

Développement de méthodes géo-électriques pour la caractérisation des processus de dissolution et de précipitation en contexte carbonaté

Résumé : La précipitation et la dissolution de la calcite sont des processus primordiaux dans les roches carbonatées et le fait de pouvoir les surveiller in situ est un enjeu majeur de l'exploitation des gisements pour le stockage géologique des ressources (eau, gaz) ou des déchets (e.g., CO₂). Les méthodes hydrogéophysiques sont fondées sur le développement de techniques géophysiques appropriées pour le suivi des processus hydrologiques et biogéochimiques de manière non-intrusive et à faible coût. En outre, parmi les techniques existantes, les méthodes électriques ont déjà prouvé leur capacité à surveiller les processus hydrologiques et la réactivité géochimique. Pour cette raison, les méthodes du potentiel spontané (PS) et de la polarisation provoquée spectrale (PPS) ont été choisies pour investiguer les processus de dissolution et de précipitation de la calcite. La PS est une technique passive consistant à mesurer le champ électrique naturel généré par les flux d'eau et les gradients de concentration, respectivement par les couplages électrocinétique et électrochimique, tandis que la PPS est une méthode active mesurant la conductivité électrique complexe aux basses fréquences (du mHz au kHz). La conductivité électrique complexe est une propriété géophysique dont les composantes réelle et imaginaire peuvent être reliées respectivement aux propriétés microstructurales du milieu poreux et à l'état de surface des minéraux le constituant. Cependant, pour les études biogéochimiques, les données de PS et de PPS sont encore complexes à interpréter, en raison de la superposition des mécanismes sources. De ce fait, en l'absence de relations pétrophysiques, ces méthodes font rarement l'objet de modélisation quantitative. Cette thèse présente des recherches expérimentales et des développements théoriques connexes visant à améliorer l'interprétation des méthodes PS et PPS. Tout d'abord, un nouveau modèle de conductivité électrique est développé et montre un bon ajustement avec les résultats numériques de dissolution et de précipitation. Deuxièmement, des données PS remarquables ont été obtenues et ont pu être reliées aux gradients de concentration ionique grâce à la modélisation de transport réactif, conduisant à l'interprétation quantitative du couplage électro-diffusif de la PS. Par la suite, les expériences menées ont conduit à la conception et à l'amélioration d'un banc expérimental permettant une étude complète combinant l'acquisition géo-électrique multiméthodes et les analyses géochimiques. Enfin, les résultats obtenus par la PPS nourrissent la réflexion sur les mécanismes invoqués par d'autres études comme sources des variations de polarisation électrique résultant des processus de précipitation et de dissolution de la calcite.

Mots-clefs : suivi temporel de la réactivité de la calcite, processus de dissolution et de précipitation, potentiel spontané, polarisation provoquée spectrale, transport réactif, pétrophysique

Development of geo-electrical methods to characterize dissolution and precipitation processes in a carbonate context

Abstract: Calcite precipitation and dissolution are prime processes in carbonate rocks and being able to monitor them in situ is a major deal of reservoir exploitation for geo-resources (water, gas) or geological storage (CO₂, H₂, waste). Hydrogeophysical methods are based on the development of suitable geophysical techniques to monitor hydrological and biogeochemical processes non-intrusively and at low cost. Furthermore, among the existing techniques, electrical methods have already proven their ability to monitor hydrological processes and chemical reactivity. For this reason, self-potential (SP) and spectral induced polarization (SIP) methods are chosen for the study of calcite dissolution and precipitation processes. SP is a passive technique consisting in the measurement of the natural electric field generated by water fluxes and concentration gradients, through electrokinetic and electrochemical couplings, respectively, while, SIP is an active method measuring the electrical complex conductivity at low frequencies (from mHz to kHz). The electrical complex conductivity is a geophysical property whose real and imaginary components can be related to the microstructural properties of the porous medium and to the surface state of the minerals of which it is composed, respectively. However, for biogeochemical studies, SP and SIP data are still complex to interpret, due to the superposition of source mechanisms. Therefore, due to the lack of petrophysical relationships, these methods are rarely quantitatively modeled. This thesis presents experimental investigations and related theoretical developments to improve the interpretation of these methods. First, a new model of electrical conductivity is developed and show successful fitting with dissolution and precipitation numerical results. Secondly, remarkable SP data were obtained and are related to ionic concentration gradients through reactive-transport modeling, leading to the quantitative interpretation of the SP electro-diffusive coupling. Then, the conducted experiments led to the design and the improvement of a laboratory setup enabling a complete study combining geo-electrical acquisition and geochemical analyzes. Finally, SIP results nourish the reflection concerning the mechanisms, invoked by other studies, responsible for the electrical polarization variations resulting from calcite precipitation and dissolution processes.

Keywords: calcite reactivity monitoring, dissolution and precipitation processes, self-potential, spectral induced polarization, reactive transport, petrophysics