées selon une ligne parallèle au bâtiment adjacent, décalée de 30 cm par rapport à la tête du puits d'injection (figure 5.6). Les configurations d'électrodes propres à chaque méthode de monitoring sont décrites plus en détail dans les sections correspondantes à chaque expérience.



FIGURE 5.6 – Photo représentant une ligne d'électrodes mise en place avec la méthode PPT lors de mesures préliminaires aux expériences. Toutes les configurations d'électrodes utilisées au cours de ces expériences (ERT, PPT et PPS) ont été disposées selon le même axe.

L'injection de CO₂ proprement dite se fait de façon continue, sur des périodes pouvant aller de 3 à 5 heures selon la méthode géo-électrique appliquée. Nous avons utilisé des bouteilles de CO₂ commerciales Air Liquide de type M20, d'une capacité de 8 m³. Pour toutes les expériences, la pression d'injection est contrôlée par un manomètre placé en série à la sortie du détendeur et maintenue à 0,75 bar, ce qui résulte en un débit d'injection moyen $Q_v = 1,066$ m³.h⁻¹.

Expérience	Débit injection $(m^3.h^{-1})$	Durée de l'injection (h)	Masse totale de CO2 injectée (kg)
ERT	1,066	3,6	7,2
\mathbf{PPT}	1,066	5,2	10,4
PPS	1,066	4,1	8,2

TABLE 5.1 – Résumé des paramètres d'injection relatifs à chaque expérience.

2 Tomographie de résistivité électrique - ERT Time lapse monitoring

2.1 Mesures préliminaires

Quelques jours avant de procéder à l'injection de gaz proprement dite, nous avons effectué des mesures ERT préliminaires afin d'obtenir un premier aperçu de la distribution de résistivités du sous-sol. Nous avons choisi d'effectuer une première tomographie 2D sur une ligne parallèle au bâtiment adjacent (Tom 1) et une seconde tomographie (Tom 2) selon une ligne diagonale qui fait un angle de 30° avec la ligne parallèle (figure 5.7). Ces deux tomographies visent à obtenir une évaluation "pseudo-3D" de la distribution de résistivités du sous-sol.



FIGURE 5.7 – Schéma en vue aérienne de la position des lignes d'électrodes des tomographies Tom 1 et Tom 2.

2.1.1 Paramètres d'acquisition

Comme expliqué en section 1.1.5 (p.59), l'appareil d'acquisition utilisé pour nos expériences en ERT est un Terramètre SAS 1000 connecté à un multiplexeur 64 canaux ES-1064 (ABEM). Les électrodes utilisées pour les acquisitions ERT sont des tiges d'acier inoxydables de 30 cm de long et de 1,5 cm de diamètre.

Les profils des tomographies Tom 1 et Tom 2 ont chacun une longueur L = 23,25 m (32 électrodes avec un espacement inter-électrode a = 0,75 m). Dans les deux cas, nous avons utilisé un protocole de mesure de type Wenner-Schlumberger. Ce protocole possédant une sensibilité aux variations de résistivité verticales et horizontales à peu près équivalente, nous avons jugé son utilisation pertinente pour une étude préliminaire.

2.1.2 Traitement des données - Inversion

En premier lieu, nous avons contrôlé le voltage mesuré et l'intensité du courant injecté pour chaque mesure. Dans 100 % des cas, la différence de potentiel mesurée est supérieure à 0,1 V et l'intensité du courant injecté est supérieure à 50 mA. Ces critères permettent, dans la plupart des cas, de s'assurer que le rapport signal sur bruit est suffisamment élevé pour que la mesure puisse être prise en compte (Myriam Schmutz, communication personnelle). Nous n'avons donc exclu aucune mesure.

Ensuite, nous avons appliqué à chacun des jeux de données brutes l'option "exterminate bad datum point" du logiciel d'inversion Res2DInv (c.f. section 1.1.5 p.59). Les points de mesure exclus par cette méthode sont peu nombreux (moins de 5%), et correspondent toujours à des points situés en surface, ou la discrétisation spatiale est fine.

Enfin, nous inversons les résistivités apparentes avec le logiciel Res2DInv, en utilisant une méthode d'inversion au sens des moindres carrés (smooth). Nous avons également appliqué une condition particulière à la discrétisation du modèle inversé. Généralement, la largeur des cellules du modèle est identique à l'espacement inter-électrodes. Dans notre cas la largeur des cellules correspond à la moitié de l'espacement inter-électrodes. Cette discrétisation plus fine permet de limiter l'influence des variations de résistivité observées en surface (parfois élevées) sur les blocs sous-jacents (manuel Res2DInv). Dans le cas d'un suivi temporel de plusieurs heures, les variations de température ont une influence sur la résistivité des premiers centimètres du soussol. La résistance de contact des électrodes peut également être légèrement modifiée. Or, près des électrodes, la sensibilité des mesures est la plus élevée. Des variations de la résistivité du sol en surface et/ou de la résistance de contact peuvent alors induire des variations significatives sur les blocs de surface qui se propageront plus ou moins significativement aux blocs plus profonds. Notre zone d'intérêt étant principalement les niveaux plus profonds, où l'on s'attend à détecter le panache de CO_2 , nous avons appliqué cette option de Res2DInv afin de limiter cet éventuel effet de propagation.

2.1.3 Résultats

La figure 5.8 montre les sections de résistivité obtenues après inversion sur les profils TOM 1 et TOM 2. Les contrastes de résistivité observés sur ces deux sections suggèrent un milieu stratifié avec au moins deux couches, dont l'interface se situerait entre les profondeurs z =1,5 m et z = 2 m. La section TOM 1 montre également un contraste de résistivité assez appuyé entre la partie gauche du profil (direction SUD) et la partie droite. Ce contraste révèle une composition du sol probablement différente dans cette partie de la section. La figure 5.9 représente la distribution des valeurs de sensibilité du modèle. La répartition est relativement classique, la sensibilité décroît avec la profondeur. Les hautes valeurs de sensibilité sur les bords du modèle sont des artefacts induits par le processus d'inversion.

Les figures 5.10 et 5.11 montrent deux vues isométriques des sections de résistivité TOM



FIGURE 5.8 – Sections de résistivité obtenues après inversion sur les profils Tom 1 et Tom 2.



FIGURE 5.9 - Distribution des valeurs de sensibilité relative des blocs du modèle inversé. Interpolation logarithmique. Plus la sensibilité est haute, plus la valeur de résistivité du bloc est plausible.

1 et TOM 2 avec leurs orientations respectives. Ce mode de représentation permet également de visualiser la stratification du terrain en 2 couches distinctes, et la zone de haute résistivité dans la direction "Sud" du profil TOM 1.

On notera que blocs localisés à la zone de croisement de chaque tomographie présentent des valeurs de résistivité concordantes. L'écart moyen entre les deux tomographies dans cette zone est d'approximativement 15 Ω .m.



FIGURE 5.10 – Vue isométrique des sections de résistivité Tom 1 et Tom 2, avec leurs orientations respectives. Le puits d'injection est représenté par un trait noir vertical. Le point de vue est du côté du bâtiment (c.f. figure 5.7).



FIGURE 5.11 – Vue isométrique des sections de résistivité Tom 1 et Tom 2, avec leurs orientations respectives. Le puits d'injection est représenté par un trait noir vertical. Le point de vue fait face au bâtiment (c.f. figure 5.7).

2.2 Suivi temporel lors d'une injection de CO₂

2.2.1 Protocole expérimental

Pour le suivi temporel de l'injection de CO_2 , nous avons choisi de mettre en place un profil de 16 m de long, parallèle au bâtiment et centré sur la tête du puits d'injection (c.f. 5.6). La ligne est composée de 24 électrodes espacées de 0,75 m chacune. Par rapport au profil utilisé lors des mesures préliminaires (23,25 m de long), cette disposition d'électrodes nous fait perdre en profondeur d'investigation. Cependant, le temps d'acquisition d'une section complète se trouve considérablement réduit. Avec un profil de 16 m de long, les séquences d'acquisition sont réduites. Pour un protocole Wenner-Schlumberger, on passe de 339 points de mesure $(T_{acquisition} \approx 25 \text{ min})$ à 160 points de mesure $(T_{acquisition} \approx 12 \text{ min})$

Ce compromis nous a permis d'effectuer le suivi temporel de l'injection de CO_2 avec deux protocoles d'acquisition différents (Wenner-Schlumberger et dipôle-dipôle) dont nous avons pu comparer l'efficacité, tout en conservant une discrétisation temporelle intéressante. Concrètement, lors de l'injection, on alterne successivement des acquisitions Wenner Schlumberger (WS) et dipôle-dipôle (DD) jusqu'à 3 h 30 après la coupure de l'injection. Le tableau 2.2.1 résume le planning temporel des mesures.

	Acq DD N°	Temps t (min)	Acq WS N°	Temps t (min)
Etat 0	DD_1	-23	WS_1	-11
Début injection		0		0
	DD_2	0	WS_2	11
	DD_3	23	WS_3	34
	DD_4	46	WS_4	57
	DD_5	69	WS_5	80
	DD_6	92	WS_6	103
	DD_7	115	WS_7	126
	DD_8	138	WS_8	149
	DD_9	161	WS_9	172
	DD_{10}	184	WS_{10}	195
Arrêt injection		215		215
	DD_{11}	207	WS_{11}	218
	DD_{12}	230	WS_{12}	241
	DD_{13}	253	WS_{13}	264
	DD_{14}	276	WS_{14}	287
	DD_{15}	299	WS_{15}	310
	DD_{16}	322	WS_{16}	333
	DD_{17}	345	WS_{17}	356
	DD_{18}	368	WS_{18}	379
	DD_{19}	391	WS_{19}	402
	DD_{20}	414	WS_{20}	425

TABLE 5.2 – Planning temporel des mesures. Les temps t correspondent au temps écoulé depuis le début de l'injection (t=0 min) et font référence au début de l'acquisition du profil en question (1^{er} point de mesure).

2.2.2 Résultats

Etat initial

Sur la figure 5.12 nous avons représenté les résultats de l'inversion des acquisitions de l'état initial de l'expérience, réalisées avec le protocole dipôle-dipôle et le protocole Wenner-Schlumberger. L'échelle de couleur utilisée pour représenter les résistivités est la même que celle des figures 3.62, 5.11 et 5.11. On constate que la distribution de résistivités obtenue le jour de l'expérience avec le protocole Wenner-Schlumberger est bien plus homogène que celle obtenue lors des mesures préliminaires. A l'état initial de l'expérience, toutes les valeurs sont comprises entre 100 et 200 Ω .m, alors qu'on observe des zones allant jusqu'à 300 Ω .m sur la section Tom 1. Il est possible que la profondeur d'investigation plus faible du protocole utilisé lors de l'expérience soit en partie responsable de ces différences. Le volume investigué lors des mesures prend moins en considération les zones aux bords de la section Tom 1, qui présentent les plus hautes valeurs de résistivité. Il est également possible que les différences observées soient dues au fait que les conditions de saturation du milieu le jour de l'expérience sont différentes de celle du jour des acquisitions préliminaires.

On observe également que les protocoles dipôle-dipôle (DD) et Wenner-Schlumberger (WS) produisent des sections de résistivité assez différentes. La distribution est relativement homogène pour le protocole WS alors que l'on observe des contrastes assez marqués pour le protocole DD (de quasiment 50 Ω .m à 200 Ω .m sur deux blocs voisins).



a) Etat initial : **Dipôle-dipôle**

FIGURE 5.12 – Représentation des distributions de résistivité inversés, issues des acquisitions à l'état préinjection de l'expérience avec le protocole dipôle-dipôle (graphique a) et le protocole Wenner-Schlumberger (graphique b).

Suivi temporel de l'injection de CO_2

Le suivi global de l'expérience est donc composé de 20 acquisitions avec le protocole dipôledipôle alternées avec 20 acquisitions Wenner Schlumberger (états initiaux compris). Pour chaque protocole, nous avons inversé les 20 jeux de données en utilisant le mode d'inversion time-lapse du logiciel Res2DInv. L'ensemble des 20 acquisitions sont inversées conjointement, en utilisant l'équation d'inversion time-lapse donnée par Kim et al. (2009). Effectuer une inversion conjointe permet de limiter le développement d'artefacts liés au bruit intrinsèque à chaque acquisition (e.g. Penz, 2012).

Sur les figures 5.13 et 5.14 nous avons représenté les résultats obtenus respectivement avec le protocole Wenner-Schlumberger et le protocole dipôle-dipôle. Pour chacune des 20 acquisitions, on calcule le pourcentage de variation de résistivité du modèle inversé par rapport à l'état initial (pré-injection), et ce pour chacun des blocs composant le modèle. Nous avons ensuite choisi de représenter les sections associées, à raison de 1 sur 2 dans l'ordre de leur acquisition.

Les résultats obtenus avec le protocole Wenner-Schlumberger (figure 5.13) révèlent des variations de résistivité relativement faibles (de 0 à 3 % en valeur absolue). On remarque cependant une tendance évolutive avec le temps. Sur la section correspondant à l'acquisition WS-2, on observe une diminution de résistivité assez nette dans la partie "droite-basse" de la section (couleur bleue). Lorsque l'injection progresse, cette zone de diminution s'estompe petit à petit, jusqu'à disparaître totalement à partir de l'acquisition WS-8. A partir de là, on observe une augmentation de la résistivité sur l'ensemble des blocs qui composent la section, qui semble s'accentuer avec le temps, jusqu'à la fin de l'expérience (acquisition WS-20).

Avec le protocole dipôle-dipôle (figure 5.14), les variations de résistivité observées sont légèrement supérieures (jusqu'à 5% en valeur absolue). La résistivité des blocs du modèle évolue de façon assez hétérogène, en correspondance avec les hétérogénéités observées lors de la mesure de l'état initial. Certains blocs en bas de la section suggèrent une diminution de résistivité, assez bien marquée au temps t = +46 min (acquisition DD-4), qui diminue ensuite progressivement d'amplitude, de façon analogue aux cas du protocole WS. Mais cet effet ne concerne qu'un ensemble de 4-5 blocs sur le niveau de blocs le plus bas, soit une zone peu étendue. Avec le protocole dipôle-dipôle, on observe majoritairement des augmentations de résistivité. Celles-ci sont particulièrement marquées dans la partie centrale de la section. On observe notamment une accentuation très nette de cette augmentation à partir de l'acquisition DD-12, qui suit la coupure de l'injection. La résistivité augmente alors de plus de 5% dans la zone centrale, par rapport à l'état initial, et semble se maintenir à ce niveau jusqu'à la fin de l'expérience. Cette zone correspond à un ensemble de blocs pour lesquels la résistivité à l'état initial est inférieure au reste de la section (de l'ordre de 100 Ω .m contre 200 Ω .m).



Protocole Wenner-Schlumberger

FIGURE 5.13 – Représentation des pourcentages de variation de résistivité des modèles inversés par rapport à l'état initial pour le protocole Wenner-Schlumberger, à différent moments au cours de l'expérience. Les temps indiqués au dessus de chaque section correspondent au nombre de minutes écoulées depuis le début de l'injection de CO₂. Le trait noir au milieu de la première section représente la position latérale du puits d'injection (l'extension verticale n'est pas représentée. Les blocs rouges correspondent à une augmentation de la résistivité et les blocs bleus à une diminution).



FIGURE 5.14 – Représentation des pourcentages de variation de résistivité des modèles inversés par rapport à l'état initial pour le protocole dipôle-dipôle, à différent moments au cours de l'expérience. Les temps indiqués au dessus de chaque section correspondent au nombre de minutes écoulées depuis le début de l'injection de CO_2 . Le trait noir au milieu de la première section représente la position latérale du puits d'injection (l'extension verticale n'est pas représentée. Les blocs rouges correspondent à une augmentation de la résistivité et les blocs bleus à une diminution).

2.2.3 Discussion

Globalement, les résultats obtenus avec le protocole Wenner-Schlumberger montrent des variations de résistivité plus homogènes, sur des ensembles de blocs relativement étendus, alors que les variations observées avec le protocole dipôle-dipôle sont davantage localisées. L'interprétation physique que nous proposons pour expliquer les résultats précédents se base principalement sur les observations faites avec le protocole Wenner-Schlumberger.

Il convient également de préciser que les interprétations qui suivent sur basent sur des variations de résistivité relativement faibles (< 10 %).Nous ne disposons pas de moyens d'affirmer avec certitude que ces variations sont bien induites par des modifications de l'état physicochimique du milieu, et ne sont pas le résultat d'artefacts créés lors du processus d'inversion. Nous ne disposons pas non plus de mesures réciproques pour estimer un intervalle de confiance sur les mesures, et donc sur les variations observées. En effet, nous avons choisi de ne pas effectuer de telles mesures afin de maximiser la discrétisation temporelle de nos acquisitions. Ainsi, les interprétations qui suivent sont à considérer avec une certaine prudence.

Interprétation phénoménologique

Ceci étant dit, nous émettons l'hypothèse que l'apparition d'une zone de diminution de résistivité si rapidement après le début de l'injection (acquisition WS-2) est la conséquence de phénomènes de dissolution du CO_2 dans l'eau porale. En effet la réaction de dissolution du CO_2 au contact de l'eau est un phénomène rapide. L'apport en espèces ioniques dissoutes dans l'eau des pores entraîne une augmentation de la conductivité électrique de l'eau, et donc une diminution de la résistivité du sol dans la zone. Si c'est le cas, cette zone de diminution (bleue) est donc un indicateur de la répartition spatiale du CO_2 . La disparition progressive de cette zone de diminution semble être la conséquence d'une augmentation globale de la résistivité du sol, simultanée sur l'ensemble de la section, et qui s'accentue continuellement au cours de l'expérience. Pour expliquer ce phénomène, nous invoquons deux possibilités.

- 1. Désaturation hydrodynamique du milieu : l'injection de CO₂ diminue le niveau de saturation en eau du milieu par des effets hydrodynamiques. L'eau des pores est progressivement déplacée vers les pores adjacents, et la résistivité du milieu augmente. Xue et al. (2006) ont observé ce type d'effets sur la résistivité lors d'une injection profonde de CO₂ sur le site pilote de Nagaoka au Japon. Le panache de CO₂ induit une diminution de la résistivité au niveau de ses bords, par des effets de dissolution, et l'on observe une augmentation de la résistivité au coeur du panache, conséquence de la désaturation du milieu.
- 2. Evapo-transpiration : Une autre possibilité pour expliquer l'augmentation progressive de la résistivité dans milieu serait l'évaporation graduelle d'une partie de l'eau des pores, due à l'augmentation de la température au cours de l'expérience. En effet l'injection de CO₂ à débuté aux alentours de 11 h du matin, lors d'une journée du mois de Juillet 2013, particulièrement chaude et sèche. Tout au long de l'expérience, le sol a donc été soumis

à une augmentation importante de température. Notre profondeur d'étude n'étant pas extrêmement élevée, il est possible que des effets d'évaporation aient également participé à la diminution de la teneur en eau du milieu, et donc à l'augmentation de la résistivité du sol.

Pour résumer, nos hypothèse suggèrent qu'au début de l'expérience, des phénomènes de dissolution rapides d'une partie du CO_2 injecté produisent une diminution de la résistivité du sol. Ensuite, la diminution de la teneur en eau sol (possiblement induite par différents phénomènes) entraîne une augmentation progressive de la résistivité. Les variations de résistivité observées sont alors le résultat de la « compétition » entre les phénomènes de dissolution et les phénomènes de désaturation qui se produisent au sien du milieu.

Cas du protocole dipôle-dipôle

Il est évidemment plus compliqué d'appliquer l'interprétation précédente aux observations faites avec le protocole d'acquisition dipôle-dipôle, pour lequel les variations de résistivité sont bien moins homogènes, bien moins nettes.

On notera cependant sur les figures 5.13 et 5.14 que la profondeur d'investigation atteinte avec ce protocole d'acquisition est sensiblement inférieure à celle obtenue avec le protocole Wenner-Schlumberger (2,35 m contre 3,25 m précédemment). D'aucun pourraient alors imaginer que la diminution (peu évidente) observée sur les blocs du bas de l'acquisition DD-4 (c.f. figure 5.14) pourrait être la surface d'une zone de diminution plus étendue, à laquelle notre profondeur d'investigation ne nous permettrait pas d'accéder.

Une autre interrogation concerne l'apparition d'une forte augmentation de la résistivité dans la partie centrale de la section, à partir de l'acquisition DD-12. Il est possible d'invoquer la diminution de la saturation en eau comme explication, bien que le caractère "progressif dans le temps" de l'effet ne soit pas visible ici. Ainsi, il n'est pas à exclure que cette anomalie soit aussi le résultat d'artefacts créés lors du processus d'inversion, ou encore de perturbations liées à la présence du puits d'injection. En effet, le dispositif dipôle-dipôle est particulièrement sensible aux variations de résistivité horizontales, et donc plus à même de détecter la présence de structures verticales comme le puits d'injection. Cette différence de sensibilité entre les deux protocoles d'acquisition explique peut être aussi partiellement les moins bons résultats obtenus avec le protocole dipôle-dipôle. Si le panache de CO_2 présente une extension principalement latérale, comme semblent l'avoir observé Blanco et al. (2013), alors il est logique que le protocole Wenner-Schlumberger soit plus efficace à le détecter que le protocole dipôle-dipôle.

2.3 Conclusions

L'injection de CO₂ induit des variations de résistivité que nous proposons d'expliquer par une compétition entre des phénomènes physiques impliquant la diminution du niveau de saturation en eau du sol avec les phénomènes de dissolution du CO_2 , plus rapides, qui augmentent la conductivité électrique de l'eau saturante.

Dans notre cas, le protocole Wenner-Schlumberger semble plus à même de détecter l'arrivée du panache de CO_2 que le protocole dipôle-dipôle. La faible profondeur d'investigation du protocole DD par rapport au protocole WS a peut être également une part de responsabilité dans la mauvaise détection du panache.

Cependant, nous ne pouvons conclure avec certitude quant à l'origine physique des variations de résistivité observées, étant donné le fait que nous ne disposons pas de mesures permettant d'estimer l'influence du bruit environnant et du processus d'inversion sur les résultats des acquisitions.

3 Polarisation provoquée temporelle

3.1 Dispositif de mesure

Les acquisitions par la technique de polarisation provoquée temporelle (PPT) ont été également réalisées avec un Terramètre SAS 1000 connecté à un multiplexeur 64 canaux ES-1064 (ABEM). La technique de PPT permet d'effectuer des acquisitions tomographiques 2D de la résistivité et de la chargeabilité du sous-sol. Pour effectuer le suivi temporel d'une injection de CO_2 , nous avons mis en place un profil d'électrodes de 16 m de long, avec un espacement inter-électrode de 0,5 cm. Par rapport au profil mis en place pour le monitoring ERT seul où l'on mesure uniquement la résistivité, la profondeur d'investigation obtenue est similaire et la résolution spatiale légèrement supérieure.

Pour chacune des acquisitions en PPT présentées dans cette section, nous avons respecté les préconisations détaillées dans la section 2.4.2 du chapitre 2. Afin de limiter les effets de couplage électromagnétique, nous avons utilisé des câbles distincts pour l'injection de courant et la mesure du potentiel. Pour réduire les effets de polarisation d'électrodes nous avons choisi d'utiliser des électrodes impolarisables, identiques à celles décrites en section 2.4.2 du chapitre 2 (p.84). Ces précautions prises conjointement résultent en la mise en place d'une alternance d'électrodes métalliques pour l'injection du courant et d'électrodes impolarisables pour la mesure du potentiel (figure 5.15).



FIGURE 5.15 – Représentation schématique de l'utilisation de câbles distincts pour la mesure et l'injection et de l'alternance électrode métalliques / électrodes impolarisables.

Ne connaissant pas avec certitude les caractéristiques géométriques du panache de CO_2 injecté, nous avons à nouveau choisi d'utiliser un protocole de type Wenner-Schlumberger, qui présente des sensibilités aux variations de résistivité verticales et horizontales à peu près équivalentes. Cependant, dans le cas de câbles distincts et d'électrodes alternées, le protocole réellement utilisé présente de légères différences avec un protocole Wenner-Schlumberger classique. La figure 5.16 schématise les configurations d'électrodes effectivement utilisées lors de notre étude, par rapport au protocole Wenner-Schlumberger classique.



FIGURE 5.16 – Représentation schématique des configurations d'électrodes spécifiques utilisées dans le protocole Wenner-Schlumberger dans le cas d'une alternance d'électrodes, dans le cas ou l'espacement inter-électrode est de 0,5 m.

3.2 Mesures préliminaires.

3.2.1 Paramètres d'acquisition.

Comme dans le cas du suivi par la méthode ERT seule nous avons effectué quelques mesures préliminaires ayant pour objectif d'évaluer la distribution de chargeabilités et de résistivité initiale du milieu et d'autre part de tester certains paramètres d'acquisition.

En PPT, une mesure sur un quadripôle d'électrodes est caractérisée par le temps d'injection du courant T_i , qui correspond à la largeur des créneaux d'injection, et le temps de mesure T_m qui correspond à la période qui suit la coupure de l'injection, sur laquelle on intègre la courbe de décroissance du potentiel pour le calcul de la chargeabilité. Les phénomènes de polarisation au sein du sol sont variés et sont caractérisés par des temps de relaxation différents. Concrètement, plus le temps d'injection T_i est élevé, plus le nombre de processus de relaxation ayant atteint un équilibre sera grand, i.e., plus le voltage secondaire V_s sera proche de sa valeur maximale (figure 5.17). Concernant le temps de mesure T_m , plus celui-ci est élevé, plus il permet de prendre en compte une grande partie de la courbe de décroissance.

Dans notre cas, nous avons systématiquement choisi d'utiliser le temps de mesure $T_m = 1$ s, afin de prendre en compte une portion suffisamment grande de la courbe de décroissance tout en conservant un temps d'acquisition total relativement court, et *in fine*, des durées d'acquisition



FIGURE 5.17 – Principe d'acquisition d'une mesure en PPT. T_i correspond à la durée de l'injection et T_m à la durée de la mesure à partir de la coupure de l'injection.

totales compatibles avec le contexte d'un suivi temporel sur une période de 6 à 8 heures . Avec ce temps de mesure, la courbe de décroissance est discrétisée en 10 fenêtres de 100 ms, sur chacune desquelles est intégrée la chargeabilité partielle associée.

Lors de nos mesures préliminaires, nous avons souhaité étudier les résultats obtenus pour différents temps d'injection T_i , afin d'évaluer leur impact sur la distribution de chargeabilités du sous-sol. Nous avons donc effectué trois acquisitions différentes en utilisant le profil d'acquisition décrit précédemment, avec trois temps d'injection différentes : $T_1 = 1,5$ s, $T_2 = 2,5$ s et $T_3 = 4$ s. Nous avons nommé respectivement ces acquisitions IPT1, IPT2 et IPT3.

3.2.2 Traitement des données

Les données obtenues sont de bonne qualité. Peu de traitement post-acquisition a été nécessaire. Comme dans le cas du suivi par la méthode ERT (c.f. section 2.1.2, p.304), nous avons vérifié que l'ensemble des points de mesure composant les acquisitions ont été acquis avec une intensité de courant suffisante (>50 mA) produisant une différence de potentiel suffisamment élevée (>0,1 V) pour s'assurer que le rapport signal sur bruit soit bon.

Les diagrammes de résistivité relatifs à l'option "exterminate bad datum points" du logiciel Res2DInv (c.f. chapitre 1, p.59) sont particulièrement plats, ce qui témoigne de mesures peu bruitées, et d'un contact homogène entre la surface des électrodes et le sol. La figure 5.18 montre à titre d'exemple le diagramme obtenu pour l'acquisition IPT1. Des diagrammes de même qualité ont été obtenus pour les acquisitions IPT2 et IPT3, et dans les trois cas aucun point de mesure n'a eu besoin d'être supprimé avant inversion des mesures.

Concernant les valeurs de chargeabilité, obtenues nous avons pris soin de contrôler que pour chaque quadripôle de mesure, les courbes de décroissance des chargeabilités partielles possèdent bien une forme correcte (c'est-à-dire monotone décroissante), afin d'éliminer les éventuelles mesures aberrantes. Nous avons procédé à ce contrôle pour toutes les acquisitions de PPT présentées dans ce chapitre. Nous n'avons jamais observé de courbe de décroissance non conforme, et n'avons donc jamais supprimé de points de mesure à partir de ce critère.

Acquisition IPT1



FIGURE 5.18 – Diagramme issu du logiciel Res2Dinv représentant la distribution des résistivités apparentes pour l'acquisition IPT1. L'axe des ordonnée représentent la pseudo-profondeur (en m) et l'axe des abcisses la distance latérale sur le profil d'acquisition. On n'observe pas de différence notable entre deux points d'acquisition voisins.

3.2.3 Inversion des données - Résultats

Nous avons inversé les données des acquisitions IPT1, IPT2 et IPT3 en utilisant le logiciel Res2Dinv, en utilisant à nouveau l'option de discrétisation du modèle qui permet de réduire l'influence des variations de surface sur les blocs les plus profonds de la section (c.f. section 2.1.2). La figure 5.19 montre les sections de chargeabilités inversées issues des 3 acquisitions.

Les valeurs de chargeabilité obtenues augmentent lorsque le temps d'injection T_i augmente. Cette observation est conforme à nos attentes, puisqu'un temps d'injection plus long permet de prendre en compte un panel de phénomènes de polarisation plus large, et donc d'atteindre des valeurs de voltage secondaire V_s plus élevées. En moyenne, sur l'ensemble des blocs qui composent les sections de chargeabilités inversées présentées sur la figure 5.19, le temps d'injection $T_i = 2,5$ s entraîne une augmentation de 20 % de la chargeabilité par rapport à l'acquisition IPT1 ($T_i = 1,5$ s). Pour un temps d'injection $T_i = 4$ s (IPT3), l'augmentation moyenne de chargeabilité sur l'ensemble des blocs par rapport à l'acquisition IPT1 est de l'ordre de 39 %,.

Pour les trois temps d'injection, nous pouvons observer une dissymétrie dans la distribution de chargeabilités. Globalement, les valeurs de chargeabilité sont plus élevées dans la partie droite de la section que dans la partie gauche. Notamment, on observe dans les trois cas des valeurs de chargeabilité jusqu'à 50 % plus élevées dans la partie inférieure droite de la section par rapport aux valeurs minimales observées dans le reste de la section.



FIGURE 5.19 – Sections de chargeabilités obtenues après inversion des données issues des acquisitions IPT1, IPT2, et IPT3.

3.3 Discussion sur l'origine de la zone de haute chargeabilité

3.3.1 Origine physique

Si l'on compare les distributions de chargeabilité obtenues avec les distributions de résitivité issues de l'inversion des données (figure 5.20) on constate que les zones de hautes chargeabilités observées dans la partie inférieure droite de la section correspondent à des zones de plus faible résistivité.

Cette correspondance est encore plus flagrante si l'on observe la distribution de résistivités issue de l'inversion de la tomographie TOM 1 (figure 5.21). Bien qu'elle ait été réalisée à une date ultérieure, l'acquisition en ERT TOM 1 a été effectuée selon un profil d'électrodes disposé selon le même axe que les acquisitions PPT, plus long (L = 23.25 m), et présente ainsi une plus grande profondeur d'investigation du sous-sol.

La partie inférieure droite de la section de résistivité TOM 1 montre des valeurs de résistivité bien plus faibles (entre 120 et 150 Ω .m) que la partie inférieure gauche (entre 220 et 300 Ω .m). Cette observation accrédite l'hypothèse que les variations spatiales de chargeabilité observées ont une origine physique. Nous émettons l'hypothèse que la composition minéralogique du sol est



FIGURE 5.20 – Distribution de résistivités obtenue après l'inversion des données issues de l'acquisition IPT1. Pour les acquisitions IPT2 et IPT3 les distributions de résistivité obtenues sont identiques. Le temps d'injection T_i n'a pas d'influence sure les valeurs obtenues.



FIGURE 5.21 – Sections de résistivité obtenues après inversion sur le profil Tom 1. Le trait noir vertical épais représente la position latérale du puits d'injection, les contours blancs représentent les limites de profondeur d'investigation et d'extension latérale de la section de résistivités inversées issue de l'acquisition IPT1 (c.f figure 5.20).

responsable des différences de chargeabilité et de résistivité observées entre les parties gauches et droites des sections inversées. Par exemple, une concentration plus élevée en argiles dans la zone inférieure droite pourrait expliquer cette correspondance hautes chargeabilités / basses résitivités. En effet, les argiles possèdent une forte conductivité de surface (e.g. Revil and Glover, 1998), et leur présence dans le sol est généralement responsable de faibles valeurs de résistivité (e.g., Shevnin et al., 2007). De plus les argiles sont connus pour être le siège d'importants phénomènes de polarisation de membrane et électrochimique (e.g. Garrouch and Sharma, 1994). La présence d'argiles dans les sols est très souvent liée à des valeurs de chargeabilité élevées par rapport aux zones où les argiles sont absents (e.g., Kemna et al., 2004; Schmutz et al., 2011).

3.3.2 Couplage électro-magnétique

Il est légitime d'envisager l'effet possible des phénomènes de couplage électromagnétique dans le développement d'une zone de haute chargeabilité. Pour limiter ces effets cependant, nous avons pris les précautions suivantes. D'une part nous avons utilisé des câbles différents pour l'injection du courant et la mesure du potentiel, ce qui nous pousse à rejeter cette hypothèse; d'autre part, chacun des câbles est légèrement surélevé par rapport au sol grâce à des bouts de bois disposés régulièrement. L'ensemble de ces précautions nous amène à rejeter l'hypothèse de phénomènes de couplage majoritairement responsables des hautes valeurs de chargeabilité mesurées.

3.3.3 Influence des électrodes et du protocole d'acquisition

La figure 5.22 montre les courbes de décroissance des chargeabilités partielles associées à chacune des mesures composant l'acquisition IPT1. Le protocole Wenner-Schlumberger utilisé pour les acquisitions de PPT est composé de 93 points de mesure. Sur ce graphique, nous avons attribué aux courbes de décroissance associées à chaque quadripôle de mesure une couleur correspondant à sa position dans le protocole d'acquisition. Les courbes de couleurs chaudes correspondent aux quadripôles mesurés au début du protocole, et les couleurs froides aux quadripôles mesurés en fin de protocole. Au delà de la forme "conforme" de ces courbes, on observe une relation entre l'ampleur des valeurs de chargeabilité partielle mesurées et la position du quadripôle de mesure correspondant dans le protocole d'acquisition. Globalement, les plus hautes valeurs de chargeabilité partielles sont obtenues pour les quadripôles de mesure situés en fin de protocole (courbes de couleurs sont obtenues pour les quadripôles de mesure situés en fin de protocole (courbes de couleurs chaudes), et les plus basses valeurs sont obtenues pour les quadripôles de mesure situés en fin de protocole (courbes de couleurs chaudes).



FIGURE 5.22 – Représentation des courbes de décroissance de chargeabilités partielles associées à chaque quadripôle de mesure composant l'acquisition IPT1. On attribue à chaque quadripôle une couleur correspondant à sa position dans la séquence d'acquisition. Les couleurs chaudes correspondent aux mesures effectuées au début de l'acquisition et les couleurs froides aux mesures effectuées à la fin de l'acquisition.

Afin d'investiguer plus en profondeur ce comportement, nous avons représenté sur la figure 5.23 les valeurs de chargeabilité apparente totale mesurées lors de l'acquisition IPT1, pour chaque quadripôle de mesure, en fonction de leur position dans le protocole d'acquisition. Sur ce graphique, on observe qu'il existe des groupes de quadripôles pour lesquels les chargeabilités

apparentes totales augmentent quasi-linéairement avec leur position dans le protocole de mesure. En étudiant quels types de quadripôles composent ces groupes, nous avons pu faire deux constats :

- Les quadripôles qui constituent un groupe ont tous une électrode d'injection en commun, i.e., une même électrode en inox est utilisée de façon répétée lors de la réalisation des mesures sur les quadripôles d'un même groupe.
- 2. Au sein d'un groupe, l'écartement inter-électrode augmente avec le numéro de la mesure. Le premier quadripôle mesuré possède le plus petit espacement inter-électrodes et le dernier quadripôle mesuré présente le plus grand espacement inter-électrode.



FIGURE 5.23 – Représentation des chargeabilités apparentes totales mesurées lors de l'acquisition IPT1 en fonction de leur position dans le protocole de mesure. Le numéro de la mesure (de 1 à 93) correspond à l'ordre d'acquisition. Les ellipses grises entourent des groupes de quadripôles présentant un comportement particulier.

En se basant sur les sections de chargeabilité et de résistivité présentées précédemment, le constat n°2 constitue une explication crédible au comportement observé au sein de ces groupes de quadripôles. En effet, si les valeurs de chargeabilité observées dans la partie inférieure droite des sections inversées ont bien une origine physique (comme par exemple une concentration en argiles ou en autres éléments polarisants plus élevée), alors, en augmentant l'écartement inter-électrodes, et a fortiori la profondeur d'investigation, il est logique que les valeurs de chargeabilité apparentes mesurées augmentent également, puisque le volume investigué par le signal englobe de plus en plus la zone polarisante en question.

Cependant, nous avons choisi de vérifier également si le constat n°1, à savoir l'utilisation répétée d'une même électrode d'injection, pouvait avoir une part de responsabilité dans le comportement observé au sein de ces groupes de quadripôles. L'hypothèse sous-jacente à cette proposition suggère que l'injection de courant répétée au sein d'une électrode en métal (acier inoxydable) provoque des phénomènes de polarisation qui influent sur les mesures selon une tendance d'accumulation. Plus on injecte de courant à travers une même électrode, plus les valeurs de chargeabilité apparente mesurées augmentent. Pour vérifier cette proposition, nous avons réalisé une nouvelle campagne de mesure *a posteriori* des expériences de monitoring proprement dites, que nous appelons dans la suite de ce rapport "étude méthodologique".

3.4 Etude méthodologique

3.4.1 Principe de l'étude

Afin de bien comprendre le principe de l'étude de méthodologie, il convient d'abord d'expliquer en détail le fonctionnement du protocole d'acquisition que nous avons utilisé lors des expériences de monitoring. La figure 5.24 illustre schématiquement l'organisation du protocole en s'appuyant sur l'exemple du groupe de quadripôle 1 (c.f. figure 5.23). Les électrodes d'injection sont numérotées de 1 à 17 et les électrodes de mesure de 48 à 64. Pour plus de clarté, nous n'avons pas représenté les dipôles de mesure du potentiel. Concrètement, la première mesure réalisée lors de l'acquisition (*II* sur le schéma) utilise les électrodes n°13 et n°17 pour l'injection. Ensuite, on augmente progressivement l'espacement inter-électrodes, tout en gardant l'électrode 17 comme électrode d'injection. L'écartement maximal correspond à la mesure *I13*. L'ensemble de ces 13 mesures constituent le groupe de quadripôle 1 sur la figure 5.23. La composition du groupe 2 suit le même procédé, à ceci près que l'électrode commune à toutes les mesures est l'électrode n°16. Il en résulte qu'au fur et à mesure que l'on avance dans le protocole, les groupes ayant une électrode commune sont composés de moins en moins de quadripôles.



FIGURE 5.24 – Représentation schématique des séquences d'acquisition composant le protocole.
Nous avons donc cherché à établir si l'utilisation répétée d'une électrode d'injection pouvait avoir une part de responsabilité dans le comportement observé sur la figure 5.23. En premier lieu, nous avons donc conçu deux protocoles différents de celui décrit précédemment, lequel nous qualifierons dans la suite de protocole *initial*. Nous avons conçu un protocole *inverse*, dont l'organisation est symétrique à celle du protocole initial. Dans le protocole inverse, les mesures du groupe 1 n'ont plus pour électrode commune la n°17, mais la n°1. L'augmentation progressive de l'espacement inter-électrodes se fait alors dans la direction opposée à celle du protocole initial. Les mesures du groupe 2 n'ont plus pour électrode commune la n°16, mais la n°2, et ainsi de suite. Avec ce protocole symétrique, si l'utilisation répétée d'une électrode a une influence significative sur les mesures, la distribution des chargeabilités apparentes en fonction du numéro de quadripôle obtenue devrait être sensiblement différente avec le protocole inverse de celle obtenue avec le protocole initial.Le deuxième protocole que nous avons conçu se nomme protocole *sans répétition*. Comme son nom l'indique, il consiste à organiser les mesures de façon aléatoire avec pour seul critère que deux quadripôles de mesure consécutifs n'ont aucune électrodes en commun.

Dans l'éventualité où les électrodes d'injection, en se polarisant, produisent un effet sur les mesures, nous avons effectué des acquisitions en utilisant deux types d'électrodes pour l'injection de courant. Des électrodes en acier comme lors de nos expériences, et des électrodes impolarisables, afin d'évaluer si l'effet persiste avec des électrodes différentes. Nous avons également effectué des acquisitions à différents temps d'injection T_i (1,5 s et 4 s) afin d'évaluer l'éventuelle influence de ce paramètre. Enfin, nous avons étudié le comportement d'acquisitions effectuées avec 1 ou 2 stacks à chaque mesure, afin d'étudier si le nombre de périodes d'injection consécutives sur une même électrode influence le comportement observé au sein des groupes de quadripôles. Le tableau 5.3 ci-dessous rassemble les caractéristiques de chacune des acquisitions que nous avons effectuées ainsi que les noms qui leur sont attribués.

Nom	Type de protocole	Electrodes injection	Temps d'injection (s)	Nombre de stacks
LI001	Initial	Inox	1,5	1
LI002	Inverse	Inox	1,5	1
LI003	Sans répétition	Inox	1,5	1
LI004	Sans répétition	Inox	1,5	2
LI005	Sans répétition	Inox	4	1
LI006	Initial	Inox	4	1
LI007	Sans répétition	Impolarisables	1,5	1
LI008	Initial	Impolarisables	1,5	1
LI009	Inverse	Impolarisables	1,5	1
LI010	Sans répétition	Impolarisables	1,5	2

TABLE 5.3 – Tableau récapitulatif des caractéristiques de chaque acquisition effectuées lors de l'étude méthodologique.

3.4.2 Résultats de l'étude

Influence du protocole

Sur la figure 5.25, nous avons représenté les valeurs de chargeabilité apparente totale obtenues avec les tomographies LI001, LI002 et LI003 en fonction du quadripôle de mesure correspondant. Les trois acquisitions correspondent respectivement aux protocoles initial, inverse et sans répétition. Le temps d'injection lors de ces acquisitions vaut $T_i = 1,5$ s, et les électrodes d'injection du courant sont en acier inoxydable. On note que quel que soit le protocole utilisé, on observe systématiquement le comportement décrit à la section 3.3.3, i.e., la répartition des mesures selon des groupes de quadripôles, au sein desquels la chargeabilité augmente.



FIGURE 5.25 – a) Représentation des chargeabilités apparentes totales mesurées lors des acquisitions LI001, LI002 et LI003, correspondant respectivement aux protocoles initial, inverse, et sans répétition. Le temps d'injection T_i vaut 1,5 s. Les électrodes d'injection de courant sont en acier inoxydable. b) Comparaison entre les chargeabilités apparentes mesurées lors de l'acquisition LI001 et LI003.

Sur le graphique a, on observe que les valeurs de chargeabilité associées aux différents protocoles sont similaires. En l'occurrence, la moyenne des écarts absolus sur l'ensemble des quadripôles entre les résultats du procotole inverse et sans répétition par rapport au protocole initial sont respectivement de 2,7% et 3 %. Si l'on se réfère au graphique de comparaison b de la figure 5.25, on observe que seule la valeur de chargeabilité la plus élevée, en haut à droite du graphique, présente une différence significative entre les deux protocoles. Dans l'ensemble, les données sont bien réparties autour de la droite d'équation y = x. Lorsque le temps d'injection vaut $T_i = 4$ s, on fait les mêmes observations. Sur la figure 5.26, on constate à nouveau une bonne similarité entre les résultats du protocole initial et ceux du protocole sans répétition.

D'après ces premières observations, l'utilisation de protocoles réorganisés n'a pas d'influence sur les chargeabilités apparentes totales mesurées. Pour les deux temps d'injection $T_i = 1, 5$ s et



FIGURE 5.26 – Comparaison entre les chargeabilités apparentes mesurées lors de l'acquisition LI005 et LI006. Le temps d'injection T_i vaut 4 s. Les électrodes d'injection de courant sont en acier inoxydable.

 $T_i = 4$ s, l'augmentation des chargeabilités apparentes au sein d'un groupe de mesure n'est donc a priori pas induite par l'utilisation répétée d'une même électrode d'injection. L'augmentation de chargeabilité observée est donc a priori liée à l'accroissement progressif de l'écartement interélectrode. Ce constat accrédite l'hypothèse que les valeurs de chargeabilité plus élevées dans la partie inférieure droite des sections inversées ont une origine physique, liée aux caractéristiques du sol dans cette zone.

Influence du type d'électrodes

La figure 5.27 présente la comparaison entre les valeurs de chargeabilité apparentes mesurées avec des électrodes en inox et celles mesurées avec des électrodes impolarisables. Les graphiques a), b) et c) comparent respectivement les acquisitions L1001 et L1008, L1002 et L1009, et L1003 avec L1007. Ces trois couples d'acquisitions correspondent respectivement aux protocoles initial, inverse, et sans répétition. Pour chacune des acquisition le temps d'injection vaut $T_i = 1, 5$ s.

Pour les 3 protocoles la corrélation entre les 2 acquisitions est bonne. Les valeurs de chargeabilité sont bien situées sur la courbe d'équation y = x. La moyenne des pourcentages d'écart E% (équation 3.4.2) entre les acquisitions effectuées avec des électrodes impolarisables et celles effectuées avec des électrode en inox, vaut respectivement 5 %, 3,7 % et 2,9 % pour les protocoles initial, inverse et sans répétition.

$$E_{\%} = \frac{|m_{inox} - m_{impolarisable}|}{m_{impolarisable}} * 100$$
(5.1)



Influence des électrodes d'injection sur les chargeabilités apparentes

FIGURE 5.27 – Comparaison entre les chargeabilités apparentes totales mesurées en utilisant des électrodes en inox pour l'injection de courant, avec celles mesurées en utilisant des électrodes impolarisables. A chaque acquisition, le temps d'injection vaut 1,5 s. La droite d'équation y = x permet la comparaison des valeurs obtenues.

Ces observations montrent que l'utilisation d'électrodes impolarisables pour l'injection de courant à la place d'électrodes en inox ne modifie pas les valeurs de chargeabilités mesurées, et n'a donc pas d'influence sur le comportement des "groupes de quadripôles" observé. Ce constat constitue un argument supplémentaire pour réfuter l'idée que l'utilisation répétée d'une électrode d'injection influe sur les mesures. Les électrodes impolarisables et les électrodes en inox ont des propriétés de polarisation très différentes. Si l'hypothèse précédente était avérée, les mesures effectuées avec des électrodes distinctes devraient donner des résultats différents.

Influence du nombre de stacks

Sur la figure 5.28 nous comparons les valeurs de chargeabilité obtenues lorsqu'on applique deux stacks (i.e., la mesure est effectuée deux fois de suite) à chaque point d'acquisition à celles obtenues avec un seul stack. Le graphique a) correspond aux acquisitions effectuées avec des électrodes d'injection en inox et le graphique b) aux acquisitions effectuées avec des électrode d'injection impolarisables. Le protocole utilisé pour les quatre acquisitions est le protocole sans répétition.



FIGURE 5.28 – Comparaison entre les résultats d'acquisitions effectuées avec deux stacks par point d'acquisition et les résultats d'acquisitions effectuées en appliquant un seul stack. Le graphique a) correspond aux acquisitions effectuées avec des électrodes d'injection en inox et le graphique b) aux acquisitions effectuées avec des électrode d'injection impolarisables. Le protocole utilisé pour les quatre acquisitions est le protocole sans répétition.

Quel que soit le type d'électrode utilisé, les chargeabilités mesurées en appliquant 2 stacks par point de mesure sont systématiquement inférieures à celles mesurées sans stacking. Tout d'abord, ce comportement est un argument supplémentaire pour réfuter l'idée que l'utilisation répétée d'un électrode puisse, par des phénomènes de polarisation d'électrode, entraîner une augmentation des valeurs de chargeabilité. Si tel était le cas, l'application de deux stacks conduirait à des valeurs de chargeabilité mesurées systématiquement supérieures aux valeurs mesurées avec un seul stack. Or on observe ici l'effet inverse. Il est intéressant de noter que les diminutions observées sont proportionnelles à la valeur de chargeabilité mesurée sur chaque quadripôle. On note $\Delta m_{\%(i)}$ le pourcentage de diminution provoqué par la réalisation de 2 stacks par rapport à la réalisation d'un seul stack, pour le quadripôle *i*. On a :

$$\Delta m_{\%(i)} = \frac{\left(m_{2\,stacks(i)} - m_{1\,stack(i)}\right)}{m_{1\,stack(i)}} \times 100 \tag{5.2}$$

avec $m_{1\,stack(i)}$ la valeur de chargeabilité apparente totale mesurée sur le quadripôle i avec 1 seul stack, et $m_{2\,stacks(i)}$ celle mesurée sur le même quadripôle avec 2 stacks.

En calculant la moyenne de cette valeur sur l'ensemble des quadripôles composant une acquisition, on constate que ce pourcentage de diminution est quasiment constant, et ne dépend pas du type d'électrodes utilisées pour l'injection du courant. Dans le cas d'électrode en inox, on obtient :

$$\Delta m_{\% moy} = 10, 3\% \pm 1, 94\%$$

Et pour des électrodes d'injection impolarisables :

$$\Delta m_{\% moy} = 9,9\% \pm 2,28\%$$

Dans notre cas, l'utilisation de deux stacks provoque une diminution de la chargeabilité d'approximativement 10% de la valeur mesurées avec un seul stack.

Sur le graphique a) de la figure 5.29 on peut observer les courbes de décroissance des chargeabilités partielles mesurées par notre appareil d'acquisition, pour chacun des quadripôles de la tomographie IPT1. Au delà des considérations précédentes sur la forme et la répartition de ces courbes, on peut également noter qu'à la fin de la période de mesure T_m les chargeabilités partielles ne sont pas encore nulles, signe que la relaxation du milieu n'est pas complète, et que les charges électriques ne sont pas revenues à leur position d'équilibre.

Notre hypothèse suggère que ces chargeabilités résiduelles reflètent l'existence d'une différence de potentiel résiduelle, encore significative à la fin de la période de mesure, qui affecte la courbe de décroissance lorsque la polarité du courant injecté change. Nous avons représenté schématiquement ce concept sur le schéma b) de la figure 5.29. Le courant est injecté sous forme de créneaux de polarité alternatives. Lorsque la période de mesure T_m s'achève, si le milieu n'est pas retourné à l'équilibre il subsiste une différence de potentiel ddp, dont le signe correspond à la polarité du créneau d'injection qui vient de se produire. Lorsque le créneau de polarité inverse est injecté, le potentiel résultant est affecté par la différence de potentiel résiduelle. Celle-ci étant de signe opposé, la courbe de décroissance du potentiel voit son amplitude diminuée, et les valeurs de chargeabilités mesurées se trouvent réduites. La réalisation de plusieurs stacks propage alors cet effet réducteur, résultant en une valeur finale de chargeabilité plus faible qu'avec un seul stack.

Cependant, le schéma b) de la figure 5.29 est purement conceptuel, et ne reflète pas la réalité. En effet, la différence de potentiel résiduelle diminue avec le temps, si bien qu'elle ne peut pas être retranchée du signal en tant que constante. Néanmoins, le schéma reflète bien le principe de notre hypothèse. Si le temps de mesure T_m entre deux créneaux d'injection est trop faible, la différence de potentiel résiduelle produit un effet réducteur sur les valeurs de chargeabilité mesurées, lequel effet est amplifié si plusieurs stacks sont appliqué lors de la mesure.



FIGURE 5.29 – a) Représentation des courbes de décroissance des chargeabilités partielles pour chaque quadripôle composant l'acquisition IPT1. Les couleurs correspondent à la position de la mesure dans la séquence d'acquisition. On observe l'existence de chargeabilités résiduelles non négligeables pour certains quadripôles. b) Représentation schématique de la propagation d'une différence de potentiel résiduelle dans le cycle de mesure de la chargeabilité du Terrameter ABEM utilisé lors des expériences.

Pour mieux approfondir cette question, il serait pertinent de réaliser des acquisitions supplémentaires en utilisant un nombre varié de stacks, ainsi que plusieurs temps de mesure T_m , et d'étudier les relations entre ces paramètres et les valeurs de chargeabilité mesurées.

3.4.3 Conclusions

Au cours de cette étude méthodologique, nous avons établi plusieurs résultats. En premier lieu, l'utilisation répétée d'une même électrode pour l'injection du courant n'entraîne pas de modification des valeurs de chargeabilité apparente mesurées. Nous avons également montré que l'utilisation d'électrodes impolarisables pour l'injection de courant n'influe pas non plus sur les valeurs de chargeabilité mesurées. Ce dernier résultat concerne seulement les électrodes impolarisables du même type que celles que nous avons utilisées. Enfin, nous avons observé que la réalisation de 2 stacks par mesure lors de l'acquisition provoque une diminution de la chargeabilité apparente mesurée d'environ 10 %.

Finalement, nous avons déterminé que l'organisation du protocole d'acquisition n'influe pas sur les valeurs de chargeabilité observées. Il en résulte la zone de hautes chargeabilités observée dans la partie inférieure droite des sections de chargeabilité inversée, n'est pas induite par des effets expérimentaux, mais possède bien une origine physique, liée aux caractéristiques physicochimiques de la subsurface.

3.5 Suivi temporel de l'injection de CO_2

3.5.1 Protocole expérimental

Le tableau 3.5.1 résume le déroulement et les paramètres des acquisitions de PPT que nous avons réalisées lors de l'injection de CO₂. Comme expliqué précédemment, nous avons effectué alternativement des acquisitions pour lesquelles la période d'injection du courant T_i vaut 1,5 s et 4 s. Pour rappel, le débit d'injection du CO₂ gazeux vaut toujours $Q \approx 1 \text{ m}^3.\text{h}^{-1}$, et dans le cas présent, la durée totale de l'injection est de 5,2 heures, ce qui correspond à une masse de CO₂ injecté d'environ 10,5 kg. Le protocole d'acquisition utilisé est un protocole de type Wenner-Schlumberger, modifié pour les besoins d'une acquistion en PPT avec une alternance d'électrode en inox et d'électrode impolarisables (c.f. figure 5.16)

	Nom fichier	Temps t (min)	Temps d'injection T_i (s)
Etat initial 1,5 s	TIP006	-132	1,5
Etat initial 4 s	TIP007	-112	4
Début injection		0	
	TIP008	20	$1,\!5$
	TIP009	75	$1,\!5$
	TIP010	101	4
	TIP011	185	$1,\!5$
	TIP012	233	$1,\!5$
	TIP013	260	4
Arrêt injection		313	
	TIP014	353	$1,\!5$
	TIP015	380	4

TABLE 5.4 – Tableau récapitulatif du déroulement des acquisitions en PPT lors du suivi temporel de l'injection de CO₂.

Lorsque le temps d'injection du courant T_i vaut 1,5 s, la durée totale de l'acquisition vaut approximativement 20 min. Si le temps d'injection est de 4 s, la durée de l'acquisition est de l'ordre de 50 min. Afin de s'assurer que la relaxation du milieu d'étude soit complète avant le début d'une nouvelle acquisition, nous avons respecté des périodes d'attente de respectivement 10 min et 30 min selon si le temps d'injection T_i de l'acquisition qui vient d'être effectuée est de 1,5 s ou 4 s.

3.5.2 Résultats

Les sections de chargeabilités apparentes et de résistivités apparentes mesurées ont été inversées avec le logiciel Res2Dinv. Pour des jeux de données en PPT, le logiciel n'a pas la possibilité d'effectuer des inversions de type time-lapse. Nous avons donc inversé chacun des jeux de données séparément, puis, comme pour le suivi temporel par la méthode ERT, nous avons choisi de représenter les résultats de chargeabilité et de résistivité en termes de pourcentages de variations par rapport à l'état initial, i.e., l'état pré-injection. Ces pourcentages de variations sont calculés sur chacun des blocs qui composent les modèles de chargeabilité et de résistivité inversés.

Temps d'injection 1,5 s - Variations de résistivité

La figure 5.30 montre les variations de résisitivité entre les modèles inversé à chaque acquisition par rapport à l'acquisition initiale. L'ampleur des variations observées est très proche des variations mesurées lors du suivi temporel par la méthode d'ERT, à savoir entre -3% et 3%. De même, la distribution et l'évolution au cours de l'expérience de ces variations sont aussi similaires à celles observées en ERT. En effet, pour la première acquisition, on observe à nouveau la formation rapide d'une zone de diminution de la résistivité. Dans le cas présent, elle est approximativement centrée sur la position du puits d'injection, et reste confinée à des profondeurs supérieures à 2 m. Comme dans le cas du suivi en ERT, on observe une augmentation de la résistivité dans les blocs situées autour de cette zone de diminution. Au fur et à mesure de l'injection, la zone de diminution s'estompe petit à petit, alors que l'augmentation de résistivité est de plus en plus marquée. Finalement, après l'arrêt de l'injection (acquisition TIP0014), la zone de diminution de résistivité est toujours visible, et les variations associées sont légèrement plus fortes que celles mesurées juste avant la fin de l'injection (acquisition TIP0012), à savoir approximativement -2,5 % contre -0,5 %. A la dernière acquisition, les zones où la résistivité augmente ont atteint un niveau de variation plus élevé par rapport à toutes les acquisitions précédentes.



FIGURE 5.30 – Représentation des pourcentages de variation de résistivité des modèles inversés par rapport à l'état initial, pour les acquisitions effectuées avec un temps d'injection $T_i = 1, 5s$. Les temps indiqués au dessus de chaque section correspondent au nombre de minutes écoulées depuis le début de l'injection de CO₂. Le trait noir au milieu de la première section représente la position latérale du puits d'injection (l'extension verticale n'est pas représentée). Les blocs rouges correspondent à une augmentation de la résistivité et les blocs bleus à une diminution.

Temps d'injection 1,5 s - Variations de chargeabilité

La figure 5.31 présente les variations de chargeabilités inversées, pour chaque bloc, par rapport à l'état initial. Tout d'abord, on note que l'ampleur des variations est bien plus élevée pour le paramètre chargeabilité que pour le paramètre résistivité étudié précédemment. On observe des variations de chargeabilité maximales de l'ordre de 20% contre 3% pour la résisistivité.

A t = +20 min après le début de l'injection de CO₂ (acquisition TIP008), on observe une zone située à droite du puits d'injection où la chargeabilité augmente à peu près de 5%. Dans le reste de la section, on observe des diminutions de chargeabilité allant de 7 à 12%. L'acquisition suivante, TIP009, montre une distribution de variations très similaires à celle correspondant



FIGURE 5.31 – Représentation des pourcentages de variation de chargeabilité des modèles inversés par rapport à l'état initial, pour les acquisitions effectuées avec un temps d'injection $T_i = 1, 5$ s. Les temps indiqués au dessus de chaque section correspondent au nombre de minutes écoulées depuis le début de l'injection de CO₂. Le trait noir au milieu de la première section représente la position latérale du puits d'injection. Les blocs rouges correspondent à une augmentation de la chargeabilité et les blocs bleus à une diminution.

à l'acquisition TIP008, tant en terme de répartition spatiale que d'amplitude des variations. Au temps t = +185 min (acquisition TIP0011), la zone d'augmentation de chargeabilité à totalement disparue. L'ensemble des blocs de la section présentent des diminutions de chargeabilité, dont l'amplitude à considérablement augmenté (entre -10 et -20 % de diminution). Puis, les diminutions de chargeabilité sont légèrement plus marquées à chaque nouvelle acquisition (TIP012 et TIP014). Les valeurs de diminution les plus élevées sont observées à l'acquisition TIP014.

Temps d'injection 4 s - Résistivités et chargeabilités

Les figures 5.32 et 5.33 représentent l'évolution des variations de résistivité et de chargeabilité observées. Pour un temps d'injection du courant $T_i = 4$ s, les comportements observées restent très similaires à ceux décrits précédemment. Sur les sections de résistivité, on observe bien une diminution de résistivité dans une zone centrale de profondeur supérieure à 2 m. Puis cette diminution s'estompe au cours de l'expérience. Autour, la majorité des blocs montrent une augmentation de la résistivité qui est de plus en plus marquée à mesure que l'expérience avance.



FIGURE 5.32 – Pourcentages de variation de résistivité des acquisitions réalisées au cours de l'expérience par rapport à l'état initial, avec un temps d'injection $T_i = 4$ s. Les temps indiqués au dessus de chaque section correspondent au nombre de minutes écoulées depuis le début de l'injection de CO₂. Le trait noir au milieu de la première section représente la position latérale du puits d'injection (l'extension verticale n'est pas représentée). Les blocs rouges correspondent à une augmentation de la résistivité et les blocs bleus à une diminution.

Concernant les variations de chargeabilité, on observe la même tendance globale de diminution au cours de l'expérience que pour le suivi avec un temps d'injection $T_i = 1, 5$ s. Cependant, au temps t = +101 min (acquisition TIP010), on n'observe pas d'augmentation de la chargeabilité dans la zone située à droite du puits d'injection. Dans la zone correspondante, la diminution des valeurs de chargeabilité est toutefois plus faible que dans le reste de la section. De façon globale, l'utilisation d'un temps d'injection $T_i = 4$ s entraîne des variations de chargeabilité légèrement plus fortes. Le diminution moyenne de chargeabilité sur l'ensemble des blocs de la section est de 12 % pour l'acquisition TIP014 ($T_i = 1, 5$ s), contre 17% pour l'acquisition TIP015 ($T_i = 4$ s), réalisée un trentaine de minute après.

Chargeabilités normalisées

La chargeabilité normalisée est calculée en normalisant les valeurs de chargeabilité obtenues après inversion par les valeurs de résisitivité, elle est donc définie par la relation :



FIGURE 5.33 – Pourcentages de variation de chargeabilité des acquisitions réalisées au cours de l'expérience par rapport à l'état initial, pour un temps d'injection $T_i = 4$ s. Les temps indiqués au dessus de chaque section correspondent au nombre de minutes écoulées depuis le début de l'injection de CO₂. Le trait noir au milieu de la première section représente la position latérale du puits d'injection (l'extension verticale n'est pas représentée). Les blocs rouges correspondent à une augmentation de la chargeabilité et les blocs bleus à une diminution.

$$M_n = \frac{m}{\rho} \tag{5.3}$$

avec *m* la chargeabilité mesurée (en ms), ρ la résistivité du milieu (en Ω) et M_n la chargeabilité normalisée (en ms. Ω^{-1}).

Exprimer les résultats d'une étude PPT en utilisant les valeurs de chargeabilité normalisée permet s'affranchir des variations de résistivité du milieu et de manipuler une grandeur qui représente principalement l'amplitude des phénomènes de polarisation du milieu (Slater and Lesmes, 2002).

Dans notre cas, cependant, l'influence de la résistivité sur les valeurs de chargeabilité obtenues s'est révélée assez faible. La figure 5.34 représente les variations de chargeabilité normalisées calculées pour les acquisitions avec un temps d'injection $T_i = 1, 5$ s.

On observe que les variations de chargeabilité normalisées suivent un comportement quasiment identiques aux variations de chargeabilité représentées sur la figure 5.31. La répartition spatiale des zones de diminution et d'augmentation est identique, et l'évolution des variations suit la même tendance.

Sur les figures 5.35 et 5.36 nous comparons les pourcentages de variations relatives des chargeabilités normalisées M_n avec les pourcentages de variations des chargeabilités m issues directement de l'inversion, pour des acquisitions effectuées au début de l'expérience (TIP008 et TIP0010) et des acquisitions réalisées vers la fin de l'expérience (TIP0014 et TIPL0015). La

figure 5.35 représente cette comparaison pour les temps d'injection de 1,5 s et la figure 5.36 pour les temps d'injection de 4 s.



Variations de chargeabilité normalisée - Ti = 1,5 s

FIGURE 5.34 – Représentation des pourcentages de variation de chargeabilité normalisée des modèles inversés par rapport à l'état initial, pour les acquisitions effectuées avec un temps d'injection $T_i = 1,5$ s. Les temps indiqués au dessus de chaque section correspondent au nombre de minutes écoulées depuis le début de l'injection de CO₂. Le trait noir au milieu de la première section représente la position latérale du puits d'injection. Les blocs rouges correspondent à une augmentation de la chargeabilité et les blocs bleus à une diminution.

En premier lieu, on observe que la diminution de chargeabilité est de plus en plus importante au cours de l'expérience. Sur les graphiques de droite, l'ensemble des points est davantage localisé dans la partie inférieure gauche, qui correspond aux valeurs les plus négatives.

Ensuite, on remarque que pour les acquisitions effectuées au début de l'expérience, les variations de chargeabilités normalisées sont bien concordantes avec les variations de chargeabilité. Pour les acquisitions effectuées vers la fin de l'expérience, on note que les variations de chargeabilité normalisée sont légèrement supérieures (en valeur absolue) aux variations de chargeabilité. Cette observation démontre que l'évolution physico-chimique du milieu au cours de l'expérience a davantage d'impact sur les propriétés capacitives du milieu que sur ses capacités de conduction ohmique.



FIGURE 5.35 – Comparaison entre les variations de chargeabilités et de chargeabilités normalisées obtenues après inversion sur chaque bloc du modèle inversé, pour l'acquisition TIP008 réalisée au début de l'expérience et l'acquisition TIP014 réalisée en fin d'expérience. Le temps d'injection pour ces deux acquisition est de 1,5 s. Les diminutions observées sur les blocs sont plus importantes à la fin de l'expérience.



FIGURE 5.36 – Comparaison entre les variations de chargeabilités et de chargeabilités normalisées obtenues après inversion sur chaque bloc du modèle inversé, pour l'acquisition TIP010 réalisée au début de l'expérience et l'acquisition TIP015 réalisée en fin d'expérience. Le temps d'injection pour ces deux acquisition est de 4 s. Les diminutions observées sur les blocs sont plus importantes à la fin de l'expérience.

3.5.3 Interprétations

En premier lieu, les variations de résistivité au cours de l'injection de CO_2 présentent une répartition spatiale et une amplitude tout à fait comparables à celles observées lors du monitoring d'une injection de CO₂ par la méthode ERT. Deux tomographies ERT réalisées lors de deux expériences distinctes produisent donc des résultats très similaires. Si les variations observées possèdent bien une origine physique, et ne résultent pas d'artefacts créés lors du processus d'inversion, la similarité observée suggère que les effets induits par l'injection de CO₂ sont reproductibles. Nous proposons donc les mêmes éléments d'interprétation pour expliquer ces variations de résistivité. Nous suggérons donc que la diminution de la résistivité est induite par les phénomènes de dissolution du CO₂ dans l'eau porale. Au cours de l'expérience, cette zone de diminution s'estompe sous l'influence de phénomène de désaturation du sol. Nous proposons deux causes possibles pour ces phénomènes de désaturation, qui se produisent peut être simultanément. D'abord, l'injection de CO₂, continue, déplace progressivement une partie de l'eau des pores vers les pores adjacents et diminue la saturation effective de la zone. Cette explication est renforcée par le fait que la zone de diminution de résistivité redevient plus marquée une fois que l'on a stoppé l'injection de CO₂, évoquant ainsi un retour à l'équilibre de l'état de saturation du milieu (figure 5.30). Une deuxième explication suggère qu'étant donné la faible profondeur de notre étude et les conditions météorologiques estivales lors de l'expérience, des phénomènes d'évapotranspiration participent à la diminution de la teneur en eau dans le milieu, et que cette diminution s'accroît à mesure que la journée s'écoule. Cette interprétation est concordante avec l'observation d'une augmentation globale de la résistivité dans la section, notamment dans sa partie supérieure, qui devient de plus en plus marquée au fur et à mesure que l'expérience avance.

Nous proposons d'expliquer les variations de chargeabilité observées en se basant sur ces même éléments d'interprétation. Pour un temps d'injection $T_i = 1, 5$ s, au début de l'expérience, on observe une légère augmentation de la chargeabilité dans la zone située à droite du puits d'injection (figure 5.31). Bien que cette zone ne corresponde pas exactement à la zone de diminution de résistivité observée précédemment, nous attribuons l'augmentation de chargeabilité aux phénomènes de dissolution du CO₂ qui se produisent rapidement après le début de l'injection. De nombreuses études étayent une telle interprétation. Par exemple, Revil and Skold (2011b), Weller et al. (2011b) et Weller and Slater (2012b) ont montré que la chargeabilité, ou plus globalement, la polarisabilité des géo-matériaux, augmente avec la salinité du fluide saturant selon une loi de puissance, pour des gammes de salinité inférieures à 1 S.m⁻¹. Ensuite, en avançant dans l'expérience, les processus de désaturation du sol décrits précédemment entrainent alors une diminution globale de la chargeabilité de la section. Cette interprétation est concordante avec de nombreux travaux qui étudient l'effet de la diminution du niveau de saturation en eau d'un géo-matériau sur l'ampleur de la réponse PP associée (e.g., Ulrich and Slater, 2004; Ghorbani et al., 2009b; Schmutz et al., 2010).

3.6 Estimation d'un intervalle de confiance des variations

Dans cette section, nous présentons les étapes d'une méthodologie destinée à évaluer dans quelle mesure les variations de résistivité et de chargeabilité que nous avons observées au cours de cette expérience sont bien induites par des modifications physico-chimiques au sein du milieu d'étude, et ne sont pas le résultat d'artefacts créés lors du processus d'inversion.

Cette méthodologie à été développé par Adélaïde Etienne lors de ses travaux de thèse effectués à l'université de Mons en Belgique. De ce fait, une description plus détaillée du contexte dans lequel elle à été développée, ainsi que les travaux qui ont permis d'évaluer et de valider la méthode sont disponibles dans Etienne (2014).

3.6.1 Description de la méthodologie

Le principe de cette méthode consiste à évaluer l'influence conjointe du bruit de fond environnant et du processus d'inversion sur les distributions de chargeabilité et de résistivité inversées obtenues. On formalise cette influence sous la forme d'un intervalle d'incertitude. Cet intervalle permet de définir dans quelle mesure des variations observées sur les distributions de résistivité ou de chargeabilité inversées peuvent être le résultat d'artefacts produits lors du processus d'inversion. La méthode peut être décomposée en 5 étapes.

1. Acquisition des données de terrains

La première étape de la méthode consiste à faire l'acquisition de k jeux de données dans les mêmes conditions expérimentales. Dans notre cas, nous avons utilisé les acquisitions LI001, LI002, LI003, LI007, LI008 et LI009, issues de l'étude sur l'organisation des protocoles d'acquisition présentée en section 3.4. Ces 6 acquisitions correspondent à des temps d'injection $T_i = 1,5$ s. De fait, nous avons uniquement appliqué la méthodologie décrite dans cette section aux acquisitions correspondant à un temps d'injection $T_i = 1,5$ s, à savoir les acquisitions TIP008, TIP009, TIP011, TIP012 et TIP014.

Chacun des 6 jeux de donnée utilisés est composé de 93 quadripôles de mesure à chacun desquels sont donc associés une valeur de résistivité et une valeur de chargeabilité apparentes.

2. Filtrage des données de terrain

La deuxième étape consiste à évaluer la qualité des données au regard de leurs valeurs apparentes, et d'éliminer les points de mesure qui semblent aberrants. Pour procéder à cette sélection, on peut en premier lieu éliminer les points de mesure pour lesquels on juge le rapport signal sur bruit trop faible (différence de potentiel inférieure à 0,1 V et intensité du courant injecté inférieure à 5 mA). On peut aussi utiliser l'option "exterminate bad datum points" du logiciel Res2dInv, qui permet de visualiser les mesures de résistivité aberrantes. On peut également observer la courbe de décroissance des chargeabilités partielles mesurées par l'appareil, et éliminer les points correspondant à des courbes non conformes, i.e., qui ne sont pas monotones décroissantes. Dans ses travaux de thèse, Etienne (2014) développe également un mode de sélection basé sur la réciprocité des mesures. Dans notre cas, nous ne disposons pas d'acquisitions correspondant aux mesures réciproques. Nous avons donc effectué les contrôles associés aux trois premières méthodes citées. Au terme de ces contrôles, nous n'avons rejeté aucun quadripôle de mesure. Les différences de potentiel mesurées et l'intensité du courant injecté sont systématiquement au dessus des seuils limites. Les courbes de décroissance des chargeabilités partielles mesurées sont toutes conformes, sans exception, et les diagrammes de résistivité fournis par le logiciel Res2Dinv sont tous corrects, on n'y observe pas de variations aberrantes.

3. Elaboration de données virtuelles sur la base de simulation de Monte-Carlo

Cette troisième étape consiste à générer de manière aléatoire un grand nombre de jeux de données virtuels, en se basant sur une loi statistique dont on détermine les paramètres à partir des jeux de données réels acquis sur le terrain. En l'occurrence, nous utilisons ici la loi normale, dont la fonction de densité est donnée par :

$$F(x) = \frac{n}{\sqrt{2\pi\sigma}} \exp\left(-\frac{(x-\mu)^2}{2\sigma^2}\right)$$
(5.4)

où *n* représente le nombre total d'individus composant la distribution étudiée, μ est la moyenne et σ l'écart-type associés à la distribution de valeurs.

Nous avons donc choisi d'utiliser la loi normale pour simuler nos données virtuelles. Avant de procéder à la simulation des données, il convient cependant de bien vérifier que la distribution de données réelles associée à chaque quadripôle de mesure (dans notre cas 6 valeurs de ρ et 6 valeurs de m par quadripôle), suivent bien une loi normale. Pour ce faire, nous avons appliqué le test de normalité de Shapiro-Wilk, particulièrement efficace pour les petits effectifs (n < 50) (Rakotomalala, 2011), et donc particulièrement adapté à notre cas d'étude. La statistique W du test de Shapiro-Wilk s'écrit :

$$W = \frac{\left[\sum_{i=1}^{\left[\frac{n}{2}\right]} a_i \left(x_{(n-i+1)} - x_i\right)\right]^2}{\sum_i \left(x_i - \tilde{x}\right)^2}$$
(5.5)

avec x_i la série de données triée dans l'ordre croissant pour un chaque quadripôle, \tilde{x} la moyenne de la série de données, $\left[\frac{n}{2}\right]$ la partie entière du rapport $\frac{n}{2}$ et a_i des coefficients fournis par des tables spécifiques qui dépendent du nombre d'échantillons.

D'après Rakotomalala (2011) on peut concevoir la quantité W de ce test comme le coefficient R^2 d'une droite de régression entre la série des quantiles générés à partir de la loi normale et les quantiles empiriques obtenus à partir des données. Plus la valeur de W est grande, plus l'hypothèse de normalité de la distribution de données est crédible. Il existe une valeur critique W_c en dessous de laquelle l'hypothèse de normalité est rejetée, qui est également donnée dans les tables spécifiques, et dépend du nombre d'individus dans la distribution.

Nous avons donc appliqué le test de Shapiro-Wilk à chaque quadripôle de mesure, pour la distribution de résistivités d'une part et la distribution de chargeabilités d'autre part. Dans les

tables spécifiques associées à ce test (Biometrika, 1965), deux valeurs de W_c sont proposées. Une pour le risque $\alpha = 1\%$ qui vaut dans notre cas $W_{1\%} = 0,713$ et une pour le risque $\alpha = 5\%$ plus restrictive, qui vaut $W_{5\%} = 0,788$. En appliquant le test en utilisant la valeur critique la plus restrictive, nous avons déterminé que pour 98% des distributions de chargeabilité et 99% des distributions de résistivité issues de nos 6 acquisitions, l'hypothèse de normalité était validée. A partir de ce constat sans équivoque, nous sommes en mesure d'utiliser la loi normale pour générer des jeux de données virtuels à partir de nos données réelles.

Ainsi, pour chaque quadripôle, on calcule les paramètres de la loi normale associés à la distribution de chargeabilités d'une part et la distribution de résistivités d'autre part. On utilise alors les lois normales ainsi définies pour simuler pour chaque quadripôle un grand nombre de jeux de données. A savoir, dans notre cas, 100 jeux de données PPT.

4. Inversion des jeux de données simulés

L'étape suivante consiste alors à inverser chacun de ces jeux de données dans les mêmes conditions d'inversion que celles utilisées pour les jeux de données réels. En procédant ainsi, nous avons alors obtenu 100 modèles inversés de résistivité et de chargeabilité. Tous ces modèles sont composés du même nombre de blocs N.

5. Calcul de l'intervalle de confiance

Ainsi, pour chacun des blocs qui structurent le modèle inverse, nous disposons d'une distribution de 100 valeurs de chargeabilité inversées et de 100 valeurs de résistivités inversées. Nous pouvons alors calculer l'écart-type et la moyenne de chacune de ces distributions, sur chacun des blocs du modèle, et définir l'intervalle de confiance remarquable à 95 % de la loi normale, qui s'écrit :

$$\left[\mu - 2\sigma < \Delta X < \mu + 2\sigma\right] \tag{5.6}$$

avec μ la moyenne de la distribution, σ l'écart type, et ΔX la variation sur la variable X

Avant de pouvoir adopter cet intervalle de confiance, il convient de vérifier que les distributions de chargeabilité et de résistivité inversées obtenues sur chaque bloc suivent également une loi normale.

Cas des distributions de résistivités

Dans ce but, nous avons à nouveau utilisé le test de Shapiro-Wilk. Les résultats du test réalisé sur les valeurs de résistivité montrent que dans 75 % des cas, l'hypothèse de normalité ne peut être rejetée. En examinant plus attentivement la distribution de résistivité des blocs pour lesquels l'hypothèse était rejetée, nous nous sommes aperçu de probables défaillances du test de Shapiro-Wilk sur ces blocs.

Sur la figure 5.37 nous avons représenté le diagramme de probabilité associé à la distribution des valeurs de résistivité de 3 blocs, 2 pour lesquels l'hypothèse de normalité a été acceptée et 1 pour lequel elle a été rejetée. Le diagramme de probabilité est un outil graphique permettant d'évaluer visuellement si un ensemble de valeurs suit une distribution donnée (Chambers et al., 1983). En l'occurrence, sur les graphiques de la figure 5.37, l'organisation des percentiles (axe des abcisses) permet d'estimer la normalité de la distribution. Pour une distribution normale, l'ensemble des points de la distribution peut être approximé par une droite (c.f. graphique b), et la densité de points augmente lorsque l'on s'approche du percentile médian (50 %).



FIGURE 5.37 – Comparaison entre les graphiques de probabilités associés aux distributions de résistivité inversées. a) distributions de résistivité pour 3 blocs du modèle, 1 pour lequel l'hypothèse de normalité est rejetée par le test de Shapiro-Wilk, 2 pour lesquels l'hypothèse est validée. b) Exemple d'un graphe de probabilité associé à une distribution aléatoire de valeurs suivant une loi normale de moyenne 10 et d'écart type 2.

Sur le graphique a), on observe que les trois blocs dont nous avons représenté la distribution de résistivités associée présentent une répartition des points très similaires avec celle d'une distribution normale (e.g., graphique b). Dans les trois cas, on peut approximer l'ensemble des points par une droite, avec de bon coefficients de régression linéaire (> 0,98). Pourtant, pour l'un de ces trois blocs, le test de Shapiro-Wilk a rejeté l'hypothèse de normalité. La visualisation graphique de la répartition des valeurs nous conduit à penser que dans certains cas, le test de Shapiro-Wilk n'est pas fiable.

Nous avons alors examiné le graphique de probabilité normale associé aux distributions de résistivité d'une partie (choisie au hasard) des blocs pour lesquels l'hypothèse de normalité a été rejeté par le test de Shapiro-Wilk. En extrapolant les résultats, nous estimons que l'hypothèse de normalité ne peut être rejetée pour au moins 95 % des blocs. *In fine*, nous pouvons donc utiliser l'intervalle de confiance à 95 % de la loi normale pour estimer l'intervalle d'incertitude des variations de résistivité lors des expériences.

Cas des distributions de chargeabilité

Dans le cas des distribution de chargeabilités, le test de Shapiro-Wilk rejette l'hypothèse de normalité pour 100 % des blocs du modèle. Ceci résulte du fait que les valeurs de chargeabilité inversées varient très peu entre les différents jeux de données simulés. La figure 5.38 présente le graphique de probabilité associé à la distribution des valeurs de chargeabilité inversés pour un bloc choisi au hasard.



FIGURE 5.38 – Graphique de probabilité associé à la distribution d'un bloc du modèle choisi au hasard. Les valeurs de chargeabilité sont réparties en paliers.

On observe que les valeurs sont réparties en paliers. cette répartition est due au fait que les valeurs de chargeabilités varient très peu. Si la précision du processus d'inversion était supérieure (de l'ordre du millième de ms), on s'attendrait à observer une répartition normale des valeurs. Dans le cas présent, pour une précision au centième de ms, les faibles variations observées entraînent cette répartition en paliers.

Ainsi, dans le cas des distributions de chargeabilité, nous ne pouvons pas utiliser l'intervalle de confiance à 95 % de la loi normale. Dans la suite, nous avons donc choisi d'utiliser comme intervalle de confiance l'écart entre la valeur maximale et la valeur minimale de la distribution, i.e., l'étendue de la distribution :

$$[min(D) < \Delta X < max(D)] \tag{5.7}$$

avec D la distribution de valeurs et ΔX la variation sur la variable X.

3.6.2 Résultats - interprétation.

Pour comparer l'ampleur des variations de résistivité et de chargeabilité observées avec l'intervalle d'incertitude calculé, nous avons choisi de calculer pour chaque bloc composant les modèles inversés la quantité Q_X , définie comme la différence entre la valeur absolue de la variation de la variable X observée sur un bloc et la largeur de l'intervalle d'incertitude correspondant au bloc en question.

Pour les distributions de résistivité, on a :

$$Q_X = |\Delta X| - 4\sigma \tag{5.8}$$

Et pour les distributions de chargeabilité :

$$Q_X = |\Delta X| - (max(D) - min(D))$$
(5.9)

Avec σ l'écart type de la distribution et (max(D) - min(D)) l'étendue de la distribution.

Ainsi définie, cette quantité permet de visualiser simplement si la variation sur X est comprise ou non dans l'intervalle de confiance associé. Si la quantité Q_X est négative, alors la variation est comprise dans l'intervalle d'incertitude, et on ne peut pas lui attribuer avec certitude une origine physique. Si Q_X est positive, alors la variation observée est plus grande que l'intervalle d'incertitude, et est donc la conséquence d'une modification du milieu et non de l'influence du bruit environnant.

Les figures 5.39 et 5.40 présentent respectivement les distributions des quantités Q_{ρ} et Q_m relatives aux variations de chargeabilité et de résistivité observées lors de l'expérience, pour les acquisitions avec le temps d'injection $T_i = 1, 5$ s.

On observe que les variations de résistivité ont, pour la quasi-totalité des blocs, une amplitude inférieure à la largeur de l'intervalle d'incertitude. A contrario, les variations de chargeabilité sont systématiquement plus importantes que la largeur de l'intervalle d'incertitude, excepté pour les acquisitions TIP008 et TIP009 réalisées au début de l'injection de CO_2 , pour lesquelles on observe dans la zone centrale de la section des variations du même ordre de grandeur ou légèrement inférieures à la largeur de l'intervalle d'incertitude. Cette zone centrale correspond approximativement à la zone où la chargeabilité augmente au début de l'expérience (c.f. figure 5.34).

Ces observations montrent qu'avec les critères utilisés pour définir l'intervalle d'incertitude, on ne peut rigoureusement attribuer les variations de résistivité observées à des changements physiques au sein du milieu d'étude. Nous devons considérer la possibilité que ces variations soient induites par le processus d'inversion que nous avons utilisé. A contrario, le paramètre chargeabilité montre une meilleure fiabilité. La méthodologie appliquée démontre l'origine physique des variations qu'il subit. Ce constat met en valeur le potentiel de la méthode PPT pour la détection et le suivi de phénomènes physico-chimiques se produisant dans un sol tels que ceux induits par un transfert de CO_2 , par rapport aux méthodes de mesure de la résistivité.

3.7 Conclusions

Le suivi temporel de l'injection de CO_2 par la méthode PPT nous a permis de mesurer des variations de résistivité et de chargeabilité. Les variations de résistivité de la section pré-



FIGURE 5.39 – Distribution de la quantité Q_{ρ} sur l'ensemble des blocs qui composent le modèle, pour chacune des acquisitions effectuées au cours de l'expérience, avec un temps d'injection $T_i = 1, 5$ s. La quasi-totalité des blocs présente des valeurs de Q_{ρ} négatives. Les variations de résistivité sont donc comprises dans l'intervalle de confiance.

sentent une distribution spatiale et des amplitudes très similaires à celles observées lors du suivi temporel par la méthode ERT. Nous proposons donc les mêmes éléments d'interprétation pour expliquer ces variations. Nous attribuons la diminution de résistivité observée en début d'expérience aux processus rapides de dissolution du CO_2 qui augmentent la conductivité électrique de l'eau porale. Les augmentations de résistivité sont attribuées à des phénomènes de désaturation tels que l'évapotranspiration du sol ou le déplacement de l'eau porale induit par la pression du gaz injecté.

Les variations de chargeabilité observées sont bien plus importantes que les variations de résistitvité (de l'ordre de 20 % contre 2%). Une légère augmentation de chargeabilité est observée au début de l'injection de CO_2 ($\approx 5\%$). Nous l'attribuons à la dissolution du CO_2 , qui entraîne une augmentation de la conductivité électrique de l'eau saturante. Puis, au cours de l'expérience, l'ensemble des valeurs de chargeabilité observées diminuent. Nous considérons cette diminution globale comme directement liée à l'augmentation globale des résistivités, et nous associons donc également ce comportement à la diminution du niveau de saturation en eau du milieu,



FIGURE 5.40 – Distribution de la quantité Q_m sur l'ensemble des blocs qui composent le modèle, pour chacune des acquisitions effectuées au cours de l'expérience, avec un temps d'injection $T_i = 1, 5$ s. La quasi-totalité des blocs présente des valeurs de Q_m positives. Les variations de résistivité sont donc plus importantes que la largeur de l'intervalle de confiance.

que nous estimons progressive au cours de l'expérience. La diminution de la chargeabilité ou de la polarisabilité avec la diminution du niveau de saturation en eau a été observée à plusieurs reprise dans la littérature (e.g., Ulrich and Slater, 2004; Binley and Kemna, 2005; Ghorbani et al., 2009b).

Une autre explication possible fait intervenir la diminution du pH dans l'eau porale suite à la dissolution d'une partie du CO_2 injecté. La majorité des études portant sur l'influence du pH sur la chargeabilité d'un milieu rapportent que cette dernière diminue lorsque le pH diminue (e.g., Lesmes and Frye, 2001; Skold et al., 2011). Il est possible que ces effets de pH participent également à la diminution des valeurs de chargeabilité observées au cours de l'expérience.

En appliquant la méthodologie développée par Etienne (2014), nous avons pu discerner les variations qui peuvent être attribuées avec certitude à une modification de l'état physicochimique du milieu de celles pour lesquelles on ne peut écarter l'influence éventuelle du processus d'inversion. Sans équivoque, les variations de chargeabilité sont plus fiables que les variations de résistivité. Ces résultats sont encourageants quant à la capacité de la méthode de polarisation provoquée temporelle a détecter les variations physico-chimiques induites par l'injection de $\rm CO_2$ dans un sol.

4 Polarisation provoquée spectrale (PPS)

En complément des méthodes ERT et PPT, nous avons également choisi d'explorer la capacité de la méthode PPS à détecter un transfert de CO_2 dans le sous-sol. L'objectif est d'étudier la dépendance fréquentielle des propriétés capacitives du milieu, et d'évaluer si l'injection de CO_2 produit un impact significatif sur la réponse observée.

4.1 Dispositif de mesure

L'appareil d'acquisition que nous avons utilisé pour réaliser les mesures est le SIP FUCHS III, développé par Radic Research. Les différents composants du système lors d'une utilisation en laboratoire sont décrits à la section 1.1.2 du chapitre 3 (p.182). Lors d'une acquisition sur le terrain, le principe de fonctionnement est le même, à ceci près qu'il est nécessaire d'ajouter une unité de puissance de 600 W entre l'unité d'acquisition et les bobines externes d'injection et de mesure, qui permet d'amplifier le signal tout en conservant sa stabilité.

Comme nous l'avons indiqué en section 1.3 au début de ce chapitre, le suivi temporel de l'injection de CO_2 par la méthode PPS a été mis en œuvre sous la forme d'un sondage vertical. Les mesures étant particulièrement longues en PPS, un sondage vertical permet de conserver une discrétisation temporelle des mesures adaptée à la durée de l'expérience. Pour les mesures préliminaires comme pour le suivi temporel de l'injection de CO_2 , nous avons utilisé des configurations d'électrodes de type Schlumberger. La disposition du matériel d'acquisition sur le terrain ainsi qu'un exemple de configuration d'électrode utilisée sont donnés sur la figure 5.41.

4.2 Mesures préliminaires

Nous avons réalisé des mesures préliminaires à l'expérience de suivi temporel proprement dite, dans le but d'étudier l'influence de certains paramètres d'acquisition et de déterminer le mode d'acquisition optimal.

Nous avons réalisé 8 acquisitions PPS en faisant varier l'espacement inter-électrode, toujours pour des configurations de type Schlumberger. Les caractéristiques de chacune de ces acquisitions sont rassemblées dans le tableau 4.2.1.

4.2.1 Sondage de résistivité électrique

Nous avons également indiqué dans ce tableau les facteurs géométriques et les valeurs de résistivité apparentes associées à chaque mesure (colonne ρ_a). Ces résistivités apparentes sont calculées à partir de la moyenne du spectre fréquentiel de résistance mesuré par l'appareil.

Dans la colonne « ρ_a corrigées », nous avons reporté les valeurs de résistivités apparentes correspondant à l'espacement MN = 0,3 m, corrigées de façon à ce qu'elles soient équivalentes



FIGURE 5.41 – Photos représentant la disposition de l'unité d'acquisition, de l'unité de puissance, et des bobines de mesure et d'injection du système SIP FUCHS III. Les électrodes d'injection sont espacées de 0,9 m et les électrodes de mesure M et N de 0,3 m. Le SIP FUCHS III requiert l'utilisation d'une électrode de référence placée au milieu du dipôle de mesure.

N° Mesure	AB (m)	MN (m)	k	R moyenne (Ω)	$\rho_a (\Omega.\mathbf{m})$	$ \rho_a \text{ corrigées } (\Omega.\mathbf{m}) $
1	0,9	0,3	1,88495559	35	65,97	$73,\!9$
2	1,5	0,3	$5,\!65486678$	14	79,16	88,7
3	3	0,3	$23,\!3263255$	4	$93,\!3$	104,5
4	5	0,3	$65,\!2142275$	1,6	$104,\!34$	116, 86
5	5	1	$18,\!8495559$	6,2	116, 86	-
6	7	1	$37,\!6991118$	3,4	$128,\!17$	-
7	10	1	77,7544182	$1,\!85$	$143,\!84$	-
8	15	1	$175,\!929189$	0,84	$147,\!78$	-

TABLE 5.5 – Caractéristiques géométriques des 8 configurations d'électrodes testées et valeurs de résistivités apparentes associées. N.B : les valeurs de ρ_a corrigées correspondent bien à celles mesurées pour un espacement MN de 1 m (valeurs en gras)

à des mesures effectuées avec une espacement MN = 1 m. Cette procédure de correction est parfois nommée « correction d'à-coup de prise ».

Principe de la correction d'à-coup de prise

En théorie, pour un espacement des électrodes d'injection AB donné la valeur de résistivité apparente mesurée ne dépend pas de l'espacement des électrodes de mesure MN. Si l'on observe une différence pour deux espacements MN distincts, celle-ci résulte soit de l'existence d'hétérogénéités dans la zone proche des électrodes de mesure, qui modifie l'intensité du champ de potentiel, soit d'une erreur de positionnement des électrodes (qui entraîne le calcul d'un facteur géométrique erroné). Dans notre cas, la résistance apparente obtenue lors des mesures n°4 et n°5 (c.f. tableau 4.2.1) n'est pas la même. La procédure de correction d'à-coup de prise permet alors d'estimer la valeur des résistivités apparentes qui seraient mesurées lors des acquisition n°1,2,3 et 4 si l'espacement MN était bien de 1 m.

Remarque : Dans ce genre de cas, on utilise généralement l'espacement MN le plus grand comme espacement de référence (ici 1 m), et l'on corrige les valeurs de résistivité apparente associées aux espacement MN les plus petits (ici 0,3 m). Procéder ainsi permet d'éviter de propager des erreurs liées au positionnement des électrodes dans les calculs, qui sont proportionnellement plus importantes pour des petits écarts.

La procédure consiste alors à calculer le facteur correctif entre les mesure n°4 et n°5, qui sont censées donner des valeurs de résistivité apparente identiques, et à appliquer ce facteur aux valeurs de résistivité apparente des autres mesures (1, 2 et 3). En prenant l'espacement MN = 1 m comme espacement de référence, ce facteur s'écrit :

$$\alpha = \frac{\rho_{MN=1}}{\rho_{MN=0,3}} = 1,12 \tag{5.10}$$

En appliquant ce facteur correctif aux mesures n°1, 2, et 3, on obtient les valeurs corrigée de la résistivité apparente.

Inversion 1D des résistivités apparentes

En utilisant le logiciel "qwseln" conçu à l'université Pierre et Marie Curie (Tabbagh, 2003), nous avons inversé les résistivités apparentes obtenues avec les mesures 5, 6, 7 et 8 et les résistivités apparentes corrigées des mesures 1, 2 et 3. La figure 5.42 montre une capture d'écran illustrant les résultats de l'inversion.



FIGURE 5.42 – Résultats de l'inversion des résistivités apparentes issues des mesures n° 5, 6, 7 et 8 et des résistivités apparentes corrigées des mesures 1, 2 et 3. Capture d'écran du logiciel qwseln.

A partir de ces résistivités apparentes, le terrain peut être approximé à un milieu tabulaire composé d'une couche superficielle de 0,57 m d'épaisseur et de résistivité 74 Ω .m et d'une couche secondaire d'épaisseur infinie et de résistivité 152,5 Ω .m. L'écart relatif entre le modèle direct associé à ce milieu et les mesures est de 3,5 %. Pour obtenir ce résultat, nous avons utilisé peu de points de mesure, ce pourquoi nous devons juger la pertinence de ce modèle avec prudence. Cependant, on retrouve tout de même l'ordre de grandeur des résistivités obtenues lors des acquisitions en ERT (c.f. section 2.1.3 figure 3.62), et le modèle qwseln corrobore aussi l'existence d'une couche superficielle de résistivité inférieure à celle des couches plus profondes.

4.2.2 Phases apparentes

La figure 5.43 représente les spectres fréquentiels de déphasage mesurés lors des acquisitions 1 à 8. Le graphique a) rassemble les valeurs obtenues lorsque l'écart entre les électrodes de mesure MN vaut 0,3 m et le graphique b) celles obtenues pour une distance MN de 1 m. Le graphique c) permet de comparer les valeurs de phases apparentes mesurées pour un même espacement AB (5 m) et deux espacements MN différents. En l'occurrence, on observe que les déphasages sont identiques pour les fréquences inférieures à 1 kHz. Dans cette gamme de fréquences, la position des électrodes de mesure n'a pas d'influence sur le déphasage. Aux hautes fréquences on observe une différence.

Sur le graphique a), les quatre spectres de phase ont une forme similaire. Pour les fréquences comprises entre 0,01 Hz et 1 Hz, on observe une évolution linéaire avec la fréquence. Aux moyennes fréquences (entre 1 Hz et 100 Hz) les valeurs de phase ont atteint un plateau, et en s'approchant des hautes fréquences (f > 100 Hz), on observe à nouveau une augmentation des valeurs de phase, approximativement linéaire. La forme de ces spectres de phase rappelle fortement celle des spectres de conductivité en quadrature mesurés lors des expériences en laboratoire (c.f. chapitre 3) sur des sables saturés en eau. Ce type de spectre a également été observé par Lesmes and Frye (2001), lors de mesures en laboratoire effectuées sur des grès de Berea. On observe également que lorsque l'espacement des électrodes d'injection AB augmente, l'amplitude des valeurs de phase correspondant au plateau (moyenne fréquences) diminue. Enfin, pour ces quatre acquisitions, les erreurs de mesure sont significativement élevées en dessous de la fréquence f = 0, 1 Hz.

Sur le graphique b) les spectres relatifs aux plus petits espacements AB (5 m et 7 m) ont également une forme similaire à celle décrite précédemment. Aux basses fréquences les valeurs de phase augmentent linéairement, puis atteignent un plateau aux moyennes fréquences, puis augmentent de nouveau à partir de la fréquence f = 100 Hz. On observe cependant que lorsque l'espacement AB augmente, la pente qui caractérise l'évolution basse fréquence (entre 0,01 Hz et 1 Hz) diminue. De fait, lorsque AB = 10 m, le plateau est déjà atteint à la fréquence f=0,02 Hz. Le spectre correspondant à l'écartement AB = 15 m est sensiblement différent des autres. On observe un pic de phase localisé à la fréquence f = 0, 1 Hz. Après ce pic, les valeurs de phase diminuent relativement rapidement jusqu'à une fréquence de 1 kHz, à partir de laquelle elles recommencent à augmenter. Des courbes similaires ont été observées par Revil (2013) sur des grès argileux. Ces résultats ainsi que ceux de Lesmes and Frye (2001) sont rassemblés dans



FIGURE 5.43 – Représentation des spectres de déphasages mesurés lors des acquisitions préliminaires pour différents espacement d'électrodes. a) Spectres des acquisitions dont l'espacement MN des électrodes de mesure vaut 0,3 m et l'espacement AB varie. b) Spectres pour un espacement MN de 1 m. L'espacement AB varie. c) Comparaison des spectres pour un espacement AB = 5 m et 2 valeurs de MN différentes.

Revil (2013), qui développe un modèle de polarisation unifié à partir de ces deux types de résultats. Concernant les erreurs de mesure, on note qu'elles sont bien moins importantes aux basses fréquences sur le graphique b) que sur le graphique a), ce qui montre que l'écartement MN = 1 m est plus approprié pour mesurer des déphasages à des fréquences inférieures à 1 Hz. Cette observation est logique car loin des électrodes d'injection, l'intensité du signal mesuré, et donc le rapport signal sur bruit, est plus faible.

Généralement, les pics de phase tel que celui observé sur la courbe AB = 15 m sont associés à l'existence de phénomènes de polarisation dont le temps de relaxation correspond à la fréquence du pic. Ces phénomènes de polarisation sont liés à une dimension caractéristique du milieu,

comme le diamètre majoritaire des grains composant la roche (e.g., Leroy et al., 2008), ou le diamètre moyen des pores (e.g., Scott and Barker, 2003; Binley and Kemna, 2005).

Ainsi, on observe que la réponse fréquentielle du déphasage est modifiée lorsque les distances inter-électrodes AB et MN augmentent. D'une forme en "plateau", les spectres changent progressivement, et pour l'écartement le plus grand, le spectre est de type "pic de phase". A partir de ce constat, il est légitime de supposer qu'en augmentant l'écartement des électrode, i.e., en accroissant la profondeur d'investigation de nos mesures, nous nous approchons d'une zone possédant des caractéristiques structurales et/ou minéralogiques spécifiques qui produisent ce pic de relaxation. En particulier, il est raisonnable de supposer que cette zone est caractéristique volume de terrain investigué prend suffisamment en compte cette zone, le pic de phase à la fréquence de relaxation associée à cette dimension devient observable sur le spectre de déphasage.

En théorie, il est possible de calculer une estimation de la dimension structurale caractéristique associée au pic de relaxation. Ici, nous ne disposons pas de suffisamment d'informations sur les caractéristiques du milieu pour proposer un calcul rigoureux. Nous proposons toutefois une estimation grossière basée sur le modèle développé dans Schmutz et al. (2010). Selon ce modèle, le diamètre médian de la distribution des tailles de grains D_{50} est relié aux caractéristiques du milieu par la relation :

$$D_{50} = \sqrt{\frac{4D_S^i}{\pi\alpha f_0}} \tag{5.11}$$

avec D_S^i le coefficient de diffusion des ions dans la couche de Stern, α le coefficient de tortuosité du milieu et f_0 la fréquence de relaxation.

Dans notre cas, nous ne possédons aucune information probante concernant les valeurs effectives de D_S^i et α dans notre milieu. En utilisant les valeurs proposées dans Schmutz et al. (2010), qui correspondent à un sable siliceux de porosité 0,4 et de facteur de formation 3,9, on obtient, pour la fréquence de relaxation associée au pic de phase observé, un diamètre médian D_{50} de 143 µm. Cette valeur est évidemment à considérer avec prudence puisque les valeurs de D_S^i et α utilisées dans le modèle ne correspondent probablement pas à celles du milieu réel.

4.3 Protocoles d'acquisition

4.3.1 Choix des configurations d'électrodes

Au regard des résultats obtenus lors des acquisitions préliminaires, nous avons choisi d'effectuer le suivi temporel de l'injection de CO_2 en utilisant 3 espacements d'électrode d'injection différents, centrés sur la position du puits d'injection de gaz. D'après le sondage de résistivité effectué lors des mesures préliminaires, notre terrain peut raisonnablement être assimilé à un milieu tabulaire à deux couches. Sur la courbe issue de l'inversion des résistivités apparentes (c.f. figure 5.44), ceci se traduit par deux asymptotes horizontales aux extrémités de la courbe d'inversion. La première couche de terrain étant particulièrement peu profonde (0,57 m), nous avons choisi d'utiliser des espacements AB permettant d'obtenir surtout des informations sur la couche de terrain inférieure. Dans cette optique, nous avons choisi les espacements AB = 10 m et AB = 15 m, pour lesquels la résistivité apparente mesurée est proche de l'asymptote correspondant au terrain inférieur, et l'espacement AB = 3 m pour lequel les mesures sont influencées par les deux terrains du modèle (résistivité apparente situé dans la zone de transition de la courbe).



FIGURE 5.44 – Résultats de l'inversion des résistivités apparentes issues des mesures n° 5, 6, 7 et 8 et des résistivités apparentes corrigées des mesures 1, 2 et 3. Capture d'écran du logiciel qwseln. Les traits rouges représentent les asymptotes à la courbe, les points agrandis aux espacements d'électrodes choisis pour effectuer le suivi temporel.

Ensuite, nous avons décidé d'utiliser un espacement MN = 1 m, car le rapport signal sur bruit est plus faible que pour l'espacement MN = 0.3 m. In fine, nous nous sommes limités à trois espacements d'électrode afin de conserver une discrétisation temporelle adaptée à la durée de l'expérience.

4.3.2 Disposition des câbles en rectangle

D'après les résultats de Schmutz et al. (2014), la disposition des câbles d'injection en forme de rectangle permet de réduire les effets du couplage électromagnétique sur les mesures par rapport aux dispositions en ligne ou en triangle. Nous avons donc choisi d'effectuer nos acquisitions en utilisant ce type de dispositif. La figure 5.45 donne une représentation schématique des trois quadripôles utilisés lors du suivi temporel de l'injection de CO_2 . L'unité d'acquisition est placée du côté du bâtiment, et la bobine de mesure est située de l'autre côté de la ligne d'électrode. L'injection du courant est réalisée au moyen d'électrodes en inox et la mesure du potentiel avec des électrode impolarisables du même type que celles utilisées pour l'étude en PPT. Sur ce schéma, nous avons assigné à chaque bras composant les « rectangles de câbles » une dénomination (a_1 , b_4 etc...). Ces dénominations représentent la longueurs des bras en question. Nous les réutiliserons dans la suite de cette étude.



FIGURE 5.45 – Schéma représentant les trois configurations d'électrodes utilisées lors de l'expérience. L'unité d'acquisition et la bobine d'injection sont placées du côté du bâtiment, et la bobine de mesure est placée de l'autre côté de la ligne d'électrodes. L'injection est réalisée avec des électrodes en inox et la mesure avec des électrodes impolarisables. Les dénominations a_1 , b_4 etc... correspondent à la longueur des bras composant les dispositifs de câbles en rectangle.

4.3.3 Planning des mesures

Nous avons effectué les acquisitions sur les trois quadripôles successivement, en commençant par l'écart AB le plus petit (3 m), puis l'écart AB = 10 m et enfin le plus grand écart (AB = 15 m). Le tableau 4.3.3 référence le moment t auquel ont été effectuées chacune des acquisitions, en prenant pour référence t=0 le début de l'injection de CO_2 . Pour chacun des quadripôles, nous avons réalisé une mesure de l'état initial, trois mesures lors de l'injection proprement dite et une mesure après la fin de l'injection.

4.3.4 Paramètres d'acquisition

Pour toutes les acquisitions effectuées, le courant injecté est compris entre 50 mA et 100 mA. Afin d'optimiser les temps d'acquisition des mesures et de disposer, *in fine*, d'une discrétisation temporelle raisonnable à l'échelle de l'étude, nous avons choisi de réduire la gamme de fréquences d'acquisition par rapport aux mesures préliminaires. Pour toutes les acquisitions, la gamme de fréquences utilisée est [45 mHz 20 kHz]. Lors des mesures préliminaires la gamme de fréquences de mesure était [11 mHz 20 kHz]. Supprimer les deux fréquences de mesure les plus basses nous permet de réduire la durée des acquisitions à 15 min contre 45 min lors des mesures préliminaires.

Etat du système	Temps t (min)	Distance AB (m)	Nom fichier
Etat 0	-64	3	3m-initial
$\operatorname{Etat} 0$	-49	10	10m-initial
$\operatorname{Etat} 0$	-32	15	$15 \mathrm{m} ext{-initial}$
DEBUT injection	0		
	34	3	3m-1
	48	10	10m-1
	58	15	15 m-1
	127	3	3m-2
	138	10	$10 \mathrm{m}$ - 2
	149	15	$15 \mathrm{m}$ - 2
	226	3	3m-3
	234	10	10 m-3
	244	15	$15 \mathrm{m}$ - 3
FIN injection	247		
Etat post injection	282	3	3m-4
Etat post injection	294	10	10m-4
Etat post injection	307	15	15m-4

TABLE 5.6 – Tableau récapitulatif du déroulement des mesures en PPS.

4.4 Résultats

4.4.1 Mesures pré-injection

Sur le graphique a) de la figure 5.46, nous avons représenté les spectres de phase obtenus lors des mesures de l'état initial (avant l'injection de CO_2), pour les trois configurations d'électrodes choisies.

On observe que ces spectres présentent des formes distinctes selon l'espacement AB de la configuration d'électrode qui leur est associée. Dans la gamme de fréquences [45 mHz 375 Hz], les valeurs de phase diminuent avec la fréquence pour l'espacement AB = 15 m, augmentent avec la fréquence pour l'espacement AB = 3 m, et restent à peu près constantes pour l'espacement AB = 10 m. Pour les fréquences au delà du kHz, le déphasage augmente rapidement avec la fréquence pour les espacements 3 m et 10 m et reste à peu près constant pour l'espacement AB = 15 m, excepté à la fréquence maximale f = 20 kHz où l'on observe une augmentation nette. De façon globale, les erreurs sur les mesures sont faibles, excepté pour la fréquence $f \approx 50$ Hz où elles sont très élevées, ce qui est une observation classique lorsque l'on effectue des mesures de PPS en milieu urbain (fréquence associée au réseau électrique environnant). Dans la suite, nous ne représenterons plus les valeurs associées à cette fréquence.



FIGURE 5.46 – Représentation en échelle log-log des spectres de phase mesurés avec les 3 quadripôles d'électrodes d'espacements respectifs AB = 3 m, AB = 10 m, et AB = 15 m.

Finalement, les spectres de phase observés à l'état initial rappellent ceux obtenus lors des mesures préliminaires (graphique b) de la figure 5.46), avec cependant quelques différences notables. Pour le spectre associé à l'espacement AB = 15 m, on n'observe plus le pic de phase à la fréquence 0,1 Hz. Il est possible que le dernier point de mesure corresponde au pic en question, ou que celui-ci soit en réalité décalé vers les basses fréquences sur le spectre de l'état initial. Dans les deux cas, le pic de phase est décalé vers les basses fréquences par rapport au pic mesuré lors des mesures préliminaires. On observe également des différences aux hautes fréquences (f > 1 kHz). A l'état initial des expériences on n'observe pas l'augmentation des valeurs de phase à partir des mêmes fréquences que lors des mesures préliminaire. Enfin, de façon globale, les valeurs de phase mesurées à l'état initial sont inférieures à celles obtenues lors des mesures préliminaires.

Cette dernière observation est également valable pour les spectres correspondant à l'espacement AB = 10 m. Aux basses fréquences, comme aux hautes fréquences, le déphasage mesuré est supérieur lors des acquisition préliminaires. Pour cet espacement cependant, les formes des deux spectres sont assez bien concordantes, on observe des valeurs de phase à peu près constantes pour les fréquence inférieures à 1 kHz, puis une augmentation brutale du déphasage vers les hautes fréquences, qui se produit dans les 2 cas autour de la fréquence f = 375 Hz.

A partir de ces observations, nous pouvons raisonnablement avancer l'hypothèse que le milieu d'étude à subit des changements intrinsèques entre la campagne de mesures préliminaires et le jour où l'on a réalisé le suivi temporel de l'injection de CO_2 . En l'occurrence, le décalage du pic de relaxation vers les basses fréquences et la diminution globale des valeurs de déphasage suggère que le niveau de saturation en eau du milieu est probablement plus faible le jour de l'expérience que lors des mesures préliminaires (e.g., Schmutz et al., 2010).

4.4.2 Inversion des mesures

Nous avons utilisé le logiciel Cr1Dinv développé par Ghorbani et al. (2009a) pour essayer d'inverser les données. Ce logiciel permet l'inversion 1D de sondages en PPS à partir du modèle Cole-Cole. Nous avons effectué de nombreuses tentatives d'inversion qui se sont malheureusement révélées infructueuses. Nous avons tenté d'implémenter des modèles tabulaires à deux ou trois couches, pour lesquels nous avons fait varier les paramètres du modèle Cole-Cole initial (chargeabilité m, coefficient c, constante de temps τ etc...) sur de larges plages de variations, explorant au mieux l'espace des paramètres. Le procédé d'inversion n'a jamais produit de résultats satisfaisants. Les erreurs RMS calculées par le logiciel étaient systématiquement supérieures à 50 %.

Nous pensons que l'incapacité du processus d'inversion à construire un modèle 1D cohérent à partir des données résulte entre autre du fait que le nombre de points de mesure utilisés est trop faible (3), et que la distribution de chargeabilités dans le sol n'est pas correctement approximée par un milieu tabulaire, comme le montrent les acquisitions en PPT présentées en section 3.2.3 de ce chapitre (p.318). Dans la suite, nous raisonnerons donc uniquement en nous basant sur les données apparentes.

4.4.3 Evolution du déphasage lors de l'injection de CO₂

Espacement AB = 15 m

Sur le graphique a) de la figure 5.47 nous avons représenté les spectres de phase mesurés aux différents intervalles de temps au cours de l'expérience, sur le quadripôle d'électrodes correspondant à l'espacement AB = 15 m. Pour des fréquences inférieures à 1 kHz, on n'observe aucune variation significative des valeurs de phase. Lorsque la fréquence devient élevée (à partir de 6 kHz), on observe des variations de phase pouvant aller jusqu'à 5 mrad entre les différentes mesures. Nous avons représenté sur le graphique b) de la figure 5.47 l'évolution temporelle des valeurs de phase mesurées aux fréquence 6 kHz, 12 kHz, et 20 kHZ. On observe la répétition d'une tendance à ces différentes fréquences. Entre la mesure qui suit le début de l'injection (15m-1) et la mesure 15m-2, les valeurs de phase augmentent sensiblement (4 mrad pour f = 12 kHz). Lorsque l'injection se poursuit les valeurs de phase diminuent. Après l'arrêt de l'injection, les valeurs de phase ont à nouveau diminué.

Espacement AB = 10 m

Lorsque l'espacement des électrode d'injection vaut 10 m, on n'observe à nouveau aucune évolution pour les fréquences inférieures au kHz (graphique a) de la figure 5.48). Dans la gamme des hautes fréquences en revanche, les valeurs de phase évoluent au cours de l'expérience. A


FIGURE 5.47 – a) Représentation des spectres de phase mesurés lors de l'expérience sur le quadripôle d'espacement AB = 15 m. Les barres d'erreur ne sont pas représentées pour plus de lisibilité. b) Evolution temporelle des valeurs de phase mesurées aux fréquences 6, 12 et 20 k Hz. L'absence de barre d'erreur signifie que l'erreur calculée par l'appareil est inférieure à la taille du symbole. La bande grise correspond à la période d'injection du CO_2 .

partir de la fréquence f = 3 kHz, les valeurs de phase suivent une tendance de variation temporelle identique à celle observée à la fréquence 20 kHZ, représentée sur le graphique b) de la figure 5.48. Les valeurs de phase restent stables jusqu'à plus de 2 h après le début de l'injection. A $t \approx 220$ min, la phase a augmenté d'approximativement 2,5 mrad. Enfin on observe une nouvelle augmentation de phase d'environ 2 mrad lors de la mesure post-injection.

Espacement AB = 3 m

Les spectres de phase relatif à l'espacement AB = 3 m ne montrent eux non plus aucune variation lorsque la fréquence est inférieure à 1 kHz (graphique a) de la figure 5.49). En revanche, on observe à nouveau une tendance qui se répète pour toutes les fréquences supérieures au kHz. Pour cet espacement, les valeurs de phase mesurées diminuent au cours de l'expérience (graphique b) de la figure 5.49). La diminution est assez brusque entre l'état initial et la première mesure après le début de l'injection (chute de 30 mrad à la fréquence f = 12 kHz). Puis, la diminution se poursuit plus lentement pendant l'expérience. Pour les deux dernières mesures, les valeurs de phases semblent s'être stabilisées.



FIGURE 5.48 – a) Représentation des spectres de phase mesurés lors de l'expérience sur le quadripôle d'espacement AB = 10 m. Les barres d'erreur ne sont pas représentées pour plus de lisibilité. b) Evolution temporelle des valeurs de phase mesurée à la fréquence f = 20 k Hz. L'absence de barre d'erreur signifie que l'erreur calculée par l'appareil est inférieure à la taille du symbole. La bande grise correspond à la période d'injection du CO₂.



FIGURE 5.49 – a) Représentation des spectres de phase mesurés lors de l'expérience sur le quadripôle d'espacement AB = 3 m. Les barres d'erreur ne sont pas représentées pour plus de lisibilité. b) Evolution temporelle des valeurs de phase mesurée aux fréquences f = 20 kHz et f = 12 kHz. L'absence de barre d'erreur signifie que l'erreur calculée par l'appareil est inférieure à la taille du symbole. La bande grise correspond à la période d'injection du CO₂.

4.4.4 Evolution de la résistivité apparente lors de l'injection de CO₂

Sur le graphique a) de la figure 5.50, nous avons représenté les spectres fréquentiels de résistivité apparente mesurés à l'état initial de l'expérience, pour les trois espacements d'électrodes AB. Plus l'espacement AB augmente, plus la résistivité apparente est élevée. On observe une dépendance fréquentielle non négligeable. Les valeurs diminuent linéairement lorsque la fréquence augmente, excepté pour l'écartement AB = 3m, pour lequel la diminution s'accélère aux hautes fréquences (f > 3 kHz). Pour les trois espacements, la différence de résistivité apparente entre la plus basse fréquence mesurée et la plus haute est approximativement de 12 Ω .m.

Sur le graphique b) de la figure 5.50, nous avons représenté l'ensemble des spectres de résistivité apparente mesurés au cours de l'expérience, pour les différents espacements d'électrodes. On observe que les spectres évoluent conjointement lors de l'expérience, i.e., que la dépendance fréquentielle reste la même. Les variations observées au cours de l'expérience sont faibles. Pour les trois espacements d'électrodes, on observe une diminution globale de la résistivité apparente de l'ordre de 3 Ω .m. Sur le graphique c), nous avons représenté l'évolution temporelle des valeurs de résistivité apparentes mesurées à la fréquence f = 3 kHz, pour les trois espacements d'électrode. On observe bien une diminution de la résistivité. A partir du temps $t \approx 120$ min, les valeurs de résistivité apprentes n'évoluent plus pour les espacements AB = 10 m et AB = 15 m. En revanche, elles continuent de diminuer légèrement pour l'écartement AB = 3 m.

4.4.5 Conclusions

Dans la gamme des hautes fréquences (f > 1 kHz), nous avons observé des variations marquées des valeurs de phase mesurées au cours de l'expérience, pour les trois espacements AB. Chacun de ces espacements a cependant montré des tendances d'évolution distinctes des deux autres. Ensuite, l'ampleur des variations de phase varie également selon l'espacement AB. A la fréquence f = 20 kHz, les variations de phase mesurées sur l'ensemble de l'expérience pour les espacements AB = 3 m, 10 m, et 15 m, valent respectivement 40 mrad, 6 mrad et 3,5 mrad, soit approximativement 40 %, 12 % et 30 % en variations relatives par rapport à l'état initial.

En comparaison, les valeurs de résistivité apparentes n'ont que très peu varié lors de l'expérience. Nous avons observé, pour les trois espacements AB, des diminutions de résistivité apparente de l'ordre de 1,5% à 2% de la valeur mesurée à l'état initial.

Le déphasage mesuré représente le rapport entre les propriétés capacitives du milieu d'étude et ses propriétés de conduction ohmique. Ainsi, si l'on compare l'ampleur des variations de phase observées dans la gamme des hautes fréquence (f > 1 kHz) au cours de l'expérience, avec les faibles variations de résistivité apparente (i.e., d'amplitude) dans la même gamme de fréquences, nous pouvons en déduire que les variations de phase observées ne sont pas induites par une modification des propriétés de conduction ohmique du milieu. Les variations de phase observées peuvent alors être d'origine capacitive, i.e., induites par une modification des propriétés de polarisation du milieu, mais peuvent également être le résultat de phénomènes d'induction, tels que le couplage électromagnétique des câbles.



FIGURE 5.50 – a) Spectres de résistivité apparentes mesurées à l'état initial pour chaque espacement AB. b) Représentation des spectres de résistivité apparente mesurées lors de l'expérience pour chacun des trois espacements AB. c) Evolution temporelle des valeurs de résistivité apparente mesurées à la fréquence f = 3kHz. L'absence de barre d'erreur signifie que l'erreur calculée par l'appareil est inférieure à la taille du symbole. La bande grise correspond à la période d'injection du CO₂.

4.5 Influence du couplage électromagnétique.

4.5.1 Modélisation des phénomènes de couplage électromagnétique

Nous avons utilisé le logiciel CR1Dmod développé par Ingeman-Nielsen and Baumgartner (2006), afin de modéliser l'amplitude des effets induits par les phénomènes de couplage électromagnétique entre les câbles d'injection et de mesure et le sol, dans le but d'évaluer leur impact sur les mesures effectuées lors du suivi temporel de l'injection de CO_2 .

Ce logiciel permet la modélisation 1D de ces effets. Il nécessite la définition d'un modèle de résistivité tabulaire représentant le milieu d'étude. Dans notre cas, nous avons utilisé les mesures de résistivité apparentes mesurées à la fréquence f = 1 Hz à l'état initial de l'expérience, pour

les trois espacements d'électrode, afin de déterminer un modèle de résistivité tabulaire adapté en utilisant le logiciel qwseln (Tabbagh, 2003), dont nous avons parlé précédemment. En partant de la base d'un milieu tabulaire à deux couches, dont l'épaisseur de la première vaut 1,5 m (comme le suggèrent les résultats des tomographies ERT présentés précédemment, c.f. figure 5.9 section 2.1.3) nous avons obtenu après inversion une résistivité de 160 Ω .m pour la couche supérieure, d'épaisseur 1,5 m et une résistivité de 197 Ω .m pour le demi-espace inférieur (image a) figure 5.51).



FIGURE 5.51 – Capture d'écran du logiciel CR1Dmod en fonctionnement. a) Définition du modèle tabulaire de résistivité utilisé. b) Paramétrage de la position des électrodes et de la disposition des câbles.

Le logiciel permet ensuite de paramétrer la position des électrodes ainsi que la disposition des câbles d'injection et de mesure (graphique b) de la figure 5.51). Une fois l'ensemble de ces paramètres définis, CR1Dmod calcule le déphasage et la résistivité apparente théoriques associés aux phénomènes de couplage électromagnétique du système sol / câbles / électrodes définis par l'utilisateur. Dans le tableau 4.5.1, nous avons rassemblé les longueurs associées à la disposition des câbles en rectangle appliquée lors des mesures (c.f. figure 5.45).

	a1	$\mathbf{a2}$	a3	$\mathbf{a4}$	a5	a6	
Longueur (m)	2,8	3,5	9,2	12	4	4	
	b1	$\mathbf{b2}$	$\mathbf{b3}$	$\mathbf{b4}$	b5	b6	
Longueur (m)	4	3,5	8,6	$10,\!9$	4	5,4	
	c1	c 2	c3	c4	c5	c6	d
Longueur (m)	5,7	3,3	6,6	$_{9,2}$	3,7	7	1,5

TABLE 5.7 – Récapitulatif des longueurs des segments composant la disposition des câbles en rectangle lors des acquisitions PPS. Les différentes longueurs a_i, b_i , c_i sont définies sur la figure 5.45

4.5.2 Résultats de la modélisation

La figure 5.52 montre les résultats obtenus après modélisation des trois configurations d'électrodes utilisées lors de l'expérience (3 écarts AB) et des dispositions de câbles qui leurs sont associées. Les valeurs de résistivité apparentes calculées sont constantes sur l'ensemble du spectre fréquentiel, quel que soit l'espacement AB. Le couplage EM n'a donc pas d'impact sur les valeurs de résistivité apparentes mesurées lors des expériences. Le déphasage, lui varie selon le type de dispositif modélisé. Pour un espacement AB = 3 m, les valeurs de phases modélisées sont nulles, et le couplage EM n'a donc *a priori* pas d'impact sur les mesures correspondantes. L'effet du couplage devient ensuite de plus en plus significatif lorsque l'espacement AB augmente. On observe alors des valeurs de phases modélisées non nulles, vers la partie haute fréquence du spectre, dont l'ampleur augmente avec la fréquence de mesure.



FIGURE 5.52 – Résultats des modélisation CR1Dmod. Le graphique du dessus représente les valeurs de résistivité apparente calculées par le logiciel pour chaque espacement d'électrodes AB, et le graphique de bas représente les valeurs de phase obtenues (- Phase).

Nous avons été particulièrement intrigués par le signe des valeurs de phases modélisées par le logiciel CR1Dmod. En effet, losque le couplage a un effet significatif (i.e., pour les espacements AB de 10 et 15 m), les valeurs de phase modélisées sont positives (c.f. figure 5.52, graphique du bas).

Le signe du déphasage modélisé avec CR1Dmod semble dépendre du type de dispositif d'électrode utilisé. A titre d'exemple, nous avons représenté sur la figure 5.53 les résultats de la modélisation de deux quadripôles d'électrodes de taille similaire, l'un étant construit selon



une configuration dipôle-dipôle et l'autre une configuration Schlumberger.

FIGURE 5.53 – Comparaison entre les valeurs de phases modélisées par CR1Dmod pour un dispositif Schlumberger et un dispositif dipôle-dipôle. a) Espacement des électrodes pour le dispositif dipôle-dipôle. b) Espacement pour le dispositif Schlumberger modélisé.

On observe que le couplage EM modélisé par CR1Dmod entraîne une diminution des valeurs de phase lorsque l'on utilise un dispositif Schlumberger et une augmentation des valeurs du déphasage lorsque le dispositif utilisé est de type dipôle-dipôle. Ce constat est important puisque, si les résultats du modèle reflètent effectivement l'impact du couplage EM dans le cas réel, cela signifie que les valeurs de phase mesurées dans la gamme des hautes fréquences (f > 1 kHz)sont inférieures à la réponse réelle, propre au terrain. Sur la figure 5.54, nous avons représenté les spectres de phase mesurés à l'état initial de l'expérience, que nous avons corrigés des effets du couplage EM modélisé avec CR1Dmod. On observe que les corrections liées au couplage changent drastiquement la forme des spectres liés aux espacements inter-électrodes AB = 10 m et AB = 15 m. Le spectre de l'espacement AB = 3 m n'est pas affecté par le couplage. Au final, on obtient des courbes de forme similaire. Pour des fréquences inférieures à 100 Hz, les valeurs de phase sont équivalentes quel que soit l'espacement AB utilisé, et lorsque la fréquence de mesure dépasse 100 HZ, les courbes commence à diverger, le déphasage est plus élevé si l'écartement AB augmente.

Les conclusions de ce raisonnement n'ont pas d'impact sur l'évolution temporelle des valeurs de phase que nous avons observée dans cette gamme de fréquences. En effet, la disposition des câbles est identique pour chaque espacement d'électrodes, l'effet du couplage EM sur les valeurs de phase est donc le même à chaque acquisition passé sur le même quadripôle. On notera que ceci est vrai si l'on n'observe pas de variations significatives de la résistivité du sol. En l'occurrence, dans notre cas, celle-ci reste quasiment constante pendant toute l'expérience. Sur toute l'expérience, on observe une diminution de la résistivité apparente de l'ordre de 3 Ω .m.



FIGURE 5.54 – Spectres de phase des états initiaux des expériences, pour chaque écartement des électrodes d'injection, corrigés des effets du couplage EM modélisé avec CR1Dmod.

A titre d'exemple, si l'on diminue la résistivité de notre modèle tabulaire dans les 2 couches de 5 Ω .m, on observe qu'à 20 kHz, l'effet du couplage sur la phase est augmenté de 0,4 mrad, soit de 1 à 2 ordres de grandeur en dessous des variations de phase observées lors de l'expérience. Ainsi, les effets du couplage n'influent pas sur la forme et l'amplitude des variations temporelles de phase observées.

4.6 Influence de la résistance de contact des électrodes

4.6.1 Protocole expérimental de l'étude

Au lendemain de l'expérience de suivi temporel, nous avons effectué de nouvelles acquisitions afin d'évaluer l'influence de la résistance de contact des électrodes. En l'occurrence, nous avons mesuré la "résistance de prise" des électrodes d'injection du courant en mesurant à l'aide d'un voltmètre la résistance entre les deux câbles liés aux électrodes d'injection. Nous avons alors réalisé quatre acquisitions avec chacun des espacements AB utilisé lors de l'expérience. Deux de ces quatre acquisitions ont été réalisées sans modification de la résistance de contact des électrodes. Avant de réaliser la troisième acquisition, nous avons arrosé abondamment le terrain autour de nos électrodes d'injection avec de l'eau du robinet, dont la conductivité électrique valait $\sigma_f = 610 \ \mu S.cm^{-1}$. Avant la quatrième acquisition, nous avons arrosé nos électrodes avec de l'eau salée, de conductivité $\sigma_{sel} = 55 \ m S.cm^{-1}$, soit approximativement 100 fois plus élevée que l'eau du robinet. Le tableau 4.6.1 rassemble l'ensemble des informations relatives aux différentes acquisitions que nous avons effectuées.

Nom mesure	Arrosage	Espacement AB (m)	Résistance de prise AB (kOhm)
Acquisition-1 (3 m)	NON	3	1,23
Acquisition-1 (10 m)	NON	10	$1,\!2$
Acquisition-1 (15 m)	NON	15	1,38
Acquisition-2 (3 m)	NON	3	1,25
Acquisition-2 (10 m)	NON	10	1,21
Acquisition-2 (15 m)	NON	15	$1,\!4$
Robinet $(3 m)$	Eau du robinet	3	0,9
Robinet (10 m)	Eau du robinet	10	0,91
Robinet (15 m)	Eau du robinet	15	1,06
Eau salée (3 m)	Eau salée	3	0,56
Eau salée (10 m)	Eau salée	10	0,54
Eau salée (15 m)	Eau salée	15	0,55

TABLE 5.8 – Paramètres des différentes acquisitions effectuées pour étudier l'influence de la résistance.

4.6.2 Résultats des acquisitions

La figure 5.55 rassemble les résultats des acquisitions décrites précédemment. Les graphiques a), c) et e) représentent les spectres de phases obtenus à chaque acquisition, respectivement pour les espacements 3 m, 10 m et 15 m.

Sur les graphiques a) et b), on observe que les valeurs de phases pour les fréquences inférieures à 1 kHz sont quasiment identiques pour les quatre acquisitions. Dans cette gamme de fréquences, le déphasage mesuré ne semble donc pas dépendre de la résistance de prise des électrodes d'injection. En revanche, dans la gamme des hautes fréquence (f > 1 kHz) les valeurs de phases mesurées diffèrent sensiblement entre les acquisitions.

Sur les graphiques c) et d), on observe l'évolution du déphasage mesuré aux fréquences 6 kHz, 12 kHz et 20 kHz en fonction de la résistance de prise correspondant à chaque acquisition. Pour chaque fréquence, l'évolution des valeurs de phase avec la résistance de prise peut être approximée par une relation linéaire, dont la pente augmente avec la fréquence. A 20 kHz, les variations de phase observées entre les quatre acquisitions sont très élevées. Pour l'espacement AB = 3 m, le déphasage augmente avec la résistance de contact selon un taux d'accroissement de l'ordre de 21 mrad/k Ω . Pour l'espacement AB = 10 m, le taux d'accroissement à 20 kHz

Pour le graphique e) de la figure 5.55, qui correspond à l'espacement d'électrode AB = 15m, les variations entre les spectres sont plus bruitées. La résistance de prise semble avoir une influence sur les hautes fréquences (f > 1 kHz), mais également sur les fréquences inférieures à 0,1 Hz. Sur le graphique f) nous avons représenté l'évolution du déphasage en fonction de la résistance de prise pour les deux fréquences les plus basses du spectre et les deux fréquences les plus hautes. Aux basses fréquences, on observe une augmentation de la phase avec la résistance de contact. Aux hautes fréquences en revanche, on n'observe pas de tendance claire.



FIGURE 5.55 - Spectres de phase obtenus pour différentes configurations d'électrodes, a) 3 m, c) 5 m et e) 10 m, et différentes résistances de contact. b) d) et f) Influence de la résistance de contact sur les valeurs de phase mesurées aux hautes fréquences.

4.6.3 Conséquences sur les résultats du suivi temporel de l'injection de CO_2 .

Lors de l'expérience de suivi temporel de l'injection de CO_2 , nous avons également mesuré la résistance de prise des électrodes d'injection avant chaque mesure. Il est difficile de caractériser avec précision l'influence de la résistance de prise sur les mesures de déphasage effectuées avec un espacement AB de 15 m au vue des résultats de la figure 5.55. Pour les deux autres espacements en revanche, les observations précédentes ont des conséquences non négligeables. Dans le tableau 4.6.3, nous avons récapitulé les variations de phase observées aux hautes fréquences pour les espacement AB = 3m et AB = 10m, ainsi que les résistances de prise que nous avons mesurés avant chaque acquisition.

	Espacement AB	= 3 m	$\mathbf{Espacement}\ \mathbf{AB}=10\ \mathbf{m}$		
Temps (min)	Phase f=20 kHz (mrad)	R prise (Ω)	Phase f=20 kHz (mrad)	R prise (Ω)	
-64	$124,\!54$	1566	51,093	1397	
34	$91,\!316$	1160	$51,\!355$	1170	
127	$74,\!344$	1000	$51,\!372$	1060	
226	$67,\!878$	1080	$54,\!334$	1150	
282	66,965	1120	56,364	1190	

TABLE 5.9 – Récapitulatif des variations de phase observées au cours de l'expérience d'injection de CO_2 , pour les espacements AB = 3 m et AB = 10 m. Comparaison avec les valeurs de résistance de prise mesurées pour chaque acquisition.

En premier lieu, pour l'espacement AB =10 m les variations maximales de phase sont de l'ordre de 5 mrad. En comparaison, la résistance de prise a subit une variation maximale de 300 Ω . Si l'on considère le taux d'accroissement cité précédemment (30 mrad/k Ω) comme représentatif de l'impact réel de la résistance de prise sur les valeurs de phase mesurées à 20 kHZ, les variations induites dans ce cas sont de l'ordre de 10 mrad, ce qui est deux fois plus élevé que les variations mesurées. Dans le cas de l'espacement AB = 3 m, on observe jusqu'à 550 Ω de variations de résistance de prise. Pour un taux d'accroissement de 21 mrad/k Ω , cela correspond également à un impact de l'ordre de 10 mrad. Dans ce cas l'impact est inférieur aux variations effectivement mesurées. On observe cependant sur la figure 5.56 que la diminution de phase observée à 20 kHz pour l'espacement AB=3m est peut être corrélée à la diminution de la résistance de prise au cours de l'expérience.

Ainsi, ne possédant pas de certitudes quant à la relation Résistance de prise / Déphasage dans les conditions du jour de l'expérience, il nous est difficile de quantifier quelle part des variations est induite par l'évolution physico-chimique du milieu d'étude lors de l'expérience, et quelle part est induite par des variations de la résistance de prise.



FIGURE 5.56 – Représentation de la corrélation entre les valeurs de phase mesurées à la fréquence 20 kHz au cours de l'expérience pour l'espacement AB = 3 m, et les valeurs de résistance de prise correspondantes.

4.7 Conclusions

Au cours de l'injection, nous avons observé des variations significatives (> 5 mrad) du déphasage mesuré, et ce pour les trois espacements d'électrode AB utilisés. Cependant, ces variations suivent des tendances différentes selon l'espacement AB. Pour AB = 3 m, les valeurs de phase diminuent tout au long de l'expérience. Pour AB = 10 m, elles augmentent, et pour AB = 15 m elles augmentent puis diminuent successivement. Ces observations sont alors difficiles à mettre en relation avec l'évolution physico-chimique attendue du milieu et/ou l'évolution des résistivités apparentes mesurées au cours de l'expérience.

In fine, le suivi temporel d'une injection de CO_2 par la méthode de polarisation provoquée spectrale a mis en lumière plusieurs aspects instrumentaux d'importance.

En premier lieu, en quantifiant l'influence des phénomènes de couplage électromagnétique associés à notre dispositif d'acquisition, nous avons montré que les valeurs de phase apparente mesurées sont considérablement sous estimées lorsque l'espacement inter-électrodes et la fréquence de mesure augmentent. Pour l'espacement AB = 15 m, ce phénomène affecte particulièrement les mesures dans la gamme des hautes fréquences (f > 1kHz). Ces observations nous conduisent à considérer avec précautions la partie « hautes fréquences » des spectres de déphasage mesurés pour les différents espacement d'électrodes. Toutefois, pour un espacement AB donné, les effets du couplage restent constant lors de l'injection de CO₂ puisque la disposition des câbles reste identique. Ces phénomènes n'affectent donc *a priori* pas les capacités de la méthode PPS à détecter l'injection de CO₂.

En revanche, l'influence de la résistance de prise des électrodes d'injection s'avère significative. Grâce à des mesures supplémentaires, nous avons déterminé que les variations de résistance de prise au cours du suivi temporel de l'injection de CO₂ affectent probablement les valeurs de déphasage mesuré, et que les erreurs induites sont du même ordre de grandeur que les variations de phase effectivement mesurées au cours de l'expérience. Ne disposant pas d'une quantification rigoureuse de ces effets, il nous est impossible de les corriger. L'existence de ces effets d'électrodes ne nous permet donc pas d'interpréter les résultats obtenus lors du suivi temporel de l'injection de CO_2 comme émanant de modifications physico-chimiques du milieu étudié.

Conclusions et perspectives

Conclusions principales

Lors d'un projet de séquestration géologique du CO_2 , il est nécessaire de garantir l'efficacité du stockage ainsi que de prévenir les risques environnementaux associés à d'éventuels transferts du CO_2 injecté, hors de la zone de stockage. Dans ce but, il est indispensable de mettre en place un réseau de surveillance permettant de localiser le panache de CO_2 proprement dit, mais également de détecter les éventuelles fuites de CO_2 hors de la formation géologique ciblée. Au cours de ces travaux, nous avons étudié les capacités des techniques de tomographie de résistivité électrique (ERT) et de polarisation provoquée (PP) à détecter et suivre des transferts de CO_2 dans la subsurface. Nous avons développé une étude multi-approche, impliquant des expériences d'échelle métrique en conditions contrôlées, des travaux de modélisation, ainsi que des études sur un cas de terrain.

Dans les chapitres 1 et 2, nous avons présenté le contexte et les problématiques générales qui entourent les projets de séquestration géologique du CO_2 , et avons donné une description détaillée des bases théoriques et de la mise en œuvre pratique des méthodes géophysiques ERT et PP.

Le troisième chapitre est consacré au développement d'un modèle de type automate cellulaire permettant de reproduire la circulation d'un gaz dans un milieu granulaire non consolidé saturé en eau, et de calculer la distribution de résistivités électriques associée. Le développement du modèle est basé sur des observations expérimentales et des éléments théoriques issus de la littérature consacrée à la technique de remédiation dite du « air sparging ». En calibrant ce modèle avec les résultats des expériences en laboratoire réalisées par Vieira (2013), nous avons montré que la résistivité du milieu est fortement dépendante du mode de circulation du gaz dans l'espace poral. Dans notre modèle, nous avons implémenté deux modes de circulation principaux : un écoulement en *chambre d'accumulation* et sous la forme d'un *panache parabolique*.

En utilisant la structure de ce modèle ainsi qu'un logiciel de modélisation directe et inverse adapté à la géométrie des milieux étudiés (R3T), nous avons évalué la sensibilité des différentes configurations d'électrodes utilisées sur le dispositif expérimental de Vieira (2013). A partir des résultats obtenus, nous avons développé des protocoles de mesure alternatifs permettant, dans certains cas, de mieux détecter les variations de résistivité induites par la diminution du niveau de saturation en eau conséquente à l'injection d'un gaz dans un milieu granulaire saturé.

Ces travaux illustrent l'importance du protocole d'acquisition utilisé lorsque l'on cherche à maximiser la capacité de détection de la méthode ERT. L'efficacité d'un protocole donné à restituer les valeurs réelles de résistivité du milieu peut varier significativement selon la répartition spatiale de la phase gazeuse dans le milieu d'étude. Dans le cas de la détection de transferts de CO_2 dans la subsurface, et plus précisément de la constitution d'un réseau de surveillance par la méthode ERT, il est indispensable de prendre en compte ces aspects. Plusieurs approches peuvent alors être envisagées. Les protocoles d'acquisition peuvent être pensés afin d'être capables de détecter une grande variété de géométries de panaches gazeux, ou un travail en amont (test d'injection, modélisation) doit être réalisé afin d'anticiper au mieux la géométrie des transferts de CO_2 dans le milieu étudié, et d'implémenter des protocoles d'acquisition adaptés.

Dans le chapitre 4, nous avons présenté le développement et les résultats d'une série d'expériences en laboratoire similaires à celles réalisées par Vieira (2013), appliquées à l'étude de la capacité de la méthode PP à détecter un transfert de CO₂ dans un milieu granulaire non consolidé totalement saturé en eau. C'est dans la gamme des hautes fréquences (f > 1 kHz) que l'on observe les variations des paramètres PPS les plus marquées. La conductivité en quadrature σ'' , reliée aux propriétés capacitives du milieu, présente alors des variations relatives systématiquement plus importantes que la conductivité en phase σ' , reliée aux propriétés de conduction ohmique du milieu. Ainsi, les résultats de ces expériences montrent que dans la gamme des hautes fréquences, la méthode de polarisation provoquée spectrale présente une capacité de détection des modifications physico-chimiques survenant dans le milieu d'étude supérieure à celle des méthodes de mesure de la résistivité.

Au travers de travaux de modélisation et d'études expérimentales annexes, nous avons étudié plus en détail l'origine des hautes valeurs de conductivité en quadrature σ'' observées dans la gamme des hautes fréquences. En s'appuyant sur les résultats de nombreux travaux disponibles dans la littérature, nous émettons l'hypothèse que la partie réelle de la permittivité complexe présente des valeurs particulièrement élevées, du fait de la non-sphéricité des grains de sable composant le milieu. Nous avons également identifié des effets instrumentaux significatifs dans cette gamme de fréquences, liés à la géométrie des électrodes impolarisables utilisées pour l'acquisition.

Dans le cinquième et dernier chapitre, nous avons présenté les résultats de trois expériences de terrain qui ont consisté en un suivi temporel d'une injection de CO₂ gazeux à faible profondeur, par la méthode de tomographie de résistivité électrique (ERT), la méthode de polarisation provoquée temporelle (PPT) et la méthode de polarisation provoquée spectrale (PPS). Dans les trois cas, nous avons pu observer des variations des observables géophysiques associées (i.e., résistivité, chargeabilité, déphasage). Cependant, nous avons montré que les variations de résistivité observées étaient trop faibles pour être attribuées à une modification des caractéristiques physico-chimique du milieu d'étude et qu'elles doivent être considérées comme le résultat d'artefacts créés lors du processus d'inversion. A contrario, les variations de chargeabilité sont suffisamment importantes pour qu'on leur attribue avec certitude une origine physique, i.e., une modification du milieu d'étude lors de l'expérience. Enfin, dans le cas du suivi par la méthode PPS, l'influence importante d'effets instrumentaux liés à la résistance de prise des électrodes de mesure ne nous permet pas d'interpréter les variations de phase observées aux hautes fréquences (f > 1 kHz) comme une conséquence de modifications physico-chimiques survenant dans le milieu au cours de l'expérience.

Perspectives

Impact d'une injection de CO_2 sur la résistivité des sols

Les expériences en laboratoire de Vieira (2013) ont mis en lumière l'existence de deux phénomènes physico-chimiques principaux pouvant affecter les valeurs de résistivité d'un sol totalement saturé en eau, dans lequel circule du CO_2 gazeux.

- 1. La diminution du niveau de saturation en eau, provoquée par la mise en place d'une phase gazeuse isolante dans l'espace poral, entraîne une augmentation de la résistivité du milieu.
- 2. La dissolution d'une partie ou de tout le CO₂ dans l'eau porale, qui peut également s'accompagner de la dissolution d'une partie des minéraux composant la matrice poreuse. Les phénomènes de dissolution entrainent une augmentation des concentrations en espèces ioniques dans l'eau, augmentant sa conductivité électrique, et diminuant la résistivité du sol.

Ces deux phénomènes produisent donc des variations de résistivité de sens opposés, et la façon dont la résistivité d'un sol totalement saturé sera affectée par un transfert de CO_2 dépend du phénomène prépondérant. Certaines observations de Vieira (2013) illustrent bien cet aspect. Lors de l'injection de CO_2 dans un sable carbonaté, les phénomènes de dissolution sont prépondérants, et l'on observe uniquement une diminution de la résistivité. Lors de l'injection de CO_2 dans du sable de Fontainebleau, on observe uniquement une augmentation de la résistivité. Malgré la dissolution d'une partie du CO_2 dans l'eau porale, c'est l'effet de désaturation du milieu qui prédomine sur la réponse en résistivité électrique du milieu.

Comprendre et anticiper la dimension « compétitive » de ces phénomènes est un enjeu majeur si l'on souhaite mettre en place un réseau de surveillance des sites de stockage basé sur la mesure de la résistivité du sol. La prédominance d'un effet sur l'autre dépend d'une part des caractéristiques du transfert de CO_2 observé (débit, extension spatiale, solubilité ou non de la roche) mais aussi des conditions initiales du milieu. Par exemple, si l'eau porale est particulièrement minéralisée initialement, il est possible que les phénomènes de dissolution ne provoquent qu'une augmentation faible de la conductivité électrique de l'eau et donc des variations de résistivité difficilement détectables. Selon un raisonnement similaire, si le milieu n'est pas totalement saturé en eau, un transfert de CO_2 gazeux n'aura potentiellement qu'un faible impact sur le niveau de saturation du milieu.

Des travaux expérimentaux pourraient être réalisés pour mieux appréhender ces aspects. Une première approche consisterait à étudier l'évolution de la résistivité d'un échantillon de sol ou de roche sur une large gamme de saturations en eau et une large gamme de niveaux de minéralisation du fluide. Un tel travail permettrait de disposer d'une première estimation de la dépendance de la résistivité de l'échantillon aux paramètres saturation et salinité. On pourrait alors notamment identifier les cas où des valeurs différentes de salinité du fluide et de saturation en eau résultent en des valeurs de résistivité identiques.

Une approche plus directement liée au cas d'un transfert de CO_2 consisterait à étudier l'évolution temporelle de la résistivité d'un échantillon de roche ou de sol, soumis à différents niveaux de saturation en CO_2 . Ce type d'approche permettrait, pour des conditions initiales de saturation en eau et de minéralisation du fluide poral données, d'étudier les domaines de variation de la résistivité de l'échantillon lors d'un transfert de CO_2 . En passant à l'échelle du terrain, une telle étude permettrait d'estimer, pour un sol donné, l'évolution attendue de la résistivité si un transfert de CO_2 (i.e., une fuite) venait à se produire.

Impact d'une injection de CO_2 sur les propriétés capacitives des sols

Au cours de ces travaux, nous avons pu observer que la réponse en polarisation provoquée d'un sol soumis à un transfert de CO₂ évoluait différemment selon le domaine de fréquence choisi pour l'acquisition des mesures.

Aux moyennes fréquences, i.e., entre 1 Hz et 100 Hz, la dissolution du CO₂ et/ou des minéraux composant le sol entraîne une diminution de la conductivité en quadrature de phase σ'' . Cette diminution peut être attribuée à un affaiblissement des phénomènes de polarisation de membrane, conséquence de l'augmentation de la force ionique du fluide saturant, mais également à la diminution du pH de l'eau porale induite par la dissolution du CO₂.

Ce dernier phénomène présente un intérêt particulier pour la détection de transferts de CO_2 dans la subsurface par la méthode PP, puisque la présence de CO_2 dissout dans l'eau s'accompagne dans un grand nombre de cas de variations significatives du pH. A ce jour, les études portant sur l'influence du pH sur les propriétés capacitives des géomatériaux sont, à notre connaissance, peu nombreuses (Lesmes and Frye, 2001; Skold et al., 2011; Vaudelet et al., 011b) et concernent des milieux totalement saturés en eau.

Ainsi, il serait pertinent d'approfondir ce sujet en étudiant l'influence du pH sur des milieux saturés totalement ou partiellement, pour différentes salinités de l'eau porale, et pour des sols de composition minéralogique variée. Si cette influence s'avère significative, elle constituera un appui supplémentaire pour la détection de transferts de CO_2 dans la subsurface par la méthode de polarisation provoquée. A titre d'exemple, dans le cas où la salinité initiale de l'eau saturante est élevée et que la dissolution du CO_2 ne produit pas de variations significatives de la conductivité électrique de l'eau, il est possible que la diminution de pH opère, elle, des changements significatifs sur la réponse PP du milieu mesurée aux moyennes fréquences. L'étude de telles problématiques est susceptible d'apporter des informations pertinentes sur la capacité de détection de transferts de CO_2 des méthodes PPT et PPS.

Lors des expériences en laboratoire, c'est dans la gamme des **hautes fréquences** (f > 1 kHz) que nous avons observé les variations de la réponse PPS les plus importantes. Cette gamme de fréquences correspond en l'occurrence aux « basses fréquences »lors des études en radar GPR (pour lesquelles la fréquence de mesure se situe généralement entre 1 MHz et 1 GHz). Dans les deux cas, ce sont les propriétés diélectriques des sols qui contrôlent les réponses mesurées. De façon générale, il serait intéressant d'étudier les liens et différences qui existent entre ces deux techniques d'acquisition, tant d'un point de vue expérimental que théorique, et de confronter ces études à la question de l'application des méthodes GPR pour la surveillance de surface des sites de stockage de CO₂.

Bien que cette gamme de fréquences soit, d'après les expériences en laboratoire, la plus \ll prometteuse \gg pour la détection de transferts de CO₂ dans la subsurface, elle est également sujette à de nombreux phénomènes instrumentaux qui ont une influence significative sur les mesures.

Lors des expériences en laboratoire, nous avons observé l'influence non négligeable de la géométrie des électrodes sur les valeurs de conductivité en quadrature mesurées aux hautes fréquences. Nous avons identifié cet effet en comparant les réponses obtenues pour seulement deux géométries différentes d'électrodes. Afin de mieux comprendre les phénomènes imppliqués et tenter de quantifier ces effets, une perspective intéressante serait la réalisation d'une étude plus large, impliquant un grand nombre de géométries d'électrodes, mais aussi différents types d'électrodes (e.g., platine, Ag/AgCl etc....) et des milieux d'étude variés (type de sol, niveau de saturation en eau, minéralisation du fluide saturant).

Sur le terrain, nous avons observé une dépendance des valeurs de déphasage mesurées aux hautes fréquences avec la résistance de prise des électrodes. Dans ce cas également, ces observations n'ont été réalisées qu'au terme d'une étude relativement restreinte du phénomène (comparaison de seulement 3 valeurs de résistance de prise). Développer une étude plus approfondie autour de cette question présenterait également un fort intérêt pour la compréhension des signaux PP mesurés sur le terrain à des fréquences supérieures au kHz.

La modélisation des phénomènes pour l'optimisation des stratégies de monitoring

Au cours de cette thèse, nous avons développé et utilisé des modèles de transport (automate cellulaire) et de transport réactif (FEHM), qui, couplés à des modèles théoriques et empiriques, nous ont permis de reproduire la réponse en résistivité électrique ou en polarisation provoquée d'un milieu granulaire non consolidé saturé en eau.

Dans le cas de la méthode polarisation provoquée (PP), ce travail nous a permis de mieux comprendre les processus physico-chimiques impliqués lors des expériences en laboratoire. Nous avons également montré que cette approche peut être utilisée pour prévoir la réponse PP de milieux granulaires totalement saturés en eau soumis à des changements physico-chimiques (en l'occurrence une injection de CO2 gazeux).

Dans le cas de la méthode de tomographie de résistivité électrique, nous avons utilisé ce type d'approche comme un outil pour évaluer et optimiser des processus d'acquisition en ERT. En étudiant la sensibilité de nombreuses configurations d'électrodes, nous avons développé des protocoles d'acquisition potentiellement mieux adaptés à la détection de transferts de CO_2 dans un milieu granulaire et mis en lumière le fait que l'efficacité d'un protocole d'acquisition est fortement tributaire de la répartition spatiale du gaz dans le milieu. Dans la continuité de ces travaux de modélisation, nous envisageons de tester les protocoles d'acquisitions ainsi développés lors de nouvelles expériences d'injection de CO_2 réalisées sur le réservoir cylindrique utilisé par Vieira (2013).

Au regard des résultats obtenus, qui ont validé l'utilité d'une approche englobant la modélisation des phénomènes physico-chimiques qui se produisent dans la subsurface et de la réponse électrique (PP ou ERT) associée, nous proposons également en perspective des travaux réalisés, l'extension de ce type d'étude à des cas de terrain.

Etude statique

En construisant des modèles 3D statiques, tel que l'automate cellulaire développé au chapitre 3, on peut par exemple simuler la distribution d'un panache de contaminants dans le sous-sol et estimer la distribution de résistivités ou de chargeabilités associée au moyen de modèles empiriques ou théoriques (e.g., loi d'Archie, modèle Cole-Cole). Si l'on dispose d'outils de modélisation directe et inverse appropriés, on peut alors utiliser ces modèles statiques pour étudier la capacité de différents réseaux et configurations d'électrodes à détecter et localiser le panache (tomographie 2D, 3D, cross-borehole etc...), en fonction de la répartition spatiale de ce dernier, et de l'intensité des variations qu'il induit sur les observables géophysiques.

Etude dynamique

Des modèles de transport réactif tels que FEHM, qui permettent de modéliser les processus de diffusion, de dissolution et la dynamique des écoulements, peuvent ensuite être utilisés pour évaluer l'évolution de la capacité de détection de la méthode dans le temps, en fonction de l'évolution spatiale et temporelle du panache, le type de protocole d'acquisition et le paramètre géophysique d'intérêt. A une échelle encore supérieure, ce type d'approche peut être utilisé pour étudier et optimiser le fonctionnement et l'organisation de réseaux de surveillance à grande échelle, similaires à ceux qui pourraient être déployés pour la surveillance de sites de stockage de CO_2 , ou pour d'autres problématiques hydrogéologiques présentant une extension spatiale importante.

Evaluation des méthodes d'inversion

Ces aspects de modélisation peuvent également être utilisés pour évaluer et comparer l'efficacité des différentes méthodes d'inversion (e.g., inversion bayésienne, de Monte-Carlo, inversion time-lapse, approche séquentielle etc ...), et des différents codes ou logiciels disponibles.

Conclusion générale

Cette thèse contribue à la compréhension de l'impact de transferts de CO_2 sur les propriétés de conduction ohmique des sols et leurs propriétés capacitives. Les résultats obtenus permettent de mieux appréhender les capacités respectives des méthodes de tomographie de résistivité électrique et de polarisation provoquée à participer à la constitution d'un réseau de surveillance lors d'un projet de séquestration géologique du CO_2 .

Les implications qui découlent des résultats obtenus peuvent également être appliquées à de nombreuses problématiques environnementales, dès lors que celles-ci mettent en jeu le transfert d'un fluide dans la subsurface, et que ce transfert est susceptible de provoquer des variations du niveau de saturation en eau, du pH ou de la conductivité électrique du fluide saturant.

D'un point de vue méthodologique, ces travaux ont également permis de mettre en relief un certain nombre d'aspects expérimentaux d'importance, en particulier concernant l'application, tant en laboratoire que sur le terrain, de la méthode de polarisation provoquée spectrale.

Bibliographie

- Abdel Aal, G. Z., Atekwana, E. A., Rossbach, S., and Werkema, D. D. (2010). Sensitivity of geoelectrical measurements to the presence of bacteria in porous media. *Journal of Geophy*sical Research : Biogeosciences (2005-2012), 115(G3).
- Ahlfeld, D., Dahmani, A., Hoag, G., Farrell, M., and Ji, W. (1994). Field measurements of air sparging in a connecticut site : Results and comments. In Proceedings of Petroleum Hydrocarbons and Organic Chemicals in Ground Water : Prevention, Detection and Restoration, Houston.
- Alnes, H., Eiken, O., and Stenvold, T. (2008). Monitoring gas production and CO₂ injection at the sleipner field using time-lapse gravimetry. *Geophysics*, 73(6) :WA155–WA161.
- Apparao, A. and Roy, T. G. (1974). Depth of investigation in resistivity methods using linear electrodes. *Geophysical Prospecting*, 22(2) :211–223.
- Archie, G. (1942). The electrical resistivity log as an aid in determining some reservoir characteristics. I. Pet Tech, 5.
- Atekwana, E. A. and Slater, L. D. (2009). Biogeophysics : A new frontier in earth science research. *Reviews of Geophysics*, 47(4).
- Attia, A. M. (2005). Effects of petrophysical rock properties on tortuosity factor. Journal of Petroleum Science and Engineering, 48(3):185–198.
- Attwa, M. and Günther, T. (2013). Spectral induced polarization measurements for predicting the hydraulic conductivity in sandy aquifers. *Hydrology and Earth System Sciences*, 17(10):4079–4094.
- Auken, E., Doetsch, J., Fiandaca, G., Christiansen, A. V., Gazoty, A., Cahill, A. G., and Jakobsen, R. (2014). Imaging subsurface migration of dissolved co₂ in a shallow aquifer using 3-D time-lapse electrical resistivity tomography. *Journal of Applied Geophysics*, 101:31–41.
- Azar, J. H., Javaherian, A., Pishvaie, M. R., and Nabi-Bidhendi, M. (2008). An approach to defining tortuosity and cementation factor in carbonate reservoir rocks. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 60(2) :125–131.

- Baker, D. M. and Benson, C. H. (1996). Review of factors affecting in situ air sparging. In Non-Aqueous Phase Liquids (NAPLs) in Subsurface Environment@ sAssessment and Remediation, pages 292–310. ASCE.
- Baker, D. M. and Benson, C. H. (2007). Effect of system variables and particle size on physical characteristics of air sparging plumes. *Geotechnical and Geological Engineering*, 25(5):543– 558.
- Barker, R. (1989). Depth of investigation of collinear symmetrical four-electrode arrays. *Geophysics*, 54(8) :1031–1037.
- Bass, D. H., Hastings, N. A., and Brown, R. A. (2000). Performance of air sparging systems : a review of case studies. *Journal of Hazardous Materials*, 72(2) :101–119.
- Bentham, M. and Kirby, M. (2005). CO_2 storage in saline aquifers. Oil & gas science and technology, 60(3):559–567.
- Bergman, P. D., Winter, E. M., and Chen, Z.-Y. (1997). Disposal of power plant CO₂ in depleted oil and gas reservoirs in texas. *Energy Conversion and Management*, 38:S211–S216.
- Bergmann, P., Schmidt-Hattenberger, C., Kiessling, D., Rücker, C., Labitzke, T., Henninges, J., Baumann, G., and Schütt, H. (2012). Surface-downhole electrical resistivity tomography applied to monitoring of CO₂ storage at ketzin, germany. *Geophysics*, 77(6) :B253–B267.
- Bernard, M.-L., Zamora, M., Géraud, Y., and Boudon, G. (2007). Transport properties of pyroclastic rocks from montagne pelée volcano (martinique, lesser antilles). Journal of Geophysical Research : Solid Earth (1978–2012), 112(B5).
- Böhler, U., Brauns, J., Hötzl, H., and Nahold, M. (1990). Air injection and soil air extraction as a combined method for cleaning contaminated sites — observations from test sites in sediments and solid rocks. In Arendt, F., Hinsenveld, M., and Van Den Brink, W., editors, *Contaminated Soil '90*, pages 1039–1044. Springer Netherlands.
- Binley, A. and Kemna, A. (2005). Dc resistivity and induced polarization methods. In Rubin, Y. and Hubbard, S., editors, *Hydrogeophysics*, volume 50 of *Water Science and Technology Library*, pages 129–156. Springer Netherlands.
- Binley, A., Kruschwitz, S., Lesmes, D., and Kettridge, N. (2010). Exploiting the temperature effects on low frequency electrical spectra of sandstone : A comparison of effective diffusion path lengths. *Geophysics*, 75(6) :A43–A46.
- Binley, A., Slater, L. D., Fukes, M., and Cassiani, G. (2005). Relationship between spectral induced polarization and hydraulic properties of saturated and unsaturated sandstone. Water Resources Research, 41(12).

- Blanco, B., Chasserol, F., and Elfilali, S. (2013). 4d ert for a continuous co₂ leakage monitoring.
 In Proceedings of the 74th EAGE conference, Copenhagen.
- Bleil, D. F. (1953). Induced polarization : a method of geophysical prospecting. *Geophysics*, 18(3):636-661.
- Blondel, A. (2014). Développement des méthodes géophysiques électriques pour la caractérisation des sites et sols pollués aux hydrocarbures. PhD thesis, Université Michel de Montaigne-Bordeaux III.
- Börner, F., Schopper, J., and Weller, A. (1996). Evaluation of transport and storage properties in the soil and groundwater zone from induced polarization measurements. *Geophysical Prospecting*, 44(4) :583–601.
- Bouty, E. (1879). H. helmholtz.—studien über electrische grenzschichten (études sur les couches électriques limites); ann. der physik, nouvelle série, t. vii, p. 337; 1879. J. Phys. Theor. Appl., 8(1):376–382.
- Breede, K. and Kemna, A. (2012). Spectral induced polarization measurements on variably saturated sand-clay mixtures. *Near Surface Geophysics*, 10(6):479–489.
- Breen, S. J., Carrigan, C. R., LaBrecque, D. J., and Detwiler, R. L. (2012). Bench-scale experiments to evaluate electrical resistivity tomography as a monitoring tool for geologic CO₂ sequestration. International Journal of Greenhouse Gas Control, 9:484–494.
- Brooks, W, W., and M, A. (1996). Two phase flow patterns in porous media : An investigation relating to in-situ air sparging. In Proc. of the First Intl. Sym. on In Situ Air Sparging for Site Remediation.
- Brooks, M. C., Wise, W. R., and Annable, M. D. (1999). Fundamental changes in in situ air sparging how patterns. *Groundwater Monitoring & Remediation*, 19(2):105–113.
- Bruggeman, V. D. (1935). Berechnung verschiedener physikalischer konstanten von heterogenen substanzen. i. dielektrizitätskonstanten und leitfähigkeiten der mischkörper aus isotropen substanzen. Annalen der physik, 416(7):636–664.
- Campbell, R., Bower, C., and Richards, L. (1948). Change of electrical conductivity with temperature and the relation of osmotic pressure to electrical conductivity and ion concentration for soil extracts. In Soil Sci. Soc. Am. Proc. 13, pages 66–69.
- Carlson, N. R., Hare, J. L., and Zonge, K. L. (2001). Buried landfill delineation with induced polarization : Progress and problems. In Proceedings 14th meeting Symposium on the Application of Geophysics to Engineering and Environmental Problems (SAGEEP), Denver, Colorado, volume 20, pages 4–7.

- Carrigan, C. R., Yang, X., LaBrecque, D. J., Larsen, D., Freeman, D., Ramirez, A. L., Daily, W., Aines, R., Newmark, R., Friedmann, J., et al. (2013). Electrical resistance tomographic monitoring of CO₂ movement in deep geologic reservoirs. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 18 :401–408.
- Cassiani, G., Kemna, A., Villa, A., and Zimmermann, E. (2009). Spectral induced polarization for the characterization of free-phase hydrocarbon contamination of sediments with low clay content. *Near Surface Geophysics*, 7(5-6) :547–562.
- Chadwick, A., Arts, R., Eiken, O., Williamson, P., and Williams, G. (2006). *Geophysical* monitoring of the CO₂ plume at Sleipner, North Sea. Springer.
- Chalbaud, C. (2007). Propriétés interfaciales du CO_2 : application aux écoulements en pression et en température. PhD thesis, Arts et Métiers ParisTech.
- Chambers, J. M., Cleveland, W. S., Kleiner, B., and Tukey, P. A. (1983). Graphical methods for data analysis.
- Chapman, D. L. (1913). Li. a contribution to the theory of electrocapillarity. The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science, 25(148):475-481.
- Chelidze, T. and Gueguen, Y. (1999). Electrical spectroscopy of porous rocks : A review—i. theoretical models. *Geophysical Journal International*, 137(1) :1–15.
- Chelidze, T., Gueguen, Y., and Ruffet, C. (1999). Electrical spectroscopy of porous rocks : a review—ii. experimental results and interpretation. *Geophysical Journal International*, 137(1):16–34.
- Chen, J., Kemna, A., and Hubbard, S. S. (2008). A comparison between gauss-newton and markov-chain monte carlo-based methods for inverting spectral induced-polarization data for cole-cole parameters. *Geophysics*, 73(6) :F247–F259.
- Chen, M.-R., Hinkley, R. E., and Killough, J. E. (1996). Computed tomography imaging of air sparging in porous media. *Water resources research*, 32(10):3013–3024.
- Chen, Y. and Or, D. (2006). Geometrical factors and interfacial processes affecting complex dielectric permittivity of partially saturated porous media. *Water resources research*, 42(6).
- Chouteau, M. and Giroux, B. (2006). Méthodes électriques notes de cours. In cours online du laboratoire de Géophysique et Géostatistique de l'Ecole Polytechnique de Montréal, pages 9-38.
- Christensen, N., Sherlock, D., and Dodds, K. (2006). Monitoring CO_2 injection with cross-hole electrical resistivity tomography. *Exploration Geophysics*, 37(1):44–49.

- Clavaud, J.-B. (2001). Etude des propriétés de transport (hydraulique et électrique) des roches. Effets de la microstructure, de la présence de plusieurs fluides, de la fracturaiton et de l'intéraction eau-roche. PhD thesis, Université Paris-Diderot.
- Clavier, C., Coates, G., Dumanoir, J., et al. (1984). Theoretical and experimental bases for the dual-water model for interpretation of shaly sands. Society of Petroleum Engineers Journal, 24(02) :153–168.
- Clayton, W. S. (1998). A field and laboratory investigation of air fingering during air sparging. Groundwater Monitoring & Remediation, 18(3):134–145.
- Coggon, J. (1984). New three-point formulas for inductive coupling removal in induced polarization. *Geophysics*, 49(3):307–309.
- Cole, K. S. and Cole, R. H. (1941). Dispersion and absorption in dielectrics i. alternating current characteristics. *The Journal of Chemical Physics*, 9(4):341–351.
- Colman, E. and Hendrix, T. (1949). The fiberglass electrical soil-moisture instrument. Soil Science, 67(6) :425-438.
- Comparon, L. (2005). Etude experimentale des proprietes electriques et dielectriques des materiaux argileux consolides. PhD thesis, Institut de physique du globe de paris-IPGP.
- Contraires, S. (2008). Effets hydrauliques d'une injection de CO₂ en réservoir souterrain : Mise au point de méthodes géophysiques de surface permettant de suivre ces effets. PhD thesis, Institut de physique du globe de paris-IPGP.
- Cosenza, P., Camerlynck, C., and Tabbagh, A. (2003). Differential effective medium schemes for investigating the relationship between high-frequency relative dielectric permittivity and water content of soils. *Water resources research*, 39(9).
- Cosenza, P., Ghorbani, A., Florsch, N., and Revil, A. (2007). Effects of drying on the low-frequency electrical properties of tournemire argillites. *Pure and Applied Geophysics*, 164(10):2043-2066.
- Cosenza, P., Ghorbani, A., Revil, A., Zamora, M., Schmutz, M., Jougnot, D., and Florsch, N. (2008). A physical model of the low-frequency electrical polarization of clay rocks. *Journal* of Geophysical Research : Solid Earth (1978–2012), 113(B8).
- Cosenza, P. and Tabbagh, A. (2004). Electromagnetic determination of clay water content : role of the microporosity. *Applied Clay Science*, 26(1):21–36.
- Dafflon, B., Wu, Y., Hubbard, S. S., Birkholzer, J. T., Daley, T. M., Pugh, J. D., Peterson, J. E., and Trautz, R. C. (2012). Monitoring CO₂ intrusion and associated geochemical transformations in a shallow groundwater system using complex electrical methods. *Environmental* science & technology, 47(1):314-321.

- Dahlin, T. and Leroux, V. (2012). Improvement in time-domain induced polarization data quality with multi-electrode systems by separating current and potential cables. *Near Surface Geophysics*, 10(6):545–565.
- Dahlin, T., Leroux, V., and Nissen, J. (2002). Measuring techniques in induced polarisation imaging. Journal of Applied Geophysics, 50(3):279–298.
- Daily, W. and Owen, E. (1991). Cross-borehole resistivity tomography. *Geophysics*, 56(8):1228–1235.
- Davidson, D. and Cole, R. (1950). Dielectric relaxation in glycerine. The Journal of Chemical Physics, 18(10) :1417–1417.
- De Lima, O. and Niwas, S. (2000). Estimation of hydraulic parameters of shaly sandstone aquifers from geoelectrical measurements. *Journal of hydrology*, 235(1):12–26.
- De Lima, O. A. and Sharma, M. M. (1990). A grain conductivity approach to shaly sandstones. *Geophysics*, 55(10) :1347–1356.
- de Lima, O. A. and Sharma, M. M. (1992). A generalized maxwell-wagner theory for membrane polarization in shaly sands. *Geophysics*, 57(3):431–440.
- Debye, P. (1929). Polar molecules. Technical report, Dover.
- Devarajan, S., Toumelin, E., Torres-Verdín, C., Thomas, E., and Petrophysics, B. (2006). Porescale analysis of the waxman-smits shaly sand conductivity model. In SPWLA 47th Annual Logging Symposium, pages 1–9.
- Dey, A. and Morrison, H. F. (1973). Electromagnetic coupling in frequency and time-domain induced-polarization surveys over a multilayered earth. *Geophysics*, 38(2):380-405.
- Doetsch, J., Fiandaca, G., Auken, E., Christiansen, A. V., Cahill, A. G., and Jakobsen, R. (2014). Monitoring of CO₂-induced geochemical changes in a shallow aquifer by time domain spectral induced polarization. In EGU General Assembly Conference Abstracts, volume 16 of EGU General Assembly Conference Abstracts, page 10294.
- Donaldson, E., Siddiqui, T., et al. (1989). Relationship between the archie saturation exponent and wettability. *SPE formation evaluation*, 4(03) :359–362.
- Dukhin, S. S., Shilov, V. N., and Bikerman, J. (1974). Dielectric phenomena and double layer in disperse systems and polyelectrolytes. *Journal of The Electrochemical Society*, 121(4) :154C– 154C.
- Edwards, L. (1977). A modified pseudosection for resistivity and IP. *Geophysics*, 42(5) :1020–1036.

- Elder, C. R. and Benson, C. H. (1999). Air channel formation, size, spacing, and tortuosity during air sparging. *Groundwater Monitoring & Remediation*, 19(3):171–181.
- Epstein, N. (1989). On tortuosity and the tortuosity factor in flow and diffusion through porous media. *Chemical Engineering Science*, 44(3):777–779.
- Etienne, A. (2014). Amélioration du suivi de la contamination des sols et des eaux souterraines dans le cadre de la gestion des risques environnementaux. PhD thesis, Faculté Polytechnique de l'UMONS.
- Ezeuko, C. and McDougall, S. (2010). Modeling flow transitions during buoyancy-driven gas migration in liquid-saturated porous media. *Vadose Zone Journal*, 9(3):597–609.
- Fiandaca, G., Auken, E., Christiansen, A. V., and Gazoty, A. (2012). Time-domain-induced polarization : Full-decay forward modeling and 1d laterally constrained inversion of cole-cole parameters. *Geophysics*, 77(3) :E213–E225.
- Fleury, M. and Deschamps, H. (2009). Viscosity and electrical conductivity of aqueous nacl solutions with dissolved CO₂. *Energy Proceedia*, 1(1):3129–3133.
- Fraser, D., Keevil Jr, N., and Ward, S. (1964). Conductivity spectra of rocks from the craigmont ore environment. *Geophysics*, 29(5):832–847.
- Friedman, S. P. (2005). Soil properties influencing apparent electrical conductivity : a review. Computers and electronics in agriculture, 46(1):45–70.
- Gabriel, S., Lau, R., and Gabriel, C. (1996). The dielectric properties of biological tissues : Ii. measurements in the frequency range 10 hz to 20 ghz. *Physics in medicine and biology*, 41(11) :2251.
- Gardner, C., Dean, T., and Cooper, J. (1998). Soil water content measurement with a high-frequency capacitance sensor. *Journal of Agricultural Engineering Research*, 71(4):395–403.
- Garrouch, A. A. and Sharma, M. M. (1994). The influence of clay content, salinity, stress, and wettability on the dielectric properties of brine-saturated rocks : 10 hz to 10 mhz. *Geophysics*, 59(6) :909-917.
- Gasperikova, E., Hubbard, S. S., Watson, D. B., Baker, G. S., Peterson, J. E., Kowalsky, M. B., Smith, M., and Brooks, S. (2012). Long-term electrical resistivity monitoring of rechargeinduced contaminant plume behavior. *Journal of contaminant hydrology*, 142 :33–49.
- Gaudin, A. and Fuerstenau, D. (1955). Quartz flotation with anionic collectors. *Trans.* AIMMPE, 202 :66–72.

- Gazoty, A., Fiandaca, G., Pedersen, J., Auken, E., and Christiansen, A. V. (2012). Mapping of landfills using time-domain spectral induced polarization data : the eskelund case study. *Near Surface Geophysics*, 10(6) :575–586.
- Geuzaine, C. and Remacle, J.-F. (2009). Gmsh : A 3-d finite element mesh generator with built-in pre-and post-processing facilities. International Journal for Numerical Methods in Engineering, 79(11) :1309-1331.
- Ghorbani, A. (2007). Contribution au développement de la résistivité complexe et à ses applications en environnement. PhD thesis, UNIVERSITE PIERRE ET MARIE CURIE (PARIS.
- Ghorbani, A., Camerlynck, C., and Florsch, N. (2009a). Cr1dinv : A matlab program to invert 1d spectral induced polarization data for the cole-cole model including electromagnetic effects. *Computers & Geosciences*, 35(2):255-266.
- Ghorbani, A., Cosenza, P., Revil, A., Zamora, M., Schmutz, M., Florsch, N., and Jougnot, D. (2009b). Non-invasive monitoring of water content and textural changes in clay-rocks using spectral induced polarization : A laboratory investigation. *Applied Clay Science*, 43(3):493– 502.
- Giancoli (2009). Electric currents and resistance. In Phillips., J., editor, *Physics for Scientists* and Engineers with Modern Physics, page 658. Prentice Hall.
- Girard, J.-F., Coppo, N., Rohmer, J., Bourgeois, B., Naudet, V., and Schmidt-Hattenberger, C. (2011). Time-lapse csem monitoring of the ketzin (germany) CO₂ injection using 2× mam configuration. *Energy Procedia*, 4 :3322–3329.
- Glover, P. (2009). What is the cementation exponent? a new interpretation. *The Leading Edge*, 28(1):82-85.
- Glover, P. W. (2010). A generalized archie's law for n phases. *Geophysics*, 75(6) :E247–E265.
- Glover, P. W., Meredith, P. G., Sammonds, P. R., and Murrell, S. A. (1994). Ionic surface electrical conductivity in sandstone. *Journal of Geophysical Research : Solid Earth (1978– 2012)*, 99(B11) :21635–21650.
- Gomaa, M. M. et al. (2008). Relation between electric properties and water saturation for hematitic sandstone with frequency. *Annals of Geophysics*.
- Gordon, J. and Serway, R. (1998). Principles of Physics. Number vol. 2.
- Gouy, M. (1910). Sur la constitution de la charge electrique a la surface d'un electrolyte. J. Phys. Theor. Appl., 9(1):457–468.

- Govindan, R., Korre, A., Durucan, S., and Imrie, C. E. (2011). A geostatistical and probabilistic spectral image processing methodology for monitoring potential CO₂ leakages on the surface. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 5(3):589–597.
- Guéguen, Y. and Palciauskas, V. (1992). Introduction à la physique des roches. Hermann.
- Guichet, X. (2002). Etude expérimentale des propriétés électriques des roches; potentiels d'électrofiltration, suivi des mouvements de fluides en zones hydrothermales. PhD thesis, Université Paris-Diderot-Paris VII.
- Guichet, X., Jouniaux, L., and Catel, N. (2006). Modification of streaming potential by precipitation of calcite in a sand-water system : laboratory measurements in the ph range from 4 to 12. Geophysical Journal International, 166(1) :445-460.
- Hallof, P. G. (1974). The IP phase measurement and inductive coupling. *Geophysics*, 39(5):650–665.
- Hamzah, U., Ismail, M. A., and Samsudin, A. R. (2008). Geophysical techniques in the study of hydrocarbon-contaminated soil. *Bull Geolog. Soc. Malaysia (54)*, pages 133–138.
- Hanai, T. (1968). Electrical properties of emulsions. *Emulsion science*, pages 354–477.
- Havriliak, S. and Negami, S. (1966). A complex plane analysis of α-dispersions in some polymer systems. In *Journal of Polymer Science Part C : Polymer Symposia*, volume 14, pages 99–117. Wiley Online Library.
- Heaviside, O. (1893). *Electromagnetic Theory*, volume 1. " The Electrician" printing and publishing Company, limited.
- Heberling, F., Trainor, T. P., Lützenkirchen, J., Eng, P., Denecke, M. A., and Bosbach, D. (2011). Structure and reactivity of the calcite-water interface. *Journal of colloid and interface science*, 354(2) :843-857.
- Helmholtz, H. v. (1879). Studien über electrische grenzschichten. Annalen der Physik, 243(7):337–382.
- Hilhorst, M. (2000). A pore water conductivity sensor. Soil Science Society of America Journal, 64(6) :1922–1925.
- Hinchee, R. (1994). Air sparging state of the art. Air sparging for site remediation, pages 1–13.
- Hiorth, A., Cathles, L., and Madland, M. (2010). The impact of pore water chemistry on carbonate surface charge and oil wettability. *Transport in porous media*, 85(1):1–21.
- Hohmann, G. W. (1973). Electromagnetic coupling between grounded wires at the surface of a two-layer earth. *Geophysics*, 38(5):854–863.

- Hördt, A., Druiventak, A., Blaschek, R., Binot, F., Kemna, A., Kreye, P., and Zisser, N. (2009). Case histories of hydraulic conductivity estimation with induced polarization at the field scale. *Near Surface Geophysics*, 7(5-6):529–545.
- Hoversten, G. and Gasperikova, E. (2004). Non-seismic geophysical approaches to monitoring. Technical report, Ernest Orlando Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, CA (US).
- Hovland, M., Gardner, J., and Judd, A. (2002). The significance of pockmarks to understanding fluid flow processes and geohazards. *Geofluids*, 2(2) :127–136.
- Howell, B. and Licastro, P. (1961). Dielectric behavior of rocks and minerals. *American Mine-ralogist*, 46(3-4) :269–288.
- Huisman, J., Zimmermann, E., Haegel, F., Treichel, A., and Vereecken, H. (2014). Evaluation of a correction procedure to remove electrode contact impedance effects from broadband SIP measurements. In Proceedings of the Third International Workshop on Induced Polarization in Near-Surface Geophysics, Ile d'Oleron.
- Ingeman-Nielsen, T. (2005). Geophysical techniques applied to permafrost investigations in greenland. Arctic Technology Centre, BYGÁDTU, Technical University of Denmark.
- Ingeman-Nielsen, T. and Baumgartner, F. (2006). CR1Dmod : A matlab program to model 1d complex resistivity effects in electrical and electromagnetic surveys. *Computers & Geosciences*, 32(9) :1411-1419.
- Ishai, P. B., Talary, M. S., Caduff, A., Levy, E., and Feldman, Y. (2013). Electrode polarization in dielectric measurements : a review. *Measurement Science and Technology*, 24(10) :102001.
- Jacobson, M. Z. (2005). Studying ocean acidification with conservative, stable numerical schemes for nonequilibrium air-ocean exchange and ocean equilibrium chemistry. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 110(D7).
- Ji, W., Dahmani, A., Ahlfeld, D. P., Lin, J. D., and Hill, E. (1993). Laboratory study of air sparging : Air flow visualization. Groundwater Monitoring & Remediation, 13(4):115-126.
- Johansson, B., Jones, S., Dahlin, T., and Flyhammar, P. (2007). Comparisons of 2D and 3D inverted resistivity data as well as of resistivity and IP surveys on a landfill. In Procs. Near Surface 2007-13th European Meeting of Environmental and Engineering Geophysics, page P42. EAGE.
- Johnson, D. L. and Sen, P. N. (1988). Dependence of the conductivity of a porous medium on electrolyte conductivity. *Physical Review B*, 37(7) :3502.
- Johnson, R. L., Johnson, P., McWhorter, D., Hinchee, R., and Goodman, I. (1993). An overview of in situ air sparging. *Groundwater Monitoring & Remediation*, 13(4):127–135.

- Jones, G., Raymer, D., Chambers, K., and Kendall, J.-M. (2010). Improved microseismic event location by inclusion of a priori dip particle motion : a case study from ekofisk. *Geophysical* prospecting, 58(5) :727-737.
- Jones, S. B. and Friedman, S. P. (2000). Particle shape effects on the effective permittivity of anisotropic or isotropic media consisting of aligned or randomly oriented ellipsoidal particles. *Water Resources Research*, 36(10):2821-2833.
- Jougnot, D., Ghorbani, A., Revil, A., Leroy, P., and Cosenza, P. (2010). Spectral induced polarization of partially saturated clay-rocks : A mechanistic approach. *Geophysical Journal International*, 180(1) :210-224.
- Juhlin, C., Giese, R., Zinck-Jørgensen, K., Cosma, C., Kazemeini, H., Juhojuntti, N., Lüth, S., Norden, B., and Förster, A. (2007). 3D baseline seismics at ketzin, germany : the CO₂ sink project. *Geophysics*, 72(5) :B121–B132.
- Júnior, José Antonio Alves et Baldo, J. B. (2014). The behavior of zeta potential of silica suspensions. New Journal of Glass and Ceramics, 4(02) :29.
- Keating, E. H., Fessenden, J., Kanjorski, N., Koning, D. J., and Pawar, R. (2010). The impact of CO_2 on shallow groundwater chemistry : observations at a natural analog site and implications for carbon sequestration. *Environmental Earth Sciences*, 60(3):521–536.
- Keller, G. V., Licastro, P., et al. (1959). *Dielectric constant and electrical resistivity of natural*state cores. US Government Printing Office.
- Kemna, A. (2000). *Tomographic inversion of complex resistivity*. PhD thesis, Ruhr-Universität Bochum.
- Kemna, A. and Binley, A. (1996). Complex electrical resistivity tomography for contaminant plume delineation. In Proceedings of the 2nd Meeting on Environmental and Engineering Geophysics, pages 196–199.
- Kemna, A., Binley, A., and Slater, L. (2004). Crosshole ip imaging for engineering and environmental applications. *Geophysics*, 69(1):97–107.
- Kenyon, W. (1984). Texture effects on megahertz dielectric properties of calcite rock samples. Journal of Applied Physics, 55(8) :3153-3159.
- Kessouri, P. (2012). Mesure simultanée aux fréquences moyennes et cartographie de la permittivité diélectrique et de la conductivité électrique du sol. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie-Paris VI.

- Kiessling, D., Schmidt-Hattenberger, C., Schuett, H., Schilling, F., Krueger, K., Schoebel, B., Danckwardt, E., and Kummerow, J. (2010). Geoelectrical methods for monitoring geological CO₂ storage : First results from cross-hole and surface-downhole measurements from the CO₂ sink test site at ketzin (germany). International Journal of Greenhouse Gas Control, 4(5):816-826.
- Kim, J.-H., Yi, M.-J., Park, S.-G., and Kim, J. G. (2009). 4-d inversion of dc resistivity monitoring data acquired over a dynamically changing earth model. *Journal of Applied Geophysics*, 68(4):522–532.
- Knight, R. J. and Nur, A. (1987). The dielectric constant of sandstones, 60 khz to 4 mhz. *Geophysics*, 52(5):644-654.
- Koch, K., Kemna, A., Irving, J., and Holliger, K. (2011). Impact of changes in grain size and pore space on the hydraulic conductivity and spectral induced polarization response of sand. *Hydrology and Earth System Sciences*, 15(6) :1785–1794.
- Koch, K., Revil, A., and Holliger, K. (2012). Relating the permeability of quartz sands to their grain size and spectral induced polarization characteristics. *Geophysical Journal Internatio*nal, 190(1):230-242.
- Korre, A., Durucan, S., Imrie, C., and May, F. (2012). Quantification techniques for co₂ leakage. Technical report, IEAGHG, UK.
- Kruschwitz, S., Binley, A., Lesmes, D., and Elshenawy, A. (2010). Textural controls on lowfrequency electrical spectra of porous media. *Geophysics*, 75(4) :WA113–WA123.
- Lamert, H., Geistlinger, H., Werban, U., Schütze, C., Peter, A., Hornbruch, G., Schulz, A., Pohlert, M., Kalia, S., Beyer, M., et al. (2012). Feasibility of geoelectrical monitoring and multiphase modeling for process understanding of gaseous CO₂ injection into a shallow aquifer. *Environmental Earth Sciences*, 67(2):447–462.
- Landau, L. D. and Lifshitz, E. (1960). Course of Theoretical Physics : Vol. : 8 : Electrodynamics of Continuous Medie. Pergamon Press.
- Lasne, Y., Paillou, P., Freeman, A., Farr, T., McDonald, K. C., Ruffie, G., Malezieux, J.-M., Chapman, B., and Demontoux, F. (2008). Effect of salinity on the dielectric properties of geological materials : Implication for soil moisture detection by means of radar remote sensing. *Geoscience and Remote Sensing, IEEE Transactions on*, 46(6) :1674–1688.
- Le Thiez, P. and Rojey, A. (2007). Captage, transport et stockage géologique du CO₂. *IFP*, *Paris*.

- Leroux, V., Dahlin, T., and Rosqvist, H. (2010). Time-domain IP and resistivity sections measured at four landfills with different contents. In 16th European Meeting of Environmental and Engineering Geophysics.
- Leroy, P. (2005). Transport ionique dans les argiles. Influence de la microstructure et des effets d'interface. Application aux argilites du site de Bure (Meuse/Haute Marne). PhD thesis, Université de droit, d'économie et des sciences-Aix-Marseille III.
- Leroy, P., Devau, N., Revil, A., and Bizi, M. (2013). Influence of surface conductivity on the apparent zeta potential of amorphous silica nanoparticles. *Journal of colloid and interface science*, 410 :81–93.
- Leroy, P. and Revil, A. (2004). A triple-layer model of the surface electrochemical properties of clay minerals. *Journal of Colloid and Interface Science*, 270(2):371–380.
- Leroy, P., Revil, A., Kemna, A., Cosenza, P., and Ghorbani, A. (2008). Complex conductivity of water-saturated packs of glass beads. *Journal of Colloid and Interface Science*, 321(1):103– 117.
- Lesmes, D. P. and Frye, K. M. (2001). Influence of pore fluid chemistry on the complex conductivity and induced polarization responses of berea sandstone. *Journal of Geophysical Research : Solid Earth (1978-2012)*, 106(B3) :4079-4090.
- Levitskaya, T. M. and Sternberg, B. K. (1996). Polarization processes in rocks : 1. complex dielectric permittivity method. *Radio Science*, 31(4) :755–779.
- Li, H. and De Bruyn, P. (1966). Electrokinetic and adsorption studies on quartz. Surface Science, 5(2):203-220.
- Lide, D. R. (2004). CRC handbook of chemistry and physics. CRC press.
- Llera, F. J., Sato, M., Nakatsuka, K., and Yokoyama, H. (1990). Temperature dependence of the electrical resistivity of water-saturated rocks. *Geophysics*, 55(5):576–585.
- Loden, M. E. (1992). A technology assessment of soil vapor extraction and air sparging. Risk Reduction Engineering Laboratory, Office of Research and Development, US Environmental Protection Agency.
- Loke, M. H. and Barker, R. (1996). Rapid least-squares inversion of apparent resistivity pseudosections by a quasi-newton method. *Geophysical prospecting*, 44(1):131–152.
- Lu, J., Partin, J. W., Hovorka, S. D., and Wong, C. (2010). Potential risks to freshwater resources as a result of leakage from CO₂ geological storage : a batch-reaction experiment. *Environmental Earth Sciences*, 60(2) :335–348.

- Lundegard, P. D. and Andersen, G. (1996). Multiphase numerical simulation of air sparging performance. *Groundwater*, 34(3):451–460.
- Lunev, I., Nigmatullin, R., Zavidonov, A. Y., Gusev, Y. A., and Manyurov, I. (2001). The effect of clay morphology on water relaxation. *Technical Physics*, 46(11):1473-1474.
- Madden, T. and Cantwell, T. (1967). Part d. induced polarization, a review. *Mining geophysics*, 2:373–400.
- Madden, T. and Marshall, D. (1958). A laboratory investigation of induced polarization. M.I.T. report to A.E.C., RME 3157.
- Madden, T. and Marshall, D. (1959). Electrode and membrane polarization. M.I.T. report to A.E.C., RME 3157.
- Maineult, A. (2004). Application de la méthode du potentiel spontané à l'hydrogéologie : expérimentation sur modèle réduit d'aquifère. PhD thesis, Université Louis Pasteur-Strasbourg I.
- Marescot, L. (2004). Modélisation directe et inverse en prospection électrique sur les structures
 3D complexes par la méthode des éléments finis. PhD thesis, Nantes.
- Marley, M. C., Hazebrouck, D. J., and Walsh, M. T. (1992). The application of in situ air sparging as an innovative soils and ground water remediation technology. *Groundwater Mo*nitoring & Remediation, 12(2):137–145.
- Martin, T. (2012). Complex resistivity measurements on oak. European Journal of Wood and Wood Products, 70(1-3):45-53.
- Martinez, F. J., Batzle, M. L., and Revil, A. (2012). Influence of temperature on seismic velocities and complex conductivity of heavy oil-bearing sands. *Geophysics*, 77(3) :WA19– WA34.
- Marulanda, C., Culligan, P. J., and Germaine, J. T. (2000). Centrifuge modeling of air sparging—a study of air flow through saturated porous media. *Journal of hazardous materials*, 72(2):179–215.
- Maxwell, J. (1873). A treatise on electricity and magnetism. *Clarendon Press series*.
- Maxwell, J. (1891). Treatise on electricity and magnetism, (1891), reprint by dover. New York.
- Maxwell, J. and Garnett, W. (1904). Colours in metal glasses and metal films. Philos. Trans. R. Soc. London, Sect. A, 3 :385–420.
- Maxwell, J. C. (1865). A dynamical theory of the electromagnetic field. *Philosophical Transac*tions of the Royal Society of London, 155:459–512.

- McCray, J. E. and Falta, R. W. (1996). Defining the air sparging radius of influence for groundwater remediation. *Journal of contaminant hydrology*, 24(1):25–52.
- McCray, J. E. and Falta, R. W. (1997). Numerical simulation of air sparging for remediation of napl contamination. *Groundwater*, 35(1):99–110.
- Mendelson, K. S. and Cohen, M. H. (1982). The effect of grain anisotropy on the electrical properties of sedimentary rocks. *Geophysics*, 47(2):257–263.
- Millett, F. (1967). Electromagnetic coupling of collinear dipoles on a uniform half-space. Mining geophysics, 2:401–419.
- Montaron, B., Han, M., et al. (2009). A connectivity model for the electrical conductivity of sandstone rocks. In SPWLA 50th Annual Logging Symposium. Society of Petrophysicists and Well-Log Analysts.
- Morgan, F., Williams, E., and Madden, T. (1989). Streaming potential properties of westerly granite with applications. Journal of Geophysical Research : Solid Earth (1978-2012), 94(B9) :12449-12461.
- Morgan, W. B., Pirson, S. J., et al. (1964). The effect of fractional wettability on the archie saturation exponent. In *SPWLA 5th Annual Logging Symposium*. Society of Petrophysicists and Well-Log Analysts.
- Munday, P. L., Dixson, D. L., McCormick, M. I., Meekan, M., Ferrari, M. C., and Chivers, D. P. (2010). Replenishment of fish populations is threatened by ocean acidification. *Proceedings* of the National Academy of Sciences, 107(29) :12930–12934.
- Nabighian, M., Grauch, V., Hansen, R., LaFehr, T., Li, Y., Peirce, J., Phillips, J., and Ruder, M. (2005). The historical development of the magnetic method in exploration. *Geophysics*, 70(6) :33ND-61ND.
- Nakatsuka, Y., Xue, Z., Garcia, H., and Matsuoka, T. (2010). Experimental study on CO₂ monitoring and quantification of stored CO₂ in saline formations using resistivity measurements. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 4(2) :209–216.
- Nguyen, F., Kemna, A., Antonsson, A., Engesgaard, P., Kuras, O., Ogilvy, R., Gisbert, J., Jorreto, S., and Pulido-Bosch, A. (2009). Characterization of seawater intrusion using 2d electrical imaging. *Near Surface Geophysics*, 7(5-6) :377-390.
- Nicolas (2003). Ecoulements dans les milieux poreux. Cours Université de Provence, Marseille.
- Noble, M. S., Gesret, A., Desassis, N., Romary, T., et al. (2010). Passive seismic monitoringunderstanding and reducing event location uncertainties. In ESC 2010 European Seismological Commission 32nd General Assembly.
- Ogilvy, R., Meldrum, P., Kuras, O., Wilkinson, P., Chambers, J., Sen, M., Pulido-Bosch, A., Gisbert, J., Jorreto, S., Frances, I., et al. (2009). Automated monitoring of coastal aquifers with electrical resistivity tomography. *Near Surface Geophysics*, 7(5-6) :367–375.
- Okay, G. (2011). Caractérisation des hétérogénéités texturales et hydriques des géomatériaux argileux par la méthode de polarisation provoquée : Application à l'edz de la station expérimentale de tournemire.
- Okay, G., Cosenza, P., Cabrera, J., Camerlynck, C., Ghorbani, A., Florsch, N., and Revil, A. (2010). Caractérisation géoélectrique de la zone endommagée des galeries sur le site de tournemire. Journées Nationales de Géotechnique et de Géologie de l'Ingénieur JNGG2010, Grenoble, pages 7–9.
- Oldenburg, D. W. and Li, Y. (1999). Estimating depth of investigation in dc resistivity and IP surveys. *Geophysics*, 64(2) :403–416.
- Olhoeft, G. (1985). Low-frequency electrical properties. *Geophysics*, 50(12):2492–2503.
- Orr, J. C., Fabry, V. J., Aumont, O., Bopp, L., Doney, S. C., Feely, R. A., Gnanadesikan, A., Gruber, N., Ishida, A., Joos, F., et al. (2005). Anthropogenic ocean acidification over the twenty-first century and its impact on calcifying organisms. *Nature*, 437(7059) :681–686.
- Parsons, R. (1990). The electrical double layer : recent experimental and theoretical developments. *Chemical Reviews*, 90(5) :813–826.
- Pelton, W. (1977). Interpretation of complex resistivity and dielectric data. PhD thesis, University of Utah.
- Pelton, W., Ward, S., Hallof, P., Sill, W., and Nelson, P. (1978). Mineral discrimination and removal of inductive coupling with multifrequency IP. *Geophysics*, 43(3):588–609.
- Penz, S. (2012). Modélisation et inversion de données électriques en courant continu : vers une prise en compte efficace de la topographie. PhD thesis, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris.
- Persson, M. (2002). Evaluating the linear dielectric constant-electrical conductivity model using time-domain reflectometry. *Hydrological sciences journal*, 47(2) :269–277.
- Pessel, M. (2000). Tomographie électrique : Développements Méthodologiques et Applications. PhD thesis, Université Rennes 1.
- Peterson, J., Murray, K., Tulu, Y., Peuler, B., and Wilkens, D. (2001). Air-flow geometry in air sparging of fine-grained sands. *Hydrogeology Journal*, 9(2):168–176.

- Picotti, S., Gei, D., Carcione, J. M., Grünhut, V., and Osella, A. (2013). Sensitivity analysis from single-well ert simulations to image CO₂ migrations along wellbores. *The Leading Edge*, 32(5):504–512.
- Placencia, G. E. (2004). Equivalence et profondeur d'investigation en panneau électrique 2d : bibliographie et analyse des outils existant. DEA Hydrologie, Hydrogéologie, Géostatistique et Géochimie, UPMC.
- Poley, J. P., Nooteboom, J., and De Waal, P. (1978). Use of vhf dielectric measurements for borehole formation analysis. Log Anal. ;(United States), 19(3).
- Radic, T. (2004). Elimination of cable effects while multi-channel sip measurements. In 10th European Meeting of Environmental and Engineering Geophysics.
- Radic, T. (2014). Measuring IP effects at high frequencies first lab and field data from 0.001 hz 250 khz. In 3rd International Workshop on Induced Polarization, 6-9 april 2014 (Oléron Island France).
- Rakotomalala, R. (2011). Tests de normalité techniques empiriques et tests statistiques université lumière lyon, version 2 pp. 1-53.
- Reddy, K., Kosgi, S., and Zhou, J. (1995). A review of in-situ air sparging for the remediation of voc-contaminated saturated soils and groundwater. *Hazardous waste and hazardous* materials, 12(2):97–118.
- Revil, A. (2013). Effective conductivity and permittivity of unsaturated porous materials in the frequency range 1 mhz–1ghz. *Water resources research*, 49(1):306–327.
- Revil, A., Cathles, L., Losh, S., and Nunn, J. (1998). Electrical conductivity in shaly sands with geophysical applications. *Journal of Geophysical Research : Solid Earth (1978–2012)*, 103(B10) :23925–23936.
- Revil, A. and Florsch, N. (2010). Determination of permeability from spectral induced polarization in granular media. *Geophysical Journal International*, 181(3) :1480–1498.
- Revil, A. and Glover, P. (1997). Theory of ionic-surface electrical conduction in porous media. *Physical Review B*, 55(3) :1757.
- Revil, A. and Glover, P. (1998). Nature of surface electrical conductivity in natural sands, sandstones, and clays. *Geophysical Research Letters*, 25(5):691–694.
- Revil, A., Koch, K., and Holliger, K. (2012). Is it the grain size or the characteristic pore size that controls the induced polarization relaxation time of clean sands and sandstones? Water Resources Research, 48(5).

- Revil, A. and Leroy, P. (2004). Constitutive equations for ionic transport in porous shales. Journal of Geophysical Research : Solid Earth (1978–2012), 109(B3).
- Revil, A., Pezard, P., and Glover, P. (1999). Streaming potential in porous media : 1. theory of the zeta potential. Journal of Geophysical Research : Solid Earth (1978-2012), 104(B9) :20021-20031.
- Revil, A. and Skold, M. (2011a). Salinity dependence of spectral induced polarization in sands and sandstones. *Geophysical Journal International*, 187(2):813–824.
- Revil, A. and Skold, M. (2011b). Salinity dependence of spectral induced polarization in sands and sandstones. *Geophysical Journal International*, 187(2):813–824.
- Routh, P. S. and Oldenburg, D. W. (2001). Electromagnetic coupling in frequency-domain induced polarization data : a method for removal. *Geophysical Journal International*, 145(1):59– 76.
- Roy, A. (1972). Depth of investigation in wenner, three-electrode and dipole-dipole dc resistivity methods. *Geophysical Prospecting*, 20(2) :329–340.
- Roy, A. and Apparao, A. (1971). Depth of investigation in direct current methods. *Geophysics*, 36(5):943-959.
- Samouëlian, A., Cousin, I., Tabbagh, A., Bruand, A., and Richard, G. (2005). Electrical resistivity survey in soil science : a review. Soil and Tillage research, 83(2) :173–193.
- Satriani, A., Loperte, A., and Proto, M. (2011). Electrical resistivity tomography for coastal salt water intrusion characterization along the ionian coast of basilicata region (southern italy). *International Water Technology Journal*, 1(1).
- Sauer, U., Watanabe, N., Singh, A., Dietrich, P., Kolditz, O., and Schütze, C. (2014). Joint interpretation of geoelectrical and soil-gas measurements for monitoring CO₂ releases at a natural analogue. *Near Surface Geophysics*, 12(1):165–187.
- Schlumberger, C. (1920). Etude sur la prospection electrique du sous-sol, gaultier-villars et cie. France, Paris.
- Schmutz, M., Ghorbani, A., Vaudelet, P., and Blondel, A. (2014). Cable arrangement to reduce electromagnetic coupling effects in spectral-induced polarization studies. *Geophysics*, 79(2):A1–A5.
- Schmutz, M., Ghorbani, A., Vaudelet, P., and Revil, A. (2011). Spectral induced polarization detects cracks and distinguishes between open-and clay-filled fractures. *Journal of Environmental & Engineering Geophysics*, 16(2):85–91.

- Schmutz, M., Revil, A., Vaudelet, P., Batzle, M., Viñao, P. F., and Werkema, D. (2010). Influence of oil saturation upon spectral induced polarization of oil-bearing sands. *Geophysical Journal International*, 183(1) :211-224.
- Schwan, H. (1963). Measurements of biological impedances. Physical Techniques in Biological Research, 6(3):323-407.
- Schwarz, G. (1962). A theory of the low-frequency dielectric dispersion of colloidal particles in electrolyte solution1, 2. The Journal of Physical Chemistry, 66(12):2636-2642.
- Scollar, I., Tabbagh, A., Hesse, A., and Herzog, I. (1990). Archaeological prospecting and remote sensing. Cambridge University Press.
- Scott, J. B. and Barker, R. D. (2003). Determining pore-throat size in permo-triassic sandstones from low-frequency electrical spectroscopy. *Geophysical Research Letters*, 30(9).
- Scott, J. H., Carroll, R. D., and Cunningham, D. R. (1967). Dielectric constant and electrical conductivity measurements of moist rock : A new laboratory method. *Journal of Geophysical Research*, 72(20) :5101–5115.
- Seigel, H. O. (1959). Mathematical formulation and type curves for induced polarization. *Geophysics*, 24(3):547–565.
- Seigel, H. O., Vanhala, H., and Sheard, S. N. (1997). Some case histories of source discrimination using time-domain spectral IP. *Geophysics*, 62(5):1394–1408.
- Selker, J. S., Niemet, M., Mcduffie, N. G., Gorelick, S. M., and Parlange, J.-Y. (2007). The local geometry of gas injection into saturated homogeneous porous media. *Transport in* porous media, 68(1):107–127.
- Sellers, K. L. and Schreiber, R. P. (1992). Air sparging model for predicting groundwater cleanup rate. Proc. Petroleum Hydrocarbons and Organic Chemicals in Groundwater : Prevention, Detection, and Restoration.
- Semer, R., Adams, J., and Reddy, K. (1998). TECHNICAL NOTE an experimental investigation of air flow patterns in saturated soils during air sparging. *Geotechnical & Geological Engineering*, 16(1):59–75.
- Sen, P. (1981). Relation of certain geometrical features to the dielectric anomaly of rocks. *Geophysics*, 46(12):1714–1720.
- Sen, P. et al. (1987). Electrochemical origin of conduction in shaly formations. In SPE Annual Technical Conference and Exhibition. Society of Petroleum Engineers.
- Sen, P., Scala, C., and Cohen, M. (1981). A self-similar model for sedimentary rocks with application to the dielectric constant of fused glass beads. *Geophysics*, 46(5):781–795.

- Sen, P. N. (1984). Grain shape effects on dielectric and electrical properties of rocks. *Geophysics*, 49(5):586–587.
- Shen, L. and Chen, Z. (2007). Critical review of the impact of tortuosity on diffusion. Chemical Engineering Science, 62(14) :3748–3755.
- Shevnin, V., Mousatov, A., Ryjov, A., and Delgado-Rodriquez, O. (2007). Estimation of clay content in soil based on resistivity modelling and laboratory measurements. *Geophysical Prospecting*, 55(2):265–275.
- Shilov, V., Delgado, A., Gonzalez-Caballero, F., and Grosse, C. (2001). Thin double layer theory of the wide-frequency range dielectric dispersion of suspensions of non-conducting spherical particles including surface conductivity of the stagnant layer. *Colloids and Surfaces A* : *Physicochemical and Engineering Aspects*, 192(1) :253-265.
- Shilov, V. and Dukhin, S. (1970). Theory of polarization of diffuse part of a thin double layer at a spherical particle in an alternating electric field. *Colloid Journal-Ussr*, 32(1) :90.
- Siemon, B., Christiansen, A. V., and Auken, E. (2009). A review of helicopter-borne electromagnetic methods for groundwater exploration. Near Surface Geophysics, 7(5-6) :629-646.
- Skold, M., Revil, A., and Vaudelet, P. (2011). The pH dependence of spectral induced polarization of silica sands : Experiment and modeling. *Geophysical Research Letters*, 38(12).
- Slater, L., Ntarlagiannis, D., and Wishart, D. (2006). On the relationship between induced polarization and surface area in metal-sand and clay-sand mixtures. *Geophysics*, 71(2):A1– A5.
- Slater, L. D. and Lesmes, D. (2002). IP interpretation in environmental investigations. *Geophysics*, 67(1):77–88.
- Smith-Rose, R. (1934). Electrical measurements on soil with alternating currents. Journal of the Institution of Electrical Engineers, 75(452):221–237.
- Sogade, J. A., Scira-Scappuzzo, F., Vichabian, Y., Shi, W., Rodi, W., Lesmes, D. P., and Morgan, F. D. (2006). Induced-polarization detection and mapping of contaminant plumes. *Geophysics*, 71(3) :B75–B84.
- Stern, O. (1924). Theory of the electrical double layer.(in german.). Electrochemistry, 30 :508– 516.
- Stocker, T., Qin, D., Plattner, G., Tignor, M., Allen, S., Boschung, J., Nauels, A., Xia, Y., Bex,
 V., and Midgley, P. (2013). Ipcc, 2013 : Summary for policymakers. in climate change 2013 :
 The physical science basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report

of the Intergovernmental Panel on Climate Change(Cambridge Univ. Press, Cambridge, UK, 2013).

- Sumner, J. S. (1976). Principles of induced polarization for geophysical exploration. Elsevier, Amsterdam.
- Sunde, E. D. (1968). *Earth conduction effects in transmission systems*, volume 7. Dover Publications New York.
- Sweeney, S. and Jennings Jr, H. (1960). Effect of wettability on the electrical resistivity of carbonate rock from a petroleum reservoir. *The Journal of Physical Chemistry*, 64(5):551–553.
- Tabbagh, A. (1994). Simultaneous measurement of electrical conductivity and dielectric permittivity of soils using a slingram electromagnetic device in medium frequency range*. Archaeometry, 36(1):159–170.
- Tabbagh, A., Cosenza, P., Ghorbani, A., Guérin, R., and Florsch, N. (2009). Modelling of maxwell-wagner induced polarisation amplitude for clayey materials. *Journal of Applied Geophysics*, 67(2):109–113.
- Tabbagh, A., Panissod, C., Guérin, R., and Cosenza, P. (2002). Numerical modeling of the role of water and clay content in soils' and rocks' bulk electrical conductivity. *Journal of Geophysical Research : Solid Earth (1978–2012)*, 107(B11) :ECV–20.
- Tabbagh, J. (2003). Documentation qwseln : programme de sondage eléctrique. Département de Géophysique Appliquée, Université Pierre et Marie Curie : Paris.
- Tarantola, A. (1987). Inverse problem theory. Elsevier, Amsterdam.
- Tarasov, A. and Titov, K. (2013). On the use of the cole-cole equations in spectral induced polarization. *Geophysical Journal International*, 195(1):352–356.
- Thompson, D. W. and Pownall, P. G. (1989). Surface electrical properties of calcite. *Journal* of colloid and interface science, 131(1):74–82.
- Titov, K., Komarov, V., Tarasov, V., and Levitski, A. (2002). Theoretical and experimental study of time domain-induced polarization in water-saturated sands. *Journal of Applied Geophysics*, 50(4):417–433.
- Tong, M., Li, L., Wang, W., and Jiang, Y. (2006a). Determining capillary-pressure curve, poresize distribution, and permeability from induced polarization of shaley sand. *Geophysics*, 71(3):N33–N40.
- Tong, M., Li, L., Wang, W., and Jiang, Y. (2006b). A time-domain induced-polarization method for estimating permeability in a shaly sand reservoir. *Geophysical prospecting*, 54(5):623-631.

- Topp, G., Davis, J., and Annan, A. P. (1980). Electromagnetic determination of soil water content : Measurements in coaxial transmission lines. *Water resources research*, 16(3):574– 582.
- Ulrich, C. and Slater, L. (2004). Induced polarization measurements on unsaturated, unconsolidated sands. *Geophysics*, 69(3):762–771.
- Ustra, A., Slater, L., Ntarlagiannis, D., and Elis, V. (2012). Spectral induced polarization (SIP) signatures of clayey soils containing toluene. *Near Surface Geophysics*, 10(6):503–515.
- Vacquier, V., Holmes, C. R., Kintzinger, P. R., and Lavergne, M. (1957). Prospecting for ground water by induced electrical polarization. *Geophysics*, 22(3):660–687.
- Van Cappellen, P., Charlet, L., Stumm, W., and Wersin, P. (1993). A surface complexation model of the carbonate mineral-aqueous solution interface. *Geochimica et Cosmochimica* Acta, 57(15):3505-3518.
- Van Dijke, M., Van der Zee, S., and Van Duijn, C. (1995). Multi-phase flow modeling of air sparging. Advances in Water Resources, 18(6):319–333.
- Van Voorhis, G., Nelson, P., and Drake, T. (1973). Complex resistivity spectra of porphyry copper mineralization. *Geophysics*, 38(1):49–60.
- Vanhala, H. (1997). Laboratory and Field Studies of Environmental and Exploration Applications of the Spectral Induced-polarization (SIP) Method : Synopsis. Geological Survey of Finland.
- Vanhala, H., Soininen, H., and Kukkonen, I. (1992). Detecting organic chemical contaminants by spectral-induced polarization method in glacial till environment. *Geophysics*, 57(8):1014– 1017.
- Vargaftik, N., Volkov, B., and Voljak, L. (1983). International tables of the surface tension of water. Journal of Physical and Chemical Reference Data, 12(3):817–820.
- Vaudelet, P. (2011). Développement des méthodes géoélectriques : application à la caractérisation des sites et sols pollués. PhD thesis, Bordeaux 3.
- Vaudelet, P., Revil, A., Schmutz, M., Franceschi, M., and Bégassat, P. (2011). Induced polarization signatures of cations exhibiting differential sorption behaviors in saturated sands. *Water Resources Research*, 47(2).
- Vaudelet, P., Revil, A., Schmutz, M., Franceschi, M., and Bégassat, P. (2011b). Changes in induced polarization associated with the sorption of sodium, lead, and zinc on silica sands. *Journal of Colloid and Interface Science*, 360(2):739–752.

- Vdović, N. (2001). Electrokinetic behaviour of calcite—the relationship with other calcite properties. *Chemical Geology*, 177(3):241–248.
- Verdon, J. P., Kendall, J.-M., White, D. J., Angus, D. A., Fisher, Q. J., and Urbancic, T. (2010). Passive seismic monitoring of carbon dioxide storage at weyburn. *The Leading Edge*, 29(2):200-206.
- Vialle, S., Contraires, S., Zinzsner, B., Clavaud, J.-B., Mahiouz, K., Zuddas, P., and Zamora, M. (2014). Percolation of CO₂ rich fluids in a limestone sample : Evolution of hydraulic, electrical, chemical, and structural properties. *Journal of Geophysical Research : Solid Earth*, 119(4) :2828-2847.
- Vieira, C. (2013). Calibration of Electrical methods for Detecting gas Injection in Porous Media.
 PhD thesis, Sorbonne Paris-Cité, Université Denis Diderot Paris 7, Institut de Physique du Globe de paris (IPGP).
- Vinegar, H. and Waxman, M. (1984). Induced polarization of shaly sands. Geophysics, 49(8):1267–1287.
- Wagner, K. W. (1914). Erklärung der dielektrischen nachwirkungsvorgänge auf grund maxwellscher vorstellungen. Electrical Engineering (Archiv fur Elektrotechnik), 2(9) :371–387.
- Wait, J. R. (1959). Overvoltage Research and Geophysical Applications. Edited by JR Wait, chapter The variable-frequency method, pages 29–49. Pergamon press.
- Waxman, M., Smits, L., et al. (1968). Electrical conductivities in oil-bearing shaly sands. Society of Petroleum Engineers Journal, 8(02) :107–122.
- Wehrle, K. (1990). In-situ cleaning of CHC contaminated sites : model-scale experiments using the air injection (in-situ stripping) method in granular soils. In *Contaminated Soil 90*, pages 1061–1062. Springer.
- Weller, A., Breede, K., Slater, L., and Nordsiek, S. (2011a). Effect of changing water salinity on complex conductivity spectra of sandstones. *Geophysics*, 76(5):F315–F327.
- Weller, A., Breede, K., Slater, L., and Nordsiek, S. (2011b). Effect of changing water salinity on complex conductivity spectra of sandstones. *Geophysics*, 76(5):F315–F327.
- Weller, A., Nordsiek, S., and Debschütz, W. (2010a). Estimating permeability of sandstone samples by nuclear magnetic resonance and spectral-induced polarization. *Geophysics*, 75(6) :E215–E226.
- Weller, A., Seichter, M., and Kampke, A. (1996). Induced-polarization modelling using complex electrical conductivities. *Geophysical Journal International*, 127(2):387–398.

- Weller, A. and Slater, L. (2012a). Salinity dependence of complex conductivity of unconsolidated and consolidated materials : Comparisons with electrical double layer models. *Geophysics*, 77(5):D185–D198.
- Weller, A. and Slater, L. (2012b). Salinity dependence of complex conductivity of unconsolidated and consolidated materials : Comparisons with electrical double layer models. *Geophysics*, 77(5) :D185–D198.
- Weller, A., Slater, L., and Breede, K. (2011c). Quantification of polarization magnitude in sandston : accounting for fluid chemistry. In Proceedings of the second International Workshop on Induced Polarization in Near-Surface Geophysics.
- Weller, A., Slater, L., Nordsiek, S., and Ntarlagiannis, D. (2010b). On the estimation of specific surface per unit pore volume from induced polarization : A robust empirical relation fits multiple data sets. *Geophysics*, 75(4) :WA105–WA112.
- White, F. M. (2010). Fluid Mechanics. New York, McGraw-Hill Higher Education.
- Wieckowski, A. (1999). Interfacial electrochemistry : theory : experiment, and applications. CRC Press.
- Wilson, D. J., Kayano, S., Mutch Jr, R. D., and Clarke, A. N. (1992). Groundwater cleanup by in-situ sparging. i. mathematical modeling. *Separation science and technology*, 27(8-9) :1023– 1041.
- Worthington, P. F. (1993). The uses and abuses of the archie equations, 1 : The formation factor-porosity relationship. *Journal of Applied geophysics*, 30(3) :215–228.
- Wu, Y., Hubbard, S., Williams, K. H., and Ajo-Franklin, J. (2010). On the complex conductivity signatures of calcite precipitation. *Journal of Geophysical Research : Biogeosciences (2005– 2012)*, 115(G2).
- Wu, Y., Slater, L., Versteeg, R., and LaBrecque, D. (2008). A comparison of the low frequency electrical signatures of iron oxide versus calcite precipitation in granular zero valent iron columns. Journal of contaminant hydrology, 95(3):154–167.
- Wu, Y., Versteeg, R., Slater, L., and LaBrecque, D. (2009). Calcite precipitation dominates the electrical signatures of zero valent iron columns under simulated field conditions. *Journal of* contaminant Hydrology, 106(3):131-143.
- Wyllie, M. R. J. (1957). The fundamentals of electric log interpretation. Academic Press.
- Wynn, J. C. and Zonge, K. L. (1975). Em coupling, its intrinsic value, its removal and the cultural coupling problem. *Geophysics*, 40(5):831–850.

- Xue, Z., Tanase, D., and Watanabe, J. (2006). Estimation of CO₂ saturation from time-lapse CO₂ well logging in an onshore aquifer, nagaoka, japan. *Exploration Geophysics*, 37(1):19–29.
- Zanetti, C., Weller, A., Vennetier, M., and Mériaux, P. (2011). Detection of buried tree root samples by using geoelectrical measurements : a laboratory experiment. *Plant and soil*, 339(1-2) :273-283.
- Zimmer, M., Prasad, M., and Mavko, G. (2002). Pressure and porosity influences on vp- vs ratio in unconsolidated sands. *The Leading Edge*, 21(2):178–183.
- Zimmermann, E., Kemna, A., Berwix, J., Glaas, W., and Vereecken, H. (2008). Eit measurement system with high phase accuracy for the imaging of spectral induced polarization properties of soils and sediments. *Measurement Science and Technology*, 19(9):094010.
- Zisser, N., Kemna, A., and Nover, G. (2010a). Dependence of spectral-induced polarization response of sandstone on temperature and its relevance to permeability estimation. *Journal* of Geophysical Research : Solid Earth (1978-2012), 115(B9).
- Zisser, N., Kemna, A., and Nover, G. (2010b). Relationship between low-frequency electrical properties and hydraulic permeability of low-permeability sandstones. *Geophysics*, 75(3):E131–E141.
- Zonge, K. L., Hughes, L. J., et al. (1985). Effect of electrode contact resistance on electric field measurements. In 1985 SEG Annual Meeting. Society of Exploration Geophysicists.
- Zonge, K. L. and Wynn, J. C. (1975). Recent advances and applications in complex resistivity measurements. *Geophysics*, 40(5):851–864.
- Zyvoloski, G. (2007). Fehm : A control volume finite element code for simulating subsurface multi-phase multi-fluid heat and mass transfer. Los Alamos Unclassified Report LA-UR-07-3359.

Table des figures

1.1	Représentation schématique des principaux transferts de carbone entre les différents réservoirs.	
	Les flux conséquents à l'activité humaine sont représentés par des flèches en pointillés. Extrait	
	de Wikimedia-commons. Auteur : Bendeck	23
1.2	Evolution de la concentration en CO_2 dans l'atmosphère mesurée à l'observatoire Mauna Loa	
	à Hawaï. Graphique extrait et modifié à partir du site de l'ESRL (Earth System Research	
	Laboratory)	24
1.3	Cartographie des variations de la température de surface observées de 1901 à 2012. Les varia-	
	tions sont représentées uniquement lorsque la disponibilité des données permet une estimation	
	suffisamment robuste. Dans le cas contraire les cases sont blanches. Les signes $+$ indiquent les	
	zones où la variation est supérieure à 10% . Extrait du dernier rapport du GIEC (Stocker et al.,	
	2013)	25
1.4	Représentation schématique des étapes de captage, de transport et de stockage, qui composent	
	le processus de séquestration géologique du CO2. (IFP/BRGM/ADEME)	26
1.5	Représentation schématique des trois principales techniques de captage du CO_2 . Extrait du	
	rapport 2005 du GIEC	27
1.6	$Représentation\ schématique\ des\ principales\ formations\ géologiques\ envisagées\ pour\ stocker\ du$	
	CO_2 . Modifié d'après le site http://chercheurs.edf.com/	28
2.1	Représentation schématique du concept de tortuosité. Extrait de Giunta2015	42
2.2	Evolution de la résistivité électrique en fonction de la saturation pour différents types de sol.	
	(Extrait de Samouëlian et al. (2005))	45
2.3	Représentation schématique d'un prisme droit à base carrée de section A traversé d'un courant	
	d'intensité I	47
2.4	Schéma d'un dispositif classique (Schlumberger) utilisé pour la mesure de la résistivité élec-	
	trique d'un sol. Approximation du sol à un demi-espace homogène infini et isotrope. Les élec-	
	trodes nommées A et B sont utilisées pour l'injection de courant d'intensité I, et les électrodes	
	M et N mesurent la différence de potentiel ΔV	48
2.5	Distribution du potentiel généré par une injection à une seule source de courant dans un espace	
	homogène et isotrope. Le courant circule radialement. Les équipotentielles sont normales aux	
	lignes de courant. L'approximation une seule source d'injection (en C1) est représentée en	
	plaçant à l'infini l'électrode C2 qui ferme le circuit. Modifié d'après Chouteau and Giroux (2006).	48

2.6	Distribution du potentiel généré par une seule source de courant située à la surface d'un demi-	
	espace infini, homogène et isotrope. Extrait de Chouteau and Giroux (2006).	51
2.7	Schéma de principe de l'acquisition d'une pseudo-section de résistivité apparente le long d'un	
	profil longitudinal. La profondeur d'investigation augmente avec l'écartement des électrodes.	
	Le point de mesure de résistivité apparente est reporté par convention au centre du quadripôle	
	ABMN	53
2.8	Géométrie d'électro des pour le dispositif Wenner. $\hfill \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots$	54
2.9	Géométrie d'électro des pour le dispositif Wenner -Schlumberger, n est un nombre entier. $\ .$ $\ .$	54
2.10	Géométrie d'électro des pour le dispositif dipôle-dipôle, n est un nombre entier . $\ .$	54
2.11	Représentation schématique de la variation de potentiel induite par une variation de résistivité	
	dans un volume infinitésimal	55
2.12	Représentation des valeurs de la fonction de sensibilité pour les dispositifs Wenner, Wenner-	
	Schlumberger et dipôle-dipôle. Extrait de Roy and Apparao (1971)	56
2.13	Illustration de l'augmentation de la profondeur d'investigation avec l'écartement des électrodes.	
	Exemple d'un milieu homogène et isotrope.	57
2.14	Illustration de la distortion des lignes de courant à l'interface d'un milieu tabulaire. Extrait de	
	Chouteau and Giroux (2006)	58
2.15	Courbe NDIC pour un dispositif d'électrode Wenner. 1 : Le maximum de la courbe nous donne	
	la profondeur d'investigation selon Roy (1972). 2 : Profondeur d'investigation effective selon	
	Edwards (1977). Extrait de Placencia (2004).	58
2.16	a) Photo représentant le résistivimètre « Terrameter SAS 1000 » et le multiplexeur 64 canaux	
	« ES-1064 » (ABEM) lors d'une utilisation sur le terrain. b)représentation d'un cycle de mesure.	59
2.17	Exemple d'application de l'option « exterminate bad datum points » du logiciel $\operatorname{Res2DInv}$. Le	
	diagramme a) montre la distribution initiale des points d'acquisition et leur répartition latérale	
	et en profondeur. Des fluctuations sur une ligne de niveau indique des disparités prononcées	
	entre deux mesures de résistivité voisines. On supprimer alors certains points afin de rendre le	
	diagramme le plus lisse possible, à chaque niveau (diagramme b)).	60
2.18	Modèle de double couche électrique. M représente les cations adsorbés à la surface du minéral et	
	en concentration majoritaire dans la couche diffuse, et A représente les anions. Si l'on considère	
	le plan β qui subdivise la couche de Stern en deux sous-couches, on est dans le cas d'un modèle	
	de triple couche électronique (c.f. Leroy and Revil (2004)). Extrait de Blondel (2014).	66
2.19	Représentation schématique du phénomène de polarisation d'électrode (ou polarisation métal-	
	lique). Modifié d'après Chouteau and Giroux (2006)	67
2.20	Représentation schématique de la polarisation de la double couche électrique dans le cas d'un	
	grain en suspension dans un électrolyte. Modifié d'après Revil and Florsch (2010)	69
2.21	Représentation schématique de la polarisation de de membrane. Sous l'action d'un champ	
	électrique \mathbf{E} , la différence de mobilité des anions et cations dans la zone où les couches diffuses	
	de chaque grain se chevauchent provoque une accumulation de charges de part et d'autre de	
	cette zone sélective. Extrait de Vaudelet (2011).	70

2.22	Modèle électrique de Maxwell représentant un milieu composé de deux diélectriques d'épaisseur	
	d_1 et d_2 , de conductivité σ_1 et σ_2 et de permittivités diélectriques ε_1 et ε_2 . Modifié d'après	
	Comparon (2005)	71
2.23	Modèle électrique de Maxwell représentant un milieu composé de deux diélectriques d'épaisseur	
	d_1 et d_2 , de conductivité σ_1 et σ_2 et de permittivités diélectriques ε_1 et ε_2 . Extrait de Comparon	
	$(2005). \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots $	72
2.24	Représentation schématique de la formation d'une double couche électrique à l'interface élec-	
	trode/électrolyte lors de l'application d'un champ électrique. Extrait de Ishai et al. (2013)	75
2.25	Principe d'acquisition d'un mesure en polarisation provoquée temporelle. Lors d'une injection	
	${\rm de \ courant \ en \ créneaux, \ on \ \acute{e}tudie \ la \ forme \ de \ la \ courbe \ de \ décroissance \ du \ potentiel \ secondaire}$	
	V_s . Modifié d'après Blondel (2014)	80
2.26	Principe de mesure de la chargeabilité apparente intégrée	81
2.27	a) Exemple de la mise en place d'une électrode sur le terrain. b) Représentation schématique	
	du mode de fabrication des électro des impolarisables $\rm Cu/CuSO_4$ utilisées pour les mesures de	
	PPT sur le terrain. Modifié d'après Ghorbani (2007)	84
2.28	Exemples de courbes de décroissance observables sur une jeu de données de chargeabilité	
	partielles. Les courbes présentant des comportements anormaux (en rouge) sont supprimées	
	du jeu de données. Extrait de Blondel (2014).	85
2.29	Exemple d'un profil de résistivité (en haut) et de chargeabilité M_0 (en bas), obtenu après	
	inversion par Gazoty et al. (2012). La couche de déchets enfouis est bien localisée dans la zone	
	attendue. Elle est caractérisée par de plus hautes valeurs de chargeabilité M_0 , qui permettent	
	également d'estimer son épaisseur. Extrait de Gazoty et al. (2012)	86
2.30	Extrapolation des concentrations en benzène et éthylène dibromure (EDB) basé sur les mesures	
	in-situréalisées dans les puits de surveillance GMW30, GMW32 et GMW33, mis en place dans	
	les années 1990 par le DOE ("Departement of Energy"). Extrait de Sogade et al. (2006)	87
2.31	Extrapolation des concentrations en benzène et éthylène dibromure (EDB) basé sur les mesures	
	in-situréalisées dans les puits de surveillance GMW30, GMW32 et GMW33, mis en place dans	
	les années 1990 par le DOE ("Departement of Energy"). Extrait de Sogade et al. (2006)	88
2.32	Principe d'acquisition d'une mesure en PPS. Le décalage temporel entre le signal injecté et le	
	signal de mesure Δt , rapporté à leur fréquence angulaire ω permet de calculer le déphasage	
	$\phi,$ et le rapport des amplitudes des 2 signaux permet d'accéder à la résistivité apparente du	
	milieu (après correction par le facteur géométrique), que l'on définit comme l'amplitude du	
	signal PPS . Modifié d'après Blondel (2014)	89
2.33	Cette figure présente deux façons possibles de représenter les spectres fréquentiels pour les	
	données de PPS. a) résistivité et phase. b) Conductivités réelle et imaginaire. c) Diagramme	
	d'Argand. Les données représentées ici ne sont pas issues de mesures réelles, elles correspondent	
	aux valeurs calculées en appliquant le modèle Cole-Cole (voir section $2.5.2$), un modèle bien	
	connu, utilisé pour décrire les réponses en permittivité ou en conductivité complexes. Extrait	
	de Ghorbani (2007)	91

2.34	Effet du coefficient α sur les spectres fréquentiels de permittivité. Comparaison des spectres de permittivité obtenus à partir des modèles de Debye et Cole-Cole pour une fréquence de	
	relaxation égale à 10 Hz, et des permittivité diélectriques $\varepsilon_s = 1000 \text{ F.m}^{-1}$ et $\varepsilon_{\infty} = 30 \text{ F.m}^{-1}$.	
	Le coefficient α du modèle Cole-Cole est pris égal à 0,5. On observe bien la dispersion des	
	valeurs autour de la fréquence de relaxation. Modifié d'après Kessouri (2012)	93
2.35	Comparaison des spectres de permittivité obtenus à partir les modèles de relaxation Cole-Cole,	
	Davidson-Cole, et Cole-Cole généralisé pour des valeurs de α et β égales à 0,6, une fréquence	
	de relaxation égale à 10 Hz, et des permittivité diélectriques $\varepsilon_s = 1000 \text{ F.m}^{-1}$ et $\varepsilon_{\infty} = 30$	
	$F.m^{-1}$. Modifié d'après Kessouri (2012)	94
2.36	a) Exemple de spectres de résistivité et de phase pour le modèle à phase constante. b) Re-	
	présentation en diagramme d'Argand. Les paramètres du modèle utilisés sont donnés dans les	
	rectangles noirs.	95
2.37	Représentation schématique du processus itératif appliqué au calcul de la permittivité effective	
	d'un milieu diphasique. Inclusions d'une phase α de permittivité $(\varepsilon_r)_{\alpha}$ dans un milieu hôte	
	(phase γ) de permittivité $(\varepsilon_r)_{\gamma}$. Modifié d'après Cosenza et al. (2003)	97
2.38	Représentation schématique des 4 dispositifs de câbles étudiés par Schmutz et al. (2014). Le	
	dispositif rectangle a été testé pour 2 distances unité d'acquisition / ligne de mesure différentes.	
	Extrait de Vaudelet (2011)	99
2.39	Spectres de déphasage modélisés et mesurés sur le terrain pour une configuration Schlumberger	
	(distance entre les électrodes d'injection $AB = 16$ m, distance entre les électrodes de mesures	
	MN = 8 m), pour les différents dispositifs de câbles de la figure 2.38. Les erreurs de mesures	
	sont plus petites que la taille des symboles. Extrait de Vaudelet (2011).	99
2.40	Représentation de la conductivité imaginaire versus la conductivité réelle à la fréquence pour	
	laquelle la phase apparente est maximale. On distingue des groupes de points correspondants	
	aux différentes structures et types de fractures. Extrait de Schmutz et al. (2011).	101
2.41	Cartographie des valeurs des paramètres Cole-Cole inversés. Les zones impliquant des fractures	
	remplies d'argiles se distinguent par des hautes valeurs des paramètres Cole-Cole. Modifié	
	d'après Schmutz et al. (2011)	101
2.42	Représentation des paramètres PPS inversés pour le premier cas d'étude. a) Conductivité	
	réelle. b) Conductivité imaginaire. c) Phase. Les valeurs de conductivité imaginaire et de phase	
	permettent une meilleur caractérisation des variations lithologique de la sub-surface. Extrait	
	de Kemna et al. (2004).	102
2.43	Représentation des paramètres PPS inversés pour le deuxième cas d'étude. a) Conductivité	
	réelle. b) Conductivité imaginaire. c) Phase. La distribution des valeurs de phase présente une	
	anomalie nette dans la zone envahie par des hydrocarbures, alors que les valeurs de $\sigma^{'}$ et $\sigma^{''}$	
	sont similaires. Extrait de Kemna et al. (2004).	103
21	Désenvoir auliphique instrumenté de CO électre des Us surt à la	
J.I	le fond du réservoir permet l'injection de car par le dessous. Extrait de Vieire (2012)	107
	To tong du reservoir permet i injection de gas par le dessous. Extrait de viena (2013).	TOI

3.2	Schéma du réservoir représentant la disposition des électrodes. Chaque cercle de 6 électrodes	
	est défini comme un plan numéroté de 1 à 10. Extrait de Vieira (2013)	108
3.3	a) Diffuseur fixé sur son support en plastique. b) Diffuseur placé entre les plans 8 et 10 lors du	
	remplissage. Extrait de Vieira (2013).	108
3.4	Imbibition du milieu par le bas de la cuve. On observe l'apparition de figures de stratification	
	du sable. Extrait de Vieira (2013)	109
3.5	Configurations d'électrodes : a) configuration bipôle-bipôle. b) configuration dipôle-dipôle. c)	
	configuration Wenner-Schlumberger. AB : injection du courant. MN : mesure du potentiel.	
	Extrait de Vieira (2013)	110
3.6	Représentation schématique des configurations d'électrodes composant le protocole "cross-	
	rods". En bleu le dipôle d'injection de courant, en rouge le dipôle de mesure de potentiel. Pour	
	un dipôle d'injection fixé, il existe 5 combinaisons possibles. Extrait de Vieira (2013). \ldots .	110
3.7	Schéma de fonctionnement du problème direct.	111
3.8	Schéma de fonctionnement du problème inverse	111
3.9	Comparaison entre résistances mesurées et modélisées avec les quatres protocoles. a,b : Wenner-	
	$\label{eq:schumberger.cd} Schlumberger.~c,d:~bipôle-bipôle.~e,f:~dipôle-dipôle.~g,h:~configuration~"Cross-rods".~Sur~label{eq:schumberger.cd}$	
	colonne de gauche on observe les valeurs de résistance modélisée (en gris) et mesurées (en	
	noir) pour chaque quadripôle de mesure, la colonne de droite représente la corrélation entre	
	les valeurs mesurées et modélisées. Extrait de Vieira (2013)	113
3.10	Distribution de résistivités obtenue après inversion des résistances mesurées sur le réservoir cy-	
	lindrique rempli d'eau de résistivité 21,3 Ω .m, à 18°C, pour le protocole Wenner-Schlumberger.	
	Extrait de Vieira (2013)	114
3.11	Distribution de résistivités obtenue après inversion des résistances mesurées sur le réservoir	
	cylindrique rempli d'eau de résistivité 21.3 $\varOmega.\mathrm{m},$ à 18°C, pour le protocole cross-rods. Extrait	
	de Vieira (2013)	114
3.12	Injection de N_2 dans un sable de Fontainebleau - Résultats des processus d'inversion. a) diffé-	
	rence inversion, b) ratio inversion. Extrait de Vieira (2013)	116
3.13	Injection de CO_2 dans un sable de Fontainebleau - Résultats des processus d'inversion. a)	
	différence inversion, b) ratio inversion. Extrait de Vieira (2013)	117
3.14	Inversion simple des mesures effectuées sur l'état post-injection de $\rm N_2$ dans du sable carbonaté.	
	On observe une augmentation nette de la résistivité dans la partie centrale du réservoir. Extrait	
	de Vieira (2013)	118
3.15	Résultats des inversions de l'état post-injection de $\rm N_2$ dans du sable carbonaté par la méthode	
	ratio (à gauche) et par différence (à droite). L'injection de N_2 entraı̂ne une augmentation de	
	la résistivité. Extrait de Vieira (2013)	118
3.16	Inversion simple des mesures effectuées sur l'état post-injection de CO_2 dans du sable carbo-	
	naté. On observe une diminution nette de la résistivité dans la partie centrale du réservoir	
	(jusqu'à 10 Ω .m). Extrait de Vieira (2013)	120

3.17	$R\acute{e}sultats \ des \ inversions \ de \ l'\acute{e}tat \ post-injection \ de \ CO_2 \ dans \ du \ sable \ carbonat\acute{e} \ par \ la \ m\acute{e}thode$	
	ratio (à gauche) et différence (à droite). On observe dans les 2 cas une nette diminution de la	
	résistivité. Extrait de Vieira (2013)	120
3.18	Schéma de principe de la technique de bullage $in-situ$ appliquée à la remédiation des sols	
	$({\rm Extrait~de:D\acute{e}pollution,~Quelles~techniques~pour~quels~traitements-Analyse~coûts~/~b\acute{e}n\acute{e}fices$	
	- Rapport Final BRGM/RP - 58609 - FR Juin 2010)	123
3.19	Types de circulation d'air en milieu saturé en fonction de la taille moyenne des grains (Modifié	
	d'après Brooks et al. (1999))	124
3.20	Vue isométrique de la matrice parallélépipédique. Les cellules vertes sont celles auxquelles on	
	a assigné la valeur 1 et qui représentent la discrétisation effective du milieu d'étude. \ldots . \ldots	126
3.21	Schéma de principe du fonctionnement du modèle. Les vue isométriques présentées ici sont	
	des distributions de valeurs aléatoires, non le résultat d'une simulation. Les valeurs des axes	
	$correspondent \ aux \ coordonn \acute{e} es \ matricielles \ (i,j,k), \ et \ sont \ interpr \acute{e} t \acute{e} es \ coordonn \acute{e} es$	
	cartésiennes (x,y,z) en cm	127
3.22	Logiciel Gmsh. a) Construction de la géométrie du réservoir. Le cylindre fait 75 cm de hauteur	
	et 48 cm de diamètre. Les 60 points représentant les électrodes sont situés à l'intérieur du	
	cylindre, à une distance de 2,5 cm de la paroi, conformément à Vieira (2013). b) Visualisation	
	du maillage tétraèdrique généré avec Gmsh. La longueur caractéristique l_c des éléments est	
	modifiable dans le logiciel (ici $l_c = 2$)	128
3.23	Visualisation sous Paraview d'une distribution de résistivités homogène préalablement généré	
	sous matlab. Les sphères blanches indiquent la position des électrodes. \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots	129
3.24	Modélisation du diffuseur par assignation de résistivités élevées. a) Coupe horizontale à la	
	hauteur z = 23 cm. b) Coupe verticale dans l'axe du cylindre (distance x = 24 cm) $\ \ . \ . \ .$	130
3.25	Représentation de l'écart entre les valeurs absolues des résistances modélisées et des résistances	
	mesurées pour les expériences avec le sable de Fontaine bleau totalement saturé. a) Les para-	
	mètres de la loi d'Archie sont fixes : $m=1,55,~\phi=0,38$ et $\rho_f=8,26~\varOmega.m.$ L'écart moyen	
	augmente nettement avec le numéro de la mesure (i.e la profondeur). b) La valeur du facteur	
	de cimentation m varie linéairement avec la hauteur (voir figure 3.26). \ldots \ldots \ldots \ldots	133
3.26	Evolution retenue de la valeur du facteur de cimentation m en fonction de la hauteur z dans	
	le réservoir cylindrique. L'évolution est linéaire entre les hauteurs $z_1 = 1$ cm et $z_2 = 58$ cm	133
3.27	Représentation de l'écart entre les valeurs absolues des résistances modélisées et des résistances	
	$mesur{\'es} \ pour \ les \ exp{\'eriences} \ avec \ le \ sable \ carbonat{\'e.} \ a) \ Les \ paramètres \ de \ la \ loi \ d'Archie \ sont$	
	fixes : m = 1,55, ϕ = 0,45 et ρ_f = 15,15 $\varOmega.{\rm m.}$ L'écart moyen augmente nettement avec le	
	numéro de la mesure (i.e la profondeur). b) La valeur du facteur de cimentation m varie	
	linéairement avec la hauteur.	135

3.28	Visualisation sous Paraview des résultats de l'inversion des résistances mesurées (a) et modé-	
	lisées (b) à l'état 0, pour les expériences avec le sable de Fontainebleau. On montre des coupes	
	verticales du cylindre le long de l'axe y. L'échelle de couleur est choisie de telle sorte que la	
	transition grise entre bleu et rouge corresponde à la valeur maximale de résistivité calculée	
	dans le modèle (en excluant les hautes valeurs de résistivité qui représentent le diffuseur.)	136
3.29	Approximation de la géométrie des chemins de circulation du gaz, modifié d'après Selker et al.	
	(2007). L'extrémité hémisphérique du cylindre produit une force de flottabilité F_B , qui s'oppose	
	à la force de restriction F_S induite par la pression capillaire des pores supérieurs. \ldots \ldots	138
3.30	Distribution de résistivités obtenue après inversion des mesures lors d'une injection de gaz.	
	a.1) Injection de N_2 dans du sable de Fontainebleau, inversion par différence. a.2) Injection de	
	$\rm CO_2$ dans du sable de Fontainebleau, inversion par différence. b) Injection de $\rm N_2$ dans du sable	
	carbonaté. Inversion simple.	140
3.31	Panaches de forme parabolique observés lors de l'injection d'air dans un réservoir 2D rempli	
	de sable totalement saturé en eau, pour différentes pressions et débits d'injection. (Modifié	
	d'après Selker et al. (2007)).	141
3.32	Représentation schématique de la répartition gaussienne des chemins préférentiels. Modifié	
	d'après Selker et al. (2007). En noir : les chemins de circulation, en bleu : la distribution de	
	densités associée	142
3.33	Illustration photographique (a) et schématique (b) d'une chambre d'accumulation du gaz lors	
	d'une expérience de bullage in -situ (air sparging) en laboratoire. On observe bien la composante	
	principale horizontale caractéristique de la zone. Modifié d'après Peterson et al. (2001)	143
3.34	Exemple de zones de désaturation observées lors des expériences en laboratoire décrites au	
	chapitre 3. Dans une zone décimétrique située immédiatement au dessus du diffuseur, le gaz	
	forme une chambre d'accumulation aussi large que le cylindre.	143
3.35	Schéma de l'environnement d'une cellule de coordonnées matricielles (i,j,k) et des possibilités	
	de mouvement du gaz	144
3.36	Modélisation de la circulation du gaz sous la forme d'un panache parabolique pour différentes	
	valeur de la probabilité P_{H} . La simulation de l'injection génère 300 chemins de circulation du	
	gaz. L'échelle de couleur désigne le nombre de chemins de circulation qui passent dans chaque	
	cellule	145
3.37	Répartition latérale des chemins de circulation du gaz pour une probabilité $P_H = 0, 7$. A partir	
	d'un coupe verticale parallèle à l'axe des x, on somme le nombre de chemins passant par les	
	cellules situées à chaque abcisse. On fait de même avec une coupe verticale parallèle à l'axe	
	des y. On représente la moyenne des 2	145
3.38	Représentation de l'évolution de la probabilité P_H en fonction de la position verticale du chemin	
	dans le réservoir.	146

- 3.39 a) Modélisation de la circulation du gaz sous la forme d'une chambre d'accumulation. L'échelle de couleur dénombre le nombre de chemins de circulation passant par chaque cellule. Par souci de clarté, pour un nombre supérieur ou égal à 4, la couleur reste la même. b) Histogramme du nombre total de chemins traversant chaque section horizontale. On observe bien la forte 3.40 Modélisation de la circulation de gaz sous forme d'une chambre d'accumulation. a) Assignation d'une saturation en gaz S_g fixe aux cellules traversées par un chemin de circulation (ici $S_g =$ (0,4). b) Etat de la saturation en air du modèle après lissage des valeurs. \ldots \ldots \ldots 1493.41 Modélisation de la circulation de gaz sous forme d'un panache parabolique. a) Assignation d'une saturation en gaz S_g fixe aux cellules traversées par un chemin de circulation (ici $S_g = 0, 4$). 3.42 Distribution de résistivités obtenue après modélisation de la circulation de gaz avec chambre d'accumulation. Les paramètres du modèles utilisés sont ceux relatifs aux expériences avec le sable de Fontainebleau. a) Coupe verticale, b) section horizontale à la hauteur $z = 70 \ cm$, c) z = 55 cm, d) z = 40 cm, e) z = 35 cm. Les sections b), c) et d) sont présentées selon une vue isométrique et la section e) selon une vue de dessus. \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots 1503.43 Distribution de résistivités obtenue après modélisation de la circulation de gaz en panache parabolique. Les paramètres du modèles utilisés sont ceux relatifs aux expériences avec le sable carbonaté. a) Coupe verticale, b) section horizontale à la hauteur z = 70 cm, c) z = 55 cm, d) $z = 40 \ cm$, e) $z = 35 \ cm$. Les sections b), c) et d) sont présentées selon une vue isométrique 3.44 Résultats de l'inversion simple des résistances de l'état initial et de l'état post-injection issus du modèle cellulaire pour la modélisation des expériences avec le sable de Fontainebleau (circulation du gaz avec chambre d'accumulation). L'injection de gaz induit la formation d'une anomalie de résistivité positive dans la partie basse du réservoir. 1523.45 Modélisation des expériences avec le sable de Fontainebleau. Comparaison entre les résultats d'inversion de l'état initial et de l'état post-injection des données issues : a.1) et a.2) des expériences en laboratoire (injection de N_2 et de CO_2 , inversion par différence) et b) du modèle. L'amplitude et la forme de l'anomalie de résistivité correspondent bien, l'extension 3.46 Modélisation des expériences avec le sable carbonaté. Comparaison entre les résultats d'inversion (simple) de l'état initial et de l'état post-injection pour le sable carbonaté : a) issus du modèle et b) issus des expériences en laboratoire. L'amplitude et la position de l'anomalie de résistivité correspondent bien. La forme parabolique n'est pas reproduite exactement à l'identique. 3.47 Représentation schématique d'un plan. Les 6 électrodes sont disposées autour du cylindre et 3.48 Représentation schématique des 8 classes de configurations d'électrodes. $\ldots \ldots \ldots 155$
 - 413

3.49	Représentation de la valeur absolue des résistances mesurées avec le protocole cross-rods sur	
	un milieu homogène. Les 45 premières valeurs correspondent aux résistances mesurées dans le	
	plan d'électrodes situé au plus haut de la cuve ($Z = 68$ cm), les 45 suivantes correspondent	
	au plan suivant ($Z = 63$ cm), et ainsi de suite de 5 cm en 5 cm jusqu'au dernier plan à la	
	hauteur $Z = 28$ cm. On observe une nette répartition des valeurs en fonction des classes de	
	configurations d'électrode, i.e., des coefficients géométriques K associés	156
3.50	Principe de base de l'étude de sensibilité : a) Génération d'un milieu homogène de résistivité	
	25 $\varOmega.\mathrm{m,~b})$ inclusion d'un cylindre de diamètre 8 cm positionné au centre de la cuve, et de	
	résistivité 100 Ω .m. On compare les résistances obtenues après résolution du modèle direct	
	pour les deux distributions de résistivité.	157
3.51	Cartographie de la sensibilité de mesure pour la configuration d'électrode de la classe 1. A	
	chaque cylindre est assignée une couleur qui correspond à la variation relative de résistance pour	
	cette géométrie d'électrode. Les positions des électrodes de mesure $(P + et P -)$ et d'injection	
	$(\mathrm{C+~et~C}\text{-})$ sont indiquées en blanc	158
3.52	Cartographie de la sensibilité de mesure pour les classes 1 à 8. Les couleurs les plus chaudes	
	représentent les valeurs de sensibilité élevées et les couleurs froides les sensibilités faibles	159
3.53	Distribution de résistivités de base utilisée pour les différents tests de protocole. Inclusion	
	d'un objet en croix de résistivité 100 $\Omega.m$ dans un milieu de résistivité 25 $\Omega.m.$ a) Distribution	
	générée à partir du modèle cellulaire. b) Visualisation d'un coupe isométrique de la distribution	
	de résistivités avec Paraview, le maillage utilisé est celui implémenté dans R3T (élements $% \left({{{\left({{{{\left({{{}}}}} \right)}}}}\right.$	
	tétraédriques). L'interpolation entre le maillage cellulaire et le maillage tétraédrique entraîne	
	l'apparition de quelques éléments de résistivité intermédiaire (verts), dont l'existence est sans	
	conséquence sur le résultat de l'inversion.	162
3.54	Représentation de la distribution de résistivités dans le réservoir selon une coupe verticale.	
	a) Distribution initiale de résistivité générée avec le modèle cellulaire, puis interpolée selon le	
	maillage tétraédrique de R3T. b) Distribution de résistivités obtenue après calcul du modèle	
	direct et inversion des résistances avec R3T pour le protocole "cross-rods" entier. \ldots .	163
3.55	Test 1 : Représentation des résultats d'inversion pour le protocole "cross-rods" et les 8 pro-	
	tocoles "cross-rods sans classe". L'échelle de résistivité est réglée sur les valeurs maximales et	
	minimales obtenues après inversion avec le protocole "cross-rods" entier. \ldots	164
3.56	Représentation schématique de la déclinaison de deux configurations issues du protocole cross-	
	rods (toutes les électrodes sont situées dans le même plan) en 9 configurations inter-plan. $\ . \ .$	165
3.57	$Test \ 2: représentation \ des \ résultats \ d'inversion \ pour \ le \ protocole \ "cross-rods" \ et \ les \ 8 \ protocoles$	
	"cross-rods + toutes les combinaisons inter-plans de chaque classe". L'échelle de résistivité est	
	réglée sur les valeurs maximales et minimales obtenues après inversion avec le protocole "cross-	
	rods" entier	166
3.58	$Test \ 3: représentation \ des \ résultats \ d'inversion \ pour \ le \ protocole \ "cross-rods" \ et \ les \ 8 \ protocoles$	
	"inter-plans seuls". L'échelle de résistivité est réglée sur les valeurs maximales et minimales	
	obtenues après inversion avec le protocole "cross-rods" entier	167

3.59	Test 4.1 : résultats des processus d'inversion pour des protocoles combinant les classes 3, 6	
	et 8. L'échelle de résistivité est réglée sur les valeurs maximales et minimales obtenues après	
	inversion avec le protocole "cross-rods" entier	169
3.60	${\rm Repr{\acute{e}sentation}\ sch{\acute{e}matique}\ du\ protocole\ inter-plan\ et\ du\ protocole\ interp-plan\ compartiment{\acute{e}.}}$	
	Les cercles noirs représentent la disposition des électrodes autour de la cuve. a) Protocole inter-	
	plan total : une mesure effectuée dans le plan 1 (ex traits bleus) est ensuite déclinée en 9 autre	
	mesures pour lesquelles une électrode de mesure et une électrode d'injection seront situées dans	
	un autre plan d'électrodes. b) Protocole inter-plan compartimenté : les 10 plans d'électrodes	
	sont répartis en trois groupes qui se chevauchent. Ainsi, une mesure dans un plan (ex trait	
	bleu) n'est plus déclinée qu'en 4 nouvelles mesures	170
3.61	Comparaison entre les résultats de l'inversion de la distribution de résistivités en croix pour :	
	a) le protocole "cross-rods" (450 mesures), b) le protocole "ensemble inter-plans classe 3 et	
	$6"$ (900 mesures) et c) le protocole "ensemble inter-plans classe 3 et 6 $\mathit{compartiment\'e}"$ (576	
	mesures)	170
3.62	Rappel des résultats obtenus au test 2. Extrait de la figure 3.57. Les protocoles "cross-rods $+$	
	inter-plans" de la classe 6 (a) et 8 (b) améliorent respectivement la sensibilité horizontale et	
	verticale du dispositif de mesure	171
3.63	Comparaison entre le protocole cross-rods et les trois protocoles aléatoires donnant les meilleurs	
	résultats au "test de la croix". L'échelle de résistivité est calée sur les valeurs maximales et	
	minimales obtenues avec le protocole PA3	172
3.64	Comparaison entre le protocole cross-rods et les trois protocoles aléatoires donnant les meilleurs	
	résultats au "test de la croix" pour les protocoles aléatoires contraints. L'échelle de résistivité	
	est calée sur les valeurs maximales et minimales obtenues avec le protocole PA3	174
3.65	Résultats de l'inversion pour les 4 différents protocoles appliqués à une distribution de résisti-	
	vités en forme de croix, décentrée par rapport à l'axe de rotation du cylindre. Les protocoles	
	alternatifs propose essentiellement une meilleure restitution de la partie horizontale de la croix.	175
3.66	Résultats de l'inversion pour les 4 différents protocoles appliqués à une distribution de résisti-	
	vités incluant un parallélépipède diagonal de haute résistivité. Pour le protocole "cross-rods"	
	(b), on peut observer l'apparition d'artefacts créés lors du processus d'inversion	175
3.67	Résultats de l'inversion pour les 4 différents protocoles appliqués à une distribution de résistivi-	
	tés issue de la modélisation d'une circulation de gaz en forme de chambre d'accumulation. Les	
	3 protocoles alternatifs restituent mieux la forme et la position de la chambre d'accumulation,	
	et présentent des valeurs de résistivité plus proches de la distribution initiale que le protocole	
	"cross-rods"	176

3.68 Résultats de l'inversion pour les 4 différents protocoles appliqués à une distribution de résistivités issue de la modélisation d'une circulation de gaz en panache parabolique. Dans ce cas, c'est le protocole "cross-rods" qui donne les meilleurs résultats. La forme du panache parabolique est légèrement mieux restituée par les protocoles alternatifs, mais les valeurs de résistivité de la distribution intitiale (a) sont nettement mieux reproduites lorsqu'on utilise le protocole 4.1Représentation schématique de la cuve cylindrique instrumentée. Les électrodes de mesure et d'injection sont mises en contact avec le milieu par l'intermédiaire de trous filetés, dans un plan horizontal localisé à la hauteur z = 21 cm. La surface du diffuseur est située à la hauteur $z = 5 \ cm$. L'arrivée du gaz vers le diffuseur se fait par le dessous de la cuve. 4.2a) Réservoir rempli avec du sable de Fontainebleau totalement saturé en eau. b) Vue du dessus 4.3183Photo illustrant la disposition des différents éléments qui composent le système expérimental. 4.4183Photo représentant la chaîne d'acquisition mise en place pour l'utilisation du SIP FUCHS III. 4.5a) Schéma en coupe d'une électrode impolarisable. b) Vue éclatée des éléments qui composent une électrode. c) Electrode assemblée et remplie avec la solution sur-saturée en sulfate de cuivre. 186 4.64.74.8a) Photo du petit dispositif rempli d'eau et instrumenté de quatre électrodes en inox. b) Représentation schématique de la configuration d'électrodes utilisée. P+ et P- marquent la position des électrodes de mesure du potentiel, et C+ et C- celle des électrodes d'injection du courant. Chaque dipôle forme un angle de 90° avec le centre du réservoir cylindrique. 189 4.9a) Photo du grand dispositif utilisé lors des expériences d'injection de gaz, rempli d'eau, et instrumenté de quatre électrodes impolarisables. b) Représentation schématique de la configuration d'électrodes utilisée. P+ et P- marquent la position des électrodes de mesure du potentiel, et C+ et C- celle des électrodes d'injection du courant. Chaque dipôle forme un 4.10 Valeurs du déphasage et de la résistivité mesurées sur un milieu composé de sable de Fontainebleau saturé en eau pour 3 valeurs de conductivité électriques de l'eau saturante : a) Phase à la fréquence 1 Hz. b) Phase à la fréquence 12 kHz. c) Résistivité à la fréquence 1 Hz. d) Résistivité à la fréquence 12 kHz. Pour le graphique a), les barres d'erreur ont été réduites d'un facteur 10 pour plus de visibilité. Pour le graphique b) les barres d'erreur sont celles calculées par l'appareil de mesure. L'absence de barres d'erreurs signifie que les erreurs calculées par l'appareil de mesure sont plus faibles que la dimension des points du graphique. Remarque *importante :* Les barres d'erreur représentées ici sont issues d'un calcul propre à l'appareil de mesure SIP FUCHS III. Il a été montré lors d'études comparatives avec d'autres appareils de mesure de PPS que ces erreurs étaient largement sur-estimées (Weller et al., 2011c). Il faut

4.11	Histogramme représentant la distribution granulométrique du sable carbonaté, en terme de	
	pour centage massique. Tous les grains ont un diamètre inférieur à 400 $\mu m.$	198
4.12	Schéma de fonctionnement du macro-perméamètre. (1) Réservoir d'eau douce pour la mesure	
	de la porosité. (2) Réservoir d'eau douce pour la mesure de la perméabilité à l'eau. (3) réservoir	
	d'eau salée pour effectuer des déplacements miscibles.	199
4.13	Assemblage d'un échantillon. a) Electrodes cylindriques en inox pour les mesures électriques.	
	Les deux petits trous situés sur la tranche du cylindre permettent le branchement des câbles	
	d'injection et de mesure sur les électrodes. b) Assemblage du cylindre plastique avec une	
	des deux électrodes. c) Injection de silicone dans les jointures. d) Plaques métalliques avant	
	assemblage. e) Bouchon en PVC. Le raccord en plastique blanc permet de relier la cellule de	
	fixation au circuit de mesure.	200
4.14	Résultats des mesures de perméabilité réalisées avec le macro-perméamètre pour 2 échantillons $% \mathcal{L}^{(n)}$	
	de sable de Fontainebleau.	203
4.15	Illustration du principe d'un déplacement miscible. À droite, exemple d'une courbe d'évolution	
	de σ_r en fonction du volume d'eau saline injectée. A gauche, représentation schématique des	
	trois stades du déplacement miscible correspondant aux trois zones de la courbe. Extrait de	
	Clavaud (2001)	204
4.16	a) Exemple d'une progression du fluide sous forme d'un front homogène. b) Exemple d'une	
	progression selon un chemin préférentiel. Modifié d'après Clavaud (2001)	205
4.17	Evolution de la conductivité électrique de l'échantillon de sable de Fontainebleau en fonction	
	du volume d'eau saline injecté. Le seuil de percolation électrique survient aux alentours de	
	$V_{inj} \approx 0,65 \text{ L}.$	206
4.18	Evolution du débit d'injection de gaz au cours des expériences	209
4.19	Photo du réservoir rempli de sable carbonaté. Le sable est immergé pendant toute la procédure	
	${\rm de\ remplissage, \ a\ la\ fin\ de\ laquelle\ on\ retire\ la\ couche\ d'eau\ restante\ a\ l'aide\ d'une\ pompe\ manuelle\ de\ remplissage\ allow and all$.210
4.20	Photo d'un appareil d'analyse en chromatographie ionique utilisé pour les mesures des concen-	
	trations en espèces dissoutes sur les prélèvements d'eau effectués lors des expériences. $\ . \ . \ .$	212
4.21	Spectres de résistivité et de phase mesurés dans la gamme de fréquences $[0,05~{\rm Hz}$ - $20~{\rm kHz}]$ pour	
	le sable de Fontaine bleau et le sable carbonaté totalement saturés en eau de conductivité $\sigma_f=$	
	400 μ S.cm ⁻¹ , avant l'injection de gaz. Les barres d'erreur sont celles calculées par l'appareil.	
	L'absence de barre d'erreur signifie que l'erreur est plus petite que la taille du symbole. $\ . \ .$	213
4.22	Spectres fréquentiels des parties réelle et imaginaire de la conductivité complexe, mesurés	
	avant l'injection de gaz sur le sable de Fontainebleau et le sable carbonaté totalement saturés	
	en eau de conductivité $\sigma_f = 400 \ \mu S.cm^{-1}$. Les acquisitions sont effectuées dans la gamme de	
	fréquences $0,05~{\rm Hz}-20~{\rm k}$ Hz. L'absence de barre d'erreur signifie que l'erreur est plus petite	
	que la taille du symbole. Certaines barres d'erreur sortent du graphique à cause de l'échelle	
	logarithmique	214

4.23	Evolution des spectres fréquentiels de $\sigma^{''}$ au cours de l'expérience E2. L'échelle de couleur	
	correspond à l'avancement de l'expérience, de l'état initial (couleur froides) vers la fin de	
	l'expérience (couleur chaudes). Les valeurs de $\sigma^{''}$ évoluent de façon totalement désordonnée	
	aux basses fréquences, ne varient quasiment pas aux moyennes fréquences et ne présentent	
	aucune tendance (graphique a)). Aux hautes fréquences, une tendance se répète (graphique	
	b)). Les cadres noirs entourent un agrandissement aux fréquences 3 kHz et 20 kHz permetant	
	de visualiser globalement cette tendance.	217
4.24	Evolution des spectres fréquentiels de $\sigma^{''}$ au cours de l'expérience E11. L'échelle de couleur	
	correspond à l'avancement de l'expérience, de l'état initial (couleur froides) vers la fin de	
	l'expérience (couleurs chaudes). Les croix correspondent au spectre fréquentiel de l'état initial	
	de l'expérience E2. Les valeurs de $\sigma^{''}$ évoluent de façon totalement désordonnée aux basses	
	fréquences, varient aux moyennes fréquences sans montrer de tendance systématique (a) et	
	présentent une tendance nette aux hautes fréquences (b)	218
4.25	Evolution des spectres fréquentiels de σ' au cours des expériences E2, E5, E8 et E11 avec	
	les mêmes échelles de valeurs. Pour les quatres expériences, la conductivité de l'eau saturante	
	vaut $\sigma_f = 400 \ \mu \text{S.cm}^{-1}$ Les spectres de différentes couleurs correspondent à l'avancement de	
	l'expérience, de l'état initial (couleur froides) vers la fin de l'expérience (couleur chaudes).	
	a) Expérience E5 : sable de Fontainebleau $+$ injection de CO ₂ . b) Expérience E11 : sable	
	carbonaté $+$ injection de CO ₂ . c) Expérience E2 : sable de Fontainebleau $+$ injection de N ₂ .	
	d) Expérience E8 : sable carbonaté $+$ injection de $\mathrm{N}_2.$ Les erreurs calculées par le SIP FUCHS	
	III sont plus petites que la taille des symboles	221
4.26	Evolution des spectres fréquentiels de $\sigma^{'}$ au cours des expériences E2 et E8 avec une échelle	
	de valeurs adaptée à chaque graphique. Les spectres de différentes couleurs correspondent	
	à l'avancement de l'expérience, de l'état initial (couleur froides) vers la fin de l'expérience	
	(couleur chaudes). a) Expérience E2 : sable de Fontaine bleau $+$ injection de $\rm N_2.$ b) Expérience	
	E8 : sable carbonaté $+$ injection de $\mathrm{N}_2.$ Les erreurs calculées par le SIP FUCHS III sont plus	
	petites que la taille des symboles.	222
4.27	Evolution des spectres fréquentiels de déphasage au cours des expériences $\mathrm{E2}$ et $\mathrm{E11}$. Les	
	spectres de différentes couleurs correspondent à l'avancement de l'expérience, de l'état initial	
	(couleur froides) vers la fin de l'expérience (couleur chaudes). Les barres d'erreur ne sont pas	
	représentées pour plus de lisibilité.	223
4.28	Evolution temporelle des conductivités en quadrature et en phase $\sigma^{''}$ et $\sigma^{'}$ à la fréquence	
	$f=12~\mathrm{kHz}.$ Le premier point de mesure correspond à l'état initial pré-injection. Les flèches	
	oranges dénotent respectivement le début de l'injection de gaz ($Q=3~{\rm L/h})$ et le moment où	
	l'on augmente le débit ($Q=8~{ m L/h}$)	225
4.29	Evolution temporelle des conductivités en quadrature et en phase mesurées à la fréquence	
	$f=12~\mathrm{kHz},$ pour le triplet d'expériences E1, E2 et E3 (sable de Fontainebleau, injection de	
	N_2 , trois paliers de conductivité).	226

4.30	Photos représentant quelques modifications structurales que l'on a pu observer au cours de nos	
	expériences. a) Fracture horizontale. b) Grosse poche localisée, ici après dégonflement. Lorsque	
	gonflées, elles peuvent faire autour de 3 à 5 cm de largeur. c) Petites poches disséminées	227
4.31	Représentation de l'évolution temporelle des conductivités en quadrature et en phase mesurées	
	à la fréquence $f = 12$ kHz, pour le triplet d'expériences E7, E8 et E9 (sable carbonaté, injection	
	de N ₂ , trois paliers de conductivité). \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots	229
4.32	Représentation de l'évolution temporelle des conductivités en quadrature et en phase mesurées	
	à la fréquence $f = 12$ kHz, pour le triplet d'expériences E4, E5 et E6 (sable de Fontainebleau,	
	injection de CO_2 , trois paliers de conductivité).	231
4.33	Représentation de l'évolution temporelle des conductivités en quadrature et en phase mesurées	
	à la fréquence $f = 12$ kHz, pour le triplet d'expériences E10, E11 et E12 (sable carbonaté,	
	injection de CO_2 , trois paliers de conductivité).	232
4.34	Evolution des valeurs de $\sigma^{'}$ et $\sigma^{''}$ mesurées à la fréquence $f = 12$ kHz lors des expériences.	
	Système sable de Fontainebleau / N $_2$ et sable carbonaté / N $_2$	236
4.35	Représentation de l'amplitude des chutes de désaturation observées immédiatement après l'in-	
	jection de gaz en fonction de la conductivité initiale de l'eau saturante. Variations relatives à	
	l'état initial pré-injection. a) Système sable de Fontainebleau / N_2 . b) Sable carbonaté / N_2 .	
	c) sable de Fontainebleau / CO ₂	238
4.36	Représentation de l'amplitude des chutes de désaturation observées immédiatement après l'in-	
	jection de gaz en fonction de la conductivité initiale de l'eau saturante. Variations relatives à	
	l'état initial pré-injection. a) Système sable de Fontainebleau / N2. b) Sable carbonaté / N2. $$.	239
4.37	Représentation de l'amplitude de l'accroissement de dissolution observé lors des expériences	
	impliquant l'injeciton de CO_2 en fonction de la conductivité initiale de l'eau saturante. Varia-	
	tions relatives à l'état initial pré-injection. a) Système sable de Fontainebleau / $\rm CO_2$. b) Sable	
	carbonaté / CO_2	240
4.38	Spectre fréquentiel de la conductivité en quadrature mesuré dans la gamme de fréquences $[0,05]$	
	Hz - 20 k $\mathrm{Hz}]$ pour le sable de Fontainebleau et le sable carbonaté totalement saturés en eau	
	de conductivité $\sigma_f = 400 \ \mu \text{S.cm}^{-1}$, avant l'injection de gaz. La rupture de pente se produit	
	aux alentours de la fréquence $f_{Font}\approx 300~{\rm Hz}$ pour le sable de Fontainebleau, et $f_{carb}\approx 60~{\rm Hz}$	
	pour le sable carbonaté	242
4.39	Evolution temporelle des variations relatives à l'état initial de la conductivité en quadrature	
	$(\Delta \sigma_{\% init}'')$, au cours de l'expérience E11, pour chaque fréquence de la gamme 2 Hz - 20 kHz.	
	Les couleurs des points évoluent selon la fréquence en question, des couleurs froides (fréquences	
	élevées) vers les couleurs chaudes (fréquences basses).	244
4.40	Représentation de la dépendance fréquentielle des variations relatives à l'état initial pour l'ex-	
	périence E11. Cas de la dernière mesure, effectuée au temp s $t\approx 500$ min. Les barres grises	
	soulignent la forme globale de la courbe, notamment les asymptotes aux basses et hautes	
	fréquences	244

4.41	Evolution temporelle des variations relatives à l'état initial de la phase ϕ , au cours de l'ex-	
	périence E11, pour chaque fréquence de la gamme 2 Hz - 20 kHz. Les couleurs des points	
	évoluent selon la fréquence en question, des couleurs froides (fréquences élevées) vers les cou-	
	leurs chaudes (fréquences basses). On observe une répartition quasi-symétrique des courbes	
	autour de l'axe des abscisses.	245
4.42	Evolution temporelle des variations relatives à l'état initial de la conductivité en quadrature,	
	au cours de l'expérience E5, pour chaque fréquence de la gamme 2 Hz - 20 kHz. Les couleurs	
	des points évoluent selon la fréquence en question, des couleurs froides (fréquences élevées) vers	
	les couleurs chaudes (fréquences faibles). Les cadres noirs entourent les acquisitions effectuées	
	immédiatement après le début de l'injection et à la fin de l'expérience, dont on a représenté la	
	dépendance fréquentielle à la figure 4.43.	246
4.43	Représentation de la dépendance fréquentielle des variations relatives à l'état initial. a) Dépen-	
	dance fréquentielle des chutes de désaturation. L'acquisition a été effectuée quelques minutes	
	après le début de l'injection ($t \approx 15$ min). b) Dépendance fréquentielle de l'accroissement de	
	dissolution. Acquisition à l'état final de l'expérience ($t \approx 270$ min).	247
4.44	a) Evolution temporelle des variations relatives à l'état initial de la conductivité en quadrature,	
	au cours de l'expérience E1, pour chaque fréquence de la gamme 2 Hz - 20 kHz. Les variations	
	sont quasiment nulles aux moyennes fréquences. b) Dépendance fréquentielle des variations	
	relatives correspondant à l'acquisition finale ($t \approx 120$ min). La forme transitoire est à nouveau	
	observée. Les couleurs des points évoluent selon la fréquence correspondante, des couleurs	
	froides (hautes fréquences) vers les couleurs chaudes (moyennes fréquences).	248
4.45	a) Evolution temporelle des variations relatives à l'état initial de la conductivité en quadrature,	
	au cours de l'expérience E9, pour chaque fréquence de la gamme 22 Hz - 20 kHz. Les variations	
	sont complètement désordonnées lorsque la fréquence est inférieure à 300 Hz	249
4.46	Evolution temporelle de la conductivité en quadrature au cours de l'expérience E9, pour la	
	fréquence $f = 187$ Hz. Les variations observées sont largement comprises dans les barres	
	d'erreur calculées par l'appareil	250
4.47	Circuit électrique équivalent pour le modèle de Vinegar and Waxman (1984). Modifié d'après	
	Lesmes and Frye (2001)	252
4.48	Comparaison entre le modèle "réaliste" et les mesures effectuées à l'état initial de l'expérience	
	E1. Les barres d'erreur représentent l'erreur calculée par l'appareil d'acquisition. Elles sortent	
	du cadre du graphique si l'erreur est supérieure à la valeur mesurée	263
4.49	Comparaison entre le modèle "élargi" et les mesures effectuées à l'état initial de l'expérience	
	E1. Les barres d'erreur représentent l'erreur calculée par l'appareil d'acquisition. Elles sortent	
	du cadre du graphique si l'erreur est supérieure à la valeur mesurée	263
4.50	Comparaison entre le modèle "ajusté" et les mesures effectuées à l'état initial de l'expérience	
	E1. Les barres d'erreur représentent l'erreur calculée par l'appareil d'acquisition. Elles sortent	
	du cadre du graphique si l'erreur est supérieure à la valeur mesurée	264

4.51	Comparaison entre le modèle "final" et les mesures effectuées à l'état initial de l'expérience	
	E1. Les barres d'erreur représentent l'erreur calculée par l'appareil d'acquisition. Elles sortent	
	du cadre du graphique si l'erreur est supérieure à la valeur mesurée	265
4.52	Comparaison entre le modèle "final" calculé avec les paramètres du tableau 4.21 et les mesures	
	effectuées à l'état initial des expériences $E1$, $E2$ et $E3$. Les barres d'erreur sont absentes pour	
	plus de lisibilité	266
4.53	$\label{eq:comparaison} {\rm Comparaison\ entre\ le\ modèle\ "final"\ calculé\ avec\ les\ paramètres\ du\ tableau\ 4.21\ et\ les\ mesures}$	
	effectuées à l'état initial des expériences E7, E8 et E9. Les barres d'erreur sont absentes pour	
	plus de lisibilité	267
4.54	Ajustement par une relation affine des spectres de conductivité en quadrature mesurés à l'état	
	initial des expériences E1, E2 et E3, dans la gamme de fréquences [10 Hz - 20 kHz]. Les	
	équations affines obtenues et leur coefficient de régression sont indiqués dans les cadres de	
	couleur correspondant à chaque expérience	269
4.55	Ajustement par une relation affine des spectres de conductivité en quadrature mesurés à l'état	
	initial des expériences E7, E8 et E9, dans la gamme de fréquences [10 Hz - 20 kHz]. Les	
	équations affines obtenues et leur coefficient de régression sont indiqués dans les cadres de	
	couleur correspondant à chaque expérience	270
4.56	Représentation de la dépendance des valeurs de $\sigma^{''}$ et ε_r déterminées par le modèle affine avec	
	la conductivité initiale du fluide saturant. Les valeurs augmentent linéairement avec la conduc-	
	tivité du fluide. Les équations et coefficients de régression correspondant à chaque paramètre	
	et à type de sable sont indiquées en couleur sur la figure	271
4.57	Représentation de la dépendance des valeurs de $\sigma^{''}$ et ε_r déterminées par le modèle affine avec	
	la conductivité initiale du fluide saturant. Les valeurs augmentent linéairement avec la conduc-	
	tivité du fluide. Les équations et coefficients de régression correspondant à chaque paramètre	
	et à type de sable sont indiquées en couleur sur la figure	272
4.58	Représentation de la dépendance des valeurs de $\sigma^{''}$ et ε_r déterminées par le modèle affine avec	
	la conductivité initiale du fluide saturant. Les valeurs augment ent linéairement avec la conduc-	
	tivité du fluide. Les équations et coefficients de régression correspondant à chaque paramètre	
	et à type de sable sont indiquées en couleur sur la figure	273
4.59	Prise de vue du maillage volumique (éléments tétraédriques) représentant le milieu d'étude	
	cylindrique. Les éléments colorés en vert regroupent l'ensemble des noeuds situé dans le plan	
	z = 0 cm du maillage, qui constituent la zone d'injection de CO ₂	275
4.60	Prise de vue du modèle représentant l'expérience E5 à plusieurs instants au cours de la simula-	
	tion. Le panache de CO_2 dissout se développe verticalement vers la surface, puis diffuse au fur	
	et à mesure vers les bords du cylindre. L'échelle de couleur correspond à la fraction massique	
	de CO_2 dissout dans l'eau.	276

4.61	Résultats du couplage entre le modèle de transport réactif FEHM et le modèle PP empirique,	
	pour la simulation de l'expérience E5. Le graphique a) présente les spectres de conductivité en	
	quadrature effective $\sigma_{eff}^{''}$ obtenus en appliquant le modèle empirique à chaque pas de temps de	
	la simulation FEHM. Au delà de 100 Hz, $\sigma_{eff}^{''}$ augmente au cours de la simulation. Pour des	
	fréquences inférieures à 1 Hz (non représentées), $\sigma_{eff}^{''}$ n'évolue pas. Le graphique b) représente	
	la comparaison entre les valeurs de $\sigma_{eff}^{''}$ mesurées au cours de l'expérience E5, et les valeurs	
	modélisées, à la fréquence $f = 12$ kHz	277
4.62	Résultats du couplage entre le modèle de transport réactif FEHM et le modèle PP empirique,	
	pour la simulation de l'expérience E11 (comparaison entre les valeurs mesurées au cours de	
	l'expérience E11, et les valeurs modélisées, à la fréquence $f=12$ kHz).	279
4.63	$\label{eq:Courbes} Courbes d'évolution temporelle des concentrations en ions calcium Ca^{2+}, hydrogénocarbonate$	
	$\rm HCO^{3-}$ (graphique de gauche) et du pH (graphique de droite), issues de la simulation FEHM	
	de l'expérience E11. La forme des courbes suggère le proximité de l'équilibre du système calco-	
	carbonique	280
4.64	Modélisation de l'évolution temporelle de $\sigma_{eff}^{''}$ calculée à la fréquence $f~=~12~{ m kHz},$ pour	
	différentes concentrations en calcite de la roche composant le milieu. \ldots \ldots \ldots \ldots	280
4.65	Représentation schématique d'une particule ellipsoïdale. Les demi-axes sont notés a, b et c	283
4.66	Spectres fréquentiels du déphasage mesurés avec le SIP FUCHS III sur des résistances pures	
	de 30, 68, 150, 330 et 660 $\varOmega.$ Les erreurs calculées par l'appareil sont inférieures à la taille des	
	symboles	287
4.67	Spectres fréquentiels du déphasage mesurés avec le SIP FUCHS III sur des résistances pures	
	de 30, 68, 150, 330 et 660 $\varOmega.$ Les erreurs calculées par l'appareil sont inférieures à la taille des	
	$\operatorname{symboles}$	288
4.68	Spectres fréquentiels du déphasage mesurés avec le SIP FUCHS III sur des résistances pures	
	de 30, 68, 150, 330 et 660 $\varOmega.$ Les erreurs calculées par l'appareil sont inférieures à la taille des	
	$\operatorname{symboles}$	289
4.69	Photographie des 2 jeux de 4 électro des impolarisables utilisées. Chaque électro de est composé	
	d'un fil de cuivre plongé dans une solution sur-saturée en sulfate de cuivre, solidifiée avec	
	l'ajout de gélatine alimentaire. Les filtres en contact avec le milieu sont des filtres poreux de	
	marque Dionex. Les extrémités des électrode sont scellées avec une bouchon de colle entourant	
	le fil de cuivre	290
4.70	Photographie du bac cylindrique utilisé pour les mesures. La position des électrodes est repré-	
	sentée par les ellipses noires. Les électrodes A et B sont utilisées pour l'injection de courant et	
	les électrodes M et N pour la mesure du potentiel	291

4.71	Représentation des spectres fréquentiels de la conductivité en quadrature $\sigma^{''}$ mesurés avec	
	les 2 jeux d'électro des sur 3 milieux différents : eau salée (NaCl) de conductivité $\sigma_f=2,73$	
	mS.cm ⁻¹ (symboles circulaires), sable de Fontainebleau saturé en eau de conductivité σ_f =	
	$3,25 \text{ mS.cm}^{-1}$ (symboles rectangulaires), et sable de Fontainebleau saturé en eau de conduc-	
	tivité $\sigma_f = 1.05 \text{ mS.cm}^{-1}$ (symboles triangulaires). Les symboles pleins correspondent aux	
	petites électrodes et les symboles vides aux grandes électrodes.	292
4.72	Comparaison entre le spectre de conductivité en quadrature théorique de l'eau (symboles en	
	croix) avec les spectres mesurés sur un milieu composé d'eau salée (NaCl) de conductivité	
	$\sigma_f = 2,73 \text{ mS.cm}^{-1}$ (symboles circulaires). Les symboles pleins correspondent aux petites	
	électrodes et les symboles vides aux grandes électrodes	294
5.1	Vue aérienne d'une partie de l'observatoire de St-Maur-des-Fosses. Extrait du site www.ipgp.fr	298
5.2	Vue en plan du site d'étude et des éléments environnants, accompagné de photos. Les cercles	
	rouges A et B indiquent les endroits où ont été prises les photos. Le point noir au milieu de la	
	parcelle représente la tête du puits d'injection de CO_2	299
5.3	Carte géologique de la zone d'étude. La parcelle de terrain sur laquelle nous avons travaillé se	
	situe approximativement à la frontière entre la zone marneuse et la zone calcaire. Extrait et	
	modifié d'après les données du réseau Info Terre (BRGM). http://infoterre.brgm.fr/	300
5.4	Schéma en perspective du dispositif d'électro de mis en place par Blanco et al. (2013). Le puits \ensuremath{C}	
	d'injection de CO_2 fait 5,5 m de profondeur. Extrait de (Blanco et al., 2013)	300
5.5	a) Résultats de l'inversion time-lapse des données issues de la ligne d'électrode la plus proche	
	du point d'injection (ligne L4 sur la figure 5.4). b) Prise de vue d'une interprétation 4D effectuée	
	avec le logiciel Blender. Le panache de $\rm CO_2$ atteint la surface au bout de 4 h. Modifié d'après	
	(Blanco et al., 2013)	301
5.6	Photo représentant une ligne d'électrodes mise en place avec la méthode PPT lors de mesures	
	préliminaires aux expériences. Toutes les configurations d'électrodes utilisées au cours de ces	
	expériences (ERT, PPT et PPS) ont été disposées selon le même axe	302
5.7	Schéma en vue a érienne de la position des lignes d'électrodes des tomographies Tom 1 et Tom $2.$	303
5.8	Sections de résistivité obtenues après inversion sur les profils Tom 1 et Tom 2	305
5.9	Distribution des valeurs de sensibilité relative des blocs du modèle inversé. Interpolation loga-	
	rithmique. Plus la sensiblité est haute, plus la valeur de résistivité du bloc est plausible. $\ . \ .$	305
5.10	Vue isométrique des sections de résistivité Tom 1 et Tom 2, avec leurs orientations respectives.	
	Le puits d'injection est représenté par un trait noir vertical. Le point de vue est du côté du	
	bâtiment (c.f. figure 5.7)	306
5.11	Vue isométrique des sections de résistivité Tom 1 et Tom 2, avec leurs orientations respectives.	
	Le puits d'injection est représenté par un trait noir vertical. Le point de vue fait face au	
	bâtiment (c.f. figure 5.7)	306

5.12	Représentation des distributions de résistivité inversés, issues des acquisitions à l'état pré-	
	injection de l'expérience avec le protocole dipôle-dipôle (graphique a) et le protocole Wenner-	
	Schlumberger (graphique b)	308
5.13	Représentation des pourcentages de variation de résistivité des modèles inversés par rapport à	
	l'état initial pour le protocole Wenner-Schlumberger, à différent moments au cours de l'expé-	
	rience. Les temps indiqués au dessus de chaque section correspondent au nombre de minutes	
	écoulées depuis le début de l'injection de CO ₂ . Le trait noir au milieu de la première section	
	représente la position latérale du puits d'injection (l'extension verticale n'est pas représentée.	
	Les blocs rouges correspondent à une augmentation de la résistivité et les blocs bleus à une	
	diminution)	310
5.14	Représentation des pourcentages de variation de résistivité des modèles inversés par rapport	
	à l'état initial pour le protocole dipôle-dipôle, à différent moments au cours de l'expérience.	
	Les temps indiqués au dessus de chaque section correspondent au nombre de minutes écoulées	
	depuis le début de l'injection de CO ₂ . Le trait noir au milieu de la première section représente	
	la position latérale du puits d'injection (l'extension verticale n'est pas représentée. Les blocs	
	rouges correspondent à une augmentation de la résistivité et les blocs bleus à une diminution).	311
5.15	Représentation schématique de l'utilisation de câbles distincts pour la mesure et l'injection et	
	de l'alternance électrode métalliques / électrodes impolarisables	314
5.16	Représentation schématique des configurations d'électrodes spécifiques utilisées dans le proto-	
	cole Wenner-Schlumberger dans le cas d'une alternance d'électrodes, dans le cas ou l'espace-	
	ment inter-électrode est de 0,5 m	315
5.17	Principe d'acquisition d'une mesure en PPT. T_i correspond à la durée de l'injection et T_m à	
	la durée de la mesure à partir de la coupure de l'injection.	316
5.18	Diagramme issu du logiciel Res2Dinv représentant la distribution des résistivités apparentes	
	pour l'acquisition IPT1. L'axe des ordonnée représentent la pseudo-profondeur (en m) et l'axe	
	des abcisses la distance latérale sur le profil d'acquisition. On n'observe pas de différence	
	notable entre deux points d'acquisition voisins.	317
5.19	Sections de chargeabilités obtenues après inversion des données issues des acquisitions IPT1,	
	IPT2, et IPT3	318
5.20	Distribution de résistivités obtenue après l'inversion des données issues de l'acquisition IPT1.	
	Pour les acquisitions IPT2 et IPT3 les distributions de résistivité obtenues sont identiques. Le	
	temps d'injection T_i n'a pas d'influence sure les valeurs obtenues	319
5.21	Sections de résistivité obtenues après inversion sur le profil Tom 1. Le trait noir vertical épais	
	représente la position latérale du puits d'injection, les contours blancs représentent les limites	
	de profondeur d'investigation et d'extension latérale de la section de résistivités inversées issue	
	de l'acquisition IPT1 (c.f figure 5.20)	319

5.22	Représentation des courbes de décroissance de chargeabilités partielles associées à chaque qua-	
	dripôle de mesure composant l'acquisition IPT1. On attribue à chaque quadripôle une couleur	
	correspondant à sa position dans la séquence d'acquisition. Les couleurs chaudes correspondent	
	aux mesures effectuées au début de l'acquisition et les couleurs froides aux mesures effectuées	
	à la fin de l'acquisition	320
5.23	Représentation des chargeabilités apparentes totales mesurées lors de l'acquisition IPT1 en	
	fonction de leur position dans le protocole de mesure. Le numéro de la mesure (de 1 à 93)	
	correspond à l'ordre d'acquisition. Les ellipses grises entourent des groupes de quadripôles	
	présentant un comportement particulier	321
5.24	Représentation schématique des séquences d'acquisition composant le protocole	322
5.25	a) Représentation des chargeabilités apparentes totales mesurées lors des acquisitions LI001,	
	LI002 et LI003, correspondant respectivement aux protocoles initial, inverse, et sans répétition.	
	Le temps d'injection T_i vaut 1,5 s. Les électrodes d'injection de courant sont en acier inoxydable.	
	b) Comparaison entre les chargeabilités apparentes mesurées lors de l'acquisition LI001 et LI003	.324
5.26	Comparaison entre les chargeabilités apparentes mesurées lors de l'acquisition LI005 et LI006.	
	Le temps d'injection T_i vaut 4 s. Les électrodes d'injection de courant sont en acier inoxydable.	325
5.27	Comparaison entre les chargeabilités apparentes totales mesurées en utilisant des électrodes en	
	inox pour l'injection de courant, avec celles mesurées en utilisant des électrodes impolarisables.	
	A chaque acquisition, le temps d'injection vaut 1,5 s. La droite d'équation $y = x$ permet la	
	comparaison des valeurs obtenues.	326
5.28	Comparaison entre les résultats d'acquisitions effectuées avec deux stacks par point d'acqui-	
	sition et les résultats d'acquisitions effectuées en appliquant un seul stack. Le graphique a)	
	correspond aux acquisitions effectuées avec des électrodes d'injection en inox et le graphique	
	b) aux acquisitions effectuées avec des électrode d'injection impolarisables. Le protocole utilisé	
	pour les quatre acquisitions est le protocole sans répétition	327
5.29	a) Représentation des courbes de décroissance des chargeabilités partielles pour chaque quadri-	
	pôle composant l'acquisition IPT1. Les couleurs correspondent à la position de la mesure dans	
	la séquence d'acquisition. On observe l'existence de chargeabilités résiduelles non négligeables	
	pour certains quadripôles. b) Représentation schématique de la propagation d'une différence	
	de potentiel résiduelle dans le cycle de mesure de la charge abilité du Terrameter ABEM utilisé $% \mathcal{A}$	
	lors des expériences	329
5.30	Représentation des pourcentages de variation de résistivité des modèles inversés par rapport	
	à l'état initial, pour les acquisitions effectuées avec un temps d'injection $T_i = 1, 5$ s. Les temps	
	indiqués au dessus de chaque section correspondent au nombre de minutes écoulées depuis	
	le début de l'injection de CO ₂ . Le trait noir au milieu de la première section représente la	
	position latérale du puits d'injection (l'extension verticale n'est pas représentée). Les blocs	
	rouges correspondent à une augmentation de la résistivité et les blocs bleus à une diminution.	332

5.31	Représentation des pourcentages de variation de chargeabilité des modèles inversés par rapport
	à l'état initial, pour les acquisitions effectuées avec un temps d'injection $T_i = 1, 5s$. Les temps
	indiqués au dessus de chaque section correspondent au nombre de minutes écoulées depuis
	le début de l'injection de CO_2 . Le trait noir au milieu de la première section représente la
	position latérale du puits d'injection. Les blocs rouges correspondent à une augmentation de
	la chargeabilité et les blocs bleus à une diminution.
5.32	Pourcentages de variation de résistivité des acquisitions réalisées au cours de l'expérience par
	rapport à l'état initial, avec un temps d'injection T_i = 4s. Les temps indiqués au dessus de
	chaque section correspondent au nombre de minutes écoulées depuis le début de l'injection de
	CO ₂ . Le trait noir au milieu de la première section représente la position latérale du puits
	d'injection (l'extension verticale n'est pas représentée). Les blocs rouges correspondent à une
	augmentation de la résistivité et les blocs bleus à une diminution
5.33	Pourcentages de variation de chargeabilité des acquisitions réalisées au cours de l'expérience
	par rapport à l'état initial, pour un temps d'injection $T_i = 4$ s. Les temps indiqués au dessus
	de chaque section correspondent au nombre de minutes écoulées depuis le début de l'injection
	de CO_2 . Le trait noir au milieu de la première section représente la position latérale du puits
	d'injection (l'extension verticale n'est pas représentée). Les blocs rouges correspondent à une
	augmentation de la chargeabilité et les blocs bleus à une diminution.
5.34	Représentation des pourcentages de variation de <i>chargeabilité normalisée</i> des modèles inversés
	par rapport à l'état initial, pour les acquisitions effectuées avec un temps d'injection $T_i = 1, 5$ s.
	Les temps indiqués au dessus de chaque section correspondent au nombre de minutes écoulées
	depuis le début de l'injection de CO_2 . Le trait noir au milieu de la première section représente
	la position latérale du puits d'injection. Les blocs rouges correspondent à une augmentation
	de la chargeabilité et les blocs bleus à une diminution
5.35	Comparaison entre les variations de chargeabilités et de chargeabilités normalisées obtenues
	après inversion sur chaque bloc du modèle inversé, pour l'acquisition TIP008 réalisée au début
	de l'expérience et l'acquisition TIP014 réalisée en fin d'expérience. Le temps d'injection pour
	ces deux acquisition est de $1,5$ s. Les diminutions observées sur les blocs sont plus importantes
	à la fin de l'expérience
5.36	Comparaison entre les variations de chargeabilités et de chargeabilités normalisées obtenues
	après inversion sur chaque bloc du modèle inversé, pour l'acquisition TIP010 réalisée au début
	de l'expérience et l'acquisition TIP015 réalisée en fin d'expérience. Le temps d'injection pour
	ces deux acquisition est de 4 s. Les diminutions observées sur les blocs sont plus importantes
	à la fin de l'expérience
5.37	Comparaison entre les graphiques de probabilités associés aux distributions de résistivité in-
	versées. a) distributions de résistivité pour 3 blocs du modèle, 1 pour lequel l'hypothèse de
	normalité est rejetée par le test de Shapiro-Wilk, 2 pour lesquels l'hypothèse est validée. b)
	Exemple d'un graphe de probabilité associé à une distribution aléatoire de valeurs suivant une

5.38	Graphique de probabilité associé à la distribution d'un bloc du modèle choisi au hasard. Les	
	valeurs de chargeabilité sont réparties en paliers	343
5.39	Distribution de la quantité Q_{ρ} sur l'ensemble des blocs qui composent le modèle, pour chacune	
	des acquisitions effectuées au cours de l'expérience, avec un temps d'injection $T_i = 1, 5$ s. La	
	quasi-totalité des blocs présente des valeurs de Q_{ρ} négatives. Les variations de résistivité sont	
	donc comprises dans l'intervalle de confiance.	345
5.40	Distribution de la quantité Q_m sur l'ensemble des blocs qui composent le modèle, pour chacune	
	des acquisitions effectuées au cours de l'expérience, avec un temps d'injection $T_i = 1, 5$ s. La	
	quasi-totalité des blocs présente des valeurs de Q_m positives. Les variations de résistivité sont	
	donc plus importantes que la largeur de l'intervalle de confiance. \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots	346
5.41	Photos représentant la disposition de l'unité d'acquisition, de l'unité de puissance, et des bo-	
	bines de mesure et d'injection du système SIP FUCHS III. Les électrodes d'injection sont	
	espacées de 0,9 m et les électro des de mesure M et N de 0,3 m. Le SIP FUCHS III requiert	
	l'utilisation d'une électro de de référence placée au milieu du dipôle de mesure. 	349
5.42	Résultats de l'inversion des résistivités apparentes issues des mesures n° 5, 6, 7 et 8 et des	
	résistivités apparentes corrigées des mesures 1, 2 et 3. Capture d'écran du logiciel qwseln. \therefore	350
5.43	Représentation des spectres de déphasages mesurés lors des acquisitions préliminaires pour	
	différents espacement d'électrodes. a) Spectres des acquisitions dont l'espacement MN des	
	électrodes de mesure vaut $0,3$ m et l'espacement AB varie. b) Spectres pour un espacement	
	MN de 1 m. L'espacement AB varie. c) Comparaison des spectres pour un espacement AB $=$	
	5 m et 2 valeurs de MN différentes	352
5.44	Résultats de l'inversion des résistivités apparentes issues des mesures n° 5, 6, 7 et 8 et des	
	résistivités apparentes corrigées des mesures 1, 2 et 3. Capture d'écran du logiciel qw seln. Les $\$	
	traits rouges représentent les asymptotes à la courbe, les points agrandis aux espacements	
	d'électrodes choisis pour effectuer le suivi temporel. \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots	354
5.45	Schéma représentant les trois configurations d'électro des utilisées lors de l'expérience. L'unité	
	d'acquisition et la bobine d'injection sont placées du côté du bâtiment, et la bobine de mesure	
	est placée de l'autre côté de la ligne d'électrodes. L'injection est réalisée avec des électrodes	
	en inox et la mesure avec des électro des impolarisables. Les dénominations a_1, b_4 etc corres-	
	pondent à la longueur des bras composant les dispositifs de câbles en rectangle. \ldots \ldots \ldots	355
5.46	Représentation en échelle log-log des spectres de phase mesurés avec les 3 quadripôles d'élec-	
	trodes d'espacements respectifs AB = 3 m, AB = 10 m, et AB = 15 m. $\dots \dots \dots \dots \dots$	357
5.47	a) Représentation des spectres de phase mesurés lors de l'expérience sur le quadripôle d'es-	
	pacement AB = 15 m. Les barres d'erreur ne sont pas représentées pour plus de lisibilité. b)	
	Evolution temporelle des valeurs de phase mesurées aux fréquences 6, 12 et 20 k Hz. L'absence	
	de barre d'erreur signifie que l'erreur calculée par l'appareil est inférieure à la taille du symbole.	
	La bande grise correspond à la période d'injection du CO_2	359

5.48 a) Représentation des spectres de phase mesurés lors de l'expérience sur le quadripôle d'espacement AB = 10 m. Les barres d'erreur ne sont pas représentées pour plus de lisibilité. b) Evolution temporelle des valeurs de phase mesurée à la fréquence f = 20 k Hz. L'absence de barre d'erreur signifie que l'erreur calculée par l'appareil est inférieure à la taille du symbole. 5.49 a) Représentation des spectres de phase mesurés lors de l'expérience sur le quadripôle d'espacement AB = 3 m. Les barres d'erreur ne sont pas représentées pour plus de lisibilité. b) Evolution temporelle des valeurs de phase mesurée aux fréquences f = 20 kHz et f = 12 kHz. L'absence de barre d'erreur signifie que l'erreur calculée par l'appareil est inférieure à la taille du symbole. La bande grise correspond à la période d'injection du CO₂. 360 $5.50\,$ a) Spectres de résistivité apparentes mesurées à l'état initial pour chaque espacement AB. b) Représentation des spectres de résistivité apparente mesurés lors de l'expérience pour chacun des trois espacements AB. c) Evolution temporelle des valeurs de résistivité apparente mesurées à la fréquence f = 3 kHz. L'absence de barre d'erreur signifie que l'erreur calculée par l'appareil est inférieure à la taille du symbole. La bande grise correspond à la période d'injection du CO_2 . 3625.51 Capture d'écran du logiciel CR1Dmod en fonctionnement. a) Définition du modèle tabulaire de résistivité utilisé. b) Paramétrage de la position des électrodes et de la disposition des câbles. 363 5.52 Résultats des modélisation CR1Dmod. Le graphique du dessus représente les valeurs de résistivité apparente calculées par le logiciel pour chaque espacement d'électrodes AB, et le graphique 5.53 Comparaison entre les valeurs de phases modélisées par CR1Dmod pour un dispositif Schlumberger et un dispositif dipôle-dipôle. a) Espacement des électrodes pour le dispositif dipôledipôle. b) Espacement pour le dispositif Schlumberger modélisé. 5.54 Spectres de phase des états initiaux des expériences, pour chaque écartement des électrodes 5.55 Spectres de phase obtenus pour différentes configurations d'électrodes, a) 3 m, c) 5 m et e) 10 m, et différentes résistances de contact. b) d) et f) Influence de la résistance de contact sur les valeurs de phase mesurées aux hautes fréquences. 5.56 Représentation de la corrélation entre les valeurs de phase mesurées à la fréquence 20 kHz au cours de l'expérience pour l'espacement AB = 3 m, et les valeurs de résistance de prise

Liste des tableaux

2.1	Récapitulatif des coefficients obtenus d'après les considérations de Edwards (1977) pour les dispositifs dipôle-dipôle et Wenner-Schlumberger. d est la distance inter-électrode et n le niveau	
	d'écartement	59
3.1	Nombre de mesures de chaque classe dans les 150 mesures prises aléatoirement dans le protocole	
	"cross-rods", pour le protocole PA3 et les protocoles moins efficaces PA2, PA1 et PA7. Les	
	colonnes en gras représentent les classes pour lesquelles il existe une différence notable entre	1 – 7 0
0.0	les différents protocoles.	173
3.2	Répartition du nombre de mesures issues du protocole "cross-rods" sélectionnées aléatoirement dans chacune des classes de configurations.	173
4.1	Paramètres d'acquisition du SIP-FUCHS III propres à chaque fréquence d'injection dans la	
	gamme 1 mHz - 20 kHz. La résolution spectrale décroit avec la fréquence	184
4.2	Evolution de la résistance de contact entre deux électrodes pour des filtres en hêtre de longueur	
	différentes	188
4.3	Facteurs géométriques calculés et modélisés pour le petit dispositif	191
4.4	Facteurs géométriques calculés et modélisés pour le grand dispositif	191
4.5	Gammes de résistances de contact mesurées sur une période de 7 jours, pour tous les couples	
	d'électro des possibles au sein d'un groupe de 4 électro des conçues avec des filtres industriels. $% \mathcal{L}^{2}$.	192
4.6	Quelques propriétés du diazote et du dioxyde de carbone. Les valeurs sont données pour une	
	pression $P = 1,013$ bar, $T = 15^{\circ}$ C pour la masse molaire et la masse volumique et $T = 0^{\circ}$ C	
	pour la solubilité. Valeurs extraites de l'encyclopédie des gaz de Air Liquide, accessible sur le	
	site de l'entreprise :	197
4.7	Tableau récapitulatif des 12 expériences distinctes et des paramètres expérimentaux associés	208
4.8	Concentrations en SO_4^{2-} mesurées (en ppm) par analyses chromatographiques réalisées sur les	
	échantillons prélevés lors des expériences E7 à E12	212
4.9	Valeurs du facteur de formation calculées à partir de la résistivité de l'état initial des expériences	
	avec le sable de Fontainebleau. Ces valeurs sont calculées en considérant la conductivité de	
	surface négligeable	215
4.10	Valeurs de conductivité et de pH mesurées sur des prélèvements de l'eau saturante à trois	
------	--	-----
	temps t1, t2 et t3 au cours de l'expérience (1 seule mesure par valeur). Le temps t1 correspond	
	à l'état initial du système, avant le début de l'injection, t2 au prélèvement effectué juste avant	
	l'augmentation du débit d'injection et t 3 au prélèvement effectué à la fin de l'expérience	228
4.11	Valeurs de pH mesurées au cours de l'expérience E4 sur des échantillons d'eau prélevés à	
	différents intervalles de temps pendant l'expérience. Le temps t0 correspond à l'état initial	
	pré-injection.	230
4.12	Données conductimétriques et chromatographiques issues de l'analyse d'échantillons d'eau pré-	
	levés lors de l'expérience E10 (la colonne Carbonates correspond aux concentrations en espèces	
	carbonatées dissoutes)	233
4.13	Données conductimétriques et chromatographiques issues de l'analyse d'échantillons d'eau pré-	
	levés lors de l'expérience E11 (la colonne Carbonates correspond aux concentrations en espèces	
	carbonatées dissoutes).	233
4.14	Données conductimétriques et chromatographiques issues de l'analyse d'échantillons d'eau pré-	
	levés lors de l'expérience E12. La colonne Carbonates correspond aux concentrations en espèces	
	carbonatées dissoutes.	233
4.15	Tableau récapitulatif des valeurs de balances ioniques calculées pour chaque prélèvement effec-	
	tué lors des expériences. Les valeurs en gras correspondent à des balance ionique "acceptables"	
	(<5%)	235
4.16	Augmentation du niveau d'eau, en mm, pour chacune des 9 expériences, au moment de la	
	première mesure après le début de l'injection	237
4.17	Augmentation du niveau d'eau, pour chacune des expériences impliquant l'injection de diazote	
	(E1, E2, E3, E7, E8 et E9) au moment où les mesures semblent stabilisées. \ldots \ldots \ldots	239
4.18	Paramètres utilisés pour la modélisation "réaliste" de l'état initial des expériences E1 et E4.	
	Les lettres en indice correspondent aux études de (a) Vaudelet et al. (2011), (b) Revil et al.	
	(1998) et (c) Leroy et al. (2008)	262
4.19	Paramètres utilisés pour la modélisation "élargie" de l'état initial des expériences E1 et E4.	
	Les lettres en indice correspondent aux études de (a) Vaudelet et al. (2011), (b) Revil et al.	
	(1998) et (c) Leroy et al. (2008). Les valeurs numériques en gras correspondent aux paramètres	
	modifiés par rapport au modèle "réaliste"	262
4.20	Paramètres utilisés pour la modélisation « ajustée » de l'état initial des expériences E1 et E4.	
	Les lettres en indice correspondent aux études de (a) Vaudelet et al. (2011), (b) Revil et al.	
	(1998) et (c) Leroy et al. (2008). Les valeurs numériques en gras correspondent aux paramètres	
	modifiés par rapport au modèle « réaliste »	264
4.21	Tableau récapitulatif des paramètres utilisés pour la modélisation « finale » de l'état initial de	
	toutes les expériences.	266
4.22	Valeurs de ε_r et σ'' obtenues par le modèle linéaire appliqué à l'état initial des expériences E1,	
	E2, E3, E7, E8 et E9	270

4.23	Valeurs de ε_r obtenues par le modèle affine appliqué à l'état initial des expériences E1, E2,	
	E3, E7, E8 et E9, et à l'état correspondant à la stabilisation de la chute de désaturation	
	(stabilisation de la phase gazeuse). Les valeurs de $\sigma^{''}$ obtenues ne sont pas représentées car	
	elles ne sont pas impactées par la présence de la phase gazeuse	272
5.1	Résumé des paramètres d'injection relatifs à chaque expérience	302
5.2	Planning temporel des mesures. Les temps t correspondent au temps écoulé depuis le début	
	de l'injection (t=0 min) et font référence au début de l'acquisition du profil en question $(1^{er}$	
	point de mesure).	307
5.3	Tableau récapitulatif des caractéristiques de chaque acquisition effectuées lors de l'étude mé-	
	thodologique	323
5.4	Tableau récapitulatif du déroulement des acquisitions en PPT lors du suivi temporel de l'in-	
	jection de CO_2	330
5.5	Caractéristiques géométriques des 8 configurations d'électrodes testées et valeurs de résistivités	
	apparentes associées. N.B : les valeurs de $ ho_a$ corrigées correspondent bien à celles mesurées pour	
	un espacement MN de 1 m (valeurs en gras)	349
5.6	Tableau récapitulatif du déroulement des mesures en PPS	356
5.7	Récapitulatif des longueurs des segments composant la disposition des câbles en rectangle lors	
	des acquisitions PPS. Les différentes longueurs a_i, b_i, c_i sont définies sur la figure 5.45	363
5.8	Paramètres des différentes acquisitions effectuées pour étudier l'influence de la résistance.	367
5.9	Récapitulatif des variations de phase observées au cours de l'expérience d'injection de CO ₂ .	
	pour les espacements $AB = 3$ m et $AB = 10$ m. Comparaison avec les valeurs de résistance de	
	prise mesurées pour chaque acquisition	369
	price mesarece pear enaque acquisition , , , , , , , , , , , , , , , , , , ,	500