



UNIVERSITÉ  
LAVAL

Étude E3-10

**Modélisation numérique de la migration du méthane dans les Basses-  
Terres du Saint-Laurent.**

Soumis par :

Ali Nowamooz, Ph.D., Chercheur postdoctoral  
Jean-Michel Lemieux, ing., Ph.D., Professeur  
René Therrien, ing., Ph.D., Professeur

**Département de géologie et de génie géologique  
Université Laval**

au :

Fonds de recherche Nature et technologies, et au  
Comité de l'évaluation environnementale stratégique sur les gaz de schiste

4 décembre 2013

*Pour citer ce rapport :*

Nowamooz, A., J.-M. Lemieux et R., Therrien (2013) Étude E3-10, Modélisation numérique de la migration du méthane dans les Basses-Terres du Saint-Laurent. Rapport final. Département de géologie et de génie géologique, Université Laval, décembre 2013, 115 pages, 2 annexes.

*Auteur pour la correspondance :*

Jean-Michel Lemieux, ing., Ph.D.  
Professeur  
Département de géologie et de génie géologique  
Université Laval  
1065, avenue de la Médecine  
Québec (Québec) G1V 0A6, CANADA  
T : 418-656-7679 F : 418-656-7339  
[jmlemieux@ggl.ulaval.ca](mailto:jmlemieux@ggl.ulaval.ca)

## RESUMÉ

Cette étude constitue l'étude E3-10 du plan de réalisation de l'étude environnementale stratégique (ÉES) sur les gaz de schiste. Elle a pour objectif d'identifier et d'évaluer les mécanismes de migration du méthane, des fluides de formation et des fluides de fracturation vers les aquifères superficiels d'eau douce en relation avec les activités de fracturation hydraulique dans les Basses-Terres du Saint-Laurent.

Dans un premier temps, une synthèse et une analyse des problématiques environnementales rapportées dans la littérature reliées à la cimentation des coffrages des puits ainsi qu'à la fracturation hydraulique sont présentées. Par la suite, trois modèles conceptuels basés sur les problématiques jugées les plus importantes sont étudiés, à l'aide des modélisations numériques, en utilisant les variables physiques propres à la province géologique des Basses-Terres du Saint-Laurent.

Suite à la revue de la littérature, il apparaît que les fuites de gaz attribuables aux problématiques de cimentation des puits constituent un problème reconnu par l'industrie pétrolière et gazière qui n'est pas spécifique à l'exploitation des gaz de schiste. Bien que les fuites de gaz reliées à la cimentation des puits puissent survenir rapidement dans le cas de mauvaises pratiques de cimentation, la dégradation à long terme du ciment peut également mener à des fuites de gaz. Pour ce qui est des problématiques spécifiques à la fracturation hydraulique, les données publiées pour l'instant sont peu nombreuses et permettent difficilement d'en évaluer l'importance.

Dans un deuxième temps, trois modèles conceptuels reliés à la cimentation des puits ainsi qu'à la fracturation hydraulique ont été simulés à l'aide du modèle DuMux, un simulateur d'écoulement multiphase multi-constituant non-isotherme et de transport en milieu poreux basé sur la méthode des éléments finis et des volumes de contrôle. Afin de rendre le modèle applicable à cette étude, le système de fluide utilisé par DuMux a dû être modifié afin d'inclure les propriétés du méthane, de la saumure ainsi que du mélange entre ces fluides.

Le premier scénario simulé vise à étudier le comportement d'un puits d'exploitation de gaz de shale abandonné afin d'évaluer s'il pose un problème environnemental à long terme pour les aquifères superficiels. Dans ce scénario, un puits vertical de 1000 m de profondeur recoupe une séquence géologique composée du Shale d'Utica (200 m), du Groupe de Lorraine (750 m) et de dépôts meubles (50 m) perméables à la surface dans lesquels se retrouve un aquifère superficiel à nappe libre. Les résultats de simulation suggèrent que la présence d'un ciment frais de bonne qualité et bien installé dans la section annulaire du puits compris entre la formation géologique et le coffrage ne pose pas de problématique de fuites du gaz à long terme. Dans le meilleur des cas, les fuites simulées de méthane vers les aquifères superficiels sont de l'ordre de  $1.97 \times 10^{-4} \text{ m}^3/\text{an}$

après une période de 250 ans suivant la fermeture du puits. Toutefois, une mauvaise mise en place du ciment ou bien sa dégradation à long terme pourrait donner lieu à des fuites notables de méthane dans les aquifères superficiels. Dans le pire des cas simulés, les fuites de méthane vers les aquifères superficiels sont de l'ordre de 900 m<sup>3</sup>/an seulement 10 ans après l'abandon du puits. Les résultats de simulation montrent que selon la qualité de l'endommagement du ciment, des fuites notables de gaz pourraient survenir dans une période comprise entre quelques années à près de 200 ans.

Une analyse de sensibilité a également été réalisée afin d'évaluer l'importance de l'augmentation de la perméabilité du Shale d'Utica suite aux activités de fracturation hydraulique sur la vitesse et de migration du méthane vers la surface et le volume des fuites. Il apparaît que la fracturation hydraulique favorise une augmentation de la vitesse de migration et le volume des fuites, mais de façon marginale par rapport à la qualité de la cimentation des puits.

Le deuxième scénario simulé vise à étudier l'influence de la fracturation hydraulique sur la migration du gaz et des fluides de formation le long d'une faille afin d'évaluer s'il pose un problème environnemental à long terme pour les aquifères superficiels. Dans ce scénario, un puits vertical de 900 m de profondeur recoupe une séquence géologique composée du Shale d'Utica (100 m), du Groupe de Lorraine (750 m) et de dépôts meubles (50 m) perméables à la surface. Les résultats préliminaires de modélisation laissent supposer que la fracturation hydraulique ne pourrait pas causer une migration significative de fluides de formation et de méthane vers les aquifères superficiels dans un horizon de 1000 ans. Même en considérant une perméabilité plus grande pour la faille, aucune migration significative de fluides de formation et de méthane vers les aquifères superficiels n'est prévue dans un horizon de 1000 ans. Dans le cas d'une perméabilité réaliste de la faille ( $k = 10^{-3}$  mD), les fuites simulées de saumure et de méthane vers les aquifères superficiels augmentent de 4.51% et 2.95% par rapport au flux naturel ( $3.01 \times 10^{-5}$  m/an pour la saumure et 2.37 m/an pour le méthane) après une période de 1000 ans suivant la fracturation hydraulique. Dans le cas d'une perméabilité plus grande de la faille ( $k = 10^{-1}$  mD), les fuites simulées de saumure et de méthane vers les aquifères superficiels augmentent respectivement de 6.01% et 3.97% de leur flux naturel ( $2.83 \times 10^{-3}$  m/an pour la saumure et 231.11 m/an pour le méthane) après une période de 18 ans et de 2.82% et 1.46% de leur flux naturel après une période de 1000 ans suivant la fracturation hydraulique. Si on considère que les flux naturels de méthane et de saumure ne causent généralement pas de problématique environnementale, les résultats de la simulation montrent que la migration du méthane et de la saumure suivant un épisode de fracturation hydraulique ne devrait pas non plus en causer.

## TABLE DES MATIERES

<b>Résumé.....</b>	<b>iii</b>
<b>Introduction.....</b>	<b>1</b>
<b>1. Problématique et objectifs .....</b>	<b>3</b>
<b>2. Problématiques environnementales rapportées dans la littérature .....</b>	<b>5</b>
2.1 Conception et intégrité des puits .....	5
2.1.1 Puits en production .....	5
2.1.2 Puits abandonnés .....	8
2.2 Migration des fluides dans des failles et des fractures naturelles pendant ou après la fracturation hydraulique .....	12
<b>3. Scénarios et Modèles conceptuels retenus.....</b>	<b>17</b>
3.1 Scénario 1 - Puits abandonné .....	17
3.2 Scénario 2 - Migration du gaz et des fluides de formation le long des failles ...	18
<b>4. Modèle mathématique et numérique .....</b>	<b>21</b>
<b>5. Propriétés hydrodynamiques .....</b>	<b>23</b>
5.1 Shale d'Utica et Groupe de Lorraine .....	23
5.2 Ciment.....	32
5.3 Propriétés des fluides .....	44
<b>6. Discrétisation, Propriétés, conditions initiales et conditions limites.....</b>	<b>45</b>
6.1 Scénario 1 - Puits abandonné .....	45
6.1.1 Discrétisation spatiale et propriétés des matériaux.....	45
6.1.2 Conditions initiales .....	48
6.1.3 Conditions aux limites .....	49
6.2 Scénario 2 - Migration du gaz et des fluides de formation le long des failles ...	52
6.2.1 Discrétisation spatiale et propriétés des matériaux.....	52

6.2.2	Conditions initiales .....	54
6.2.3	Conditions aux limites .....	55
<b>7.</b>	<b>Résultats et discussion .....</b>	<b>57</b>
7.1	Scénario 1 – Puits abandonné .....	57
7.1.1	Ciment frais (cas 1 et 2).....	57
7.1.2	Ciment dégradé (cas 3, 4 et 5).....	58
7.1.3	Shale d’Utica fracturé (cas 6 à 10).....	59
7.1.4	Influence de la saturation en gaz du Shale d’Utica .....	64
7.2	Scénario 2 - Migration du gaz et des fluides de formation le long des failles ...	65
	<b>Conclusions .....</b>	<b>69</b>
	<b>Remerciements .....</b>	<b>73</b>
	<b>Références .....</b>	<b>75</b>
	<b>Annexe A : Modèle mathématique .....</b>	<b>87</b>
	Écoulement diphasique.....	87
	Définition d'une phase.....	87
	Notion de porosité.....	87
	Notion de saturation .....	87
	Conservation de la masse.....	88
	Loi de Darcy généralisée .....	88
	Formulation des écoulements diphasiques .....	91
	Écoulement diphasique bi-constituant.....	92
	<b>Annexe B : Propriétés des Fluides .....</b>	<b>95</b>
	Eau et Saumure .....	95
	Méthane .....	101
	Mélange eau/méthane.....	106

Composition des phases.....	106
Masse volumique des phases.....	107
Diffusion binaire des constituants .....	108

## LISTE DES FIGURES

<b>Figure 1.</b> Construction d'un puits et exemples de fuites de gaz le long d'un puits de production. A) entre le ciment et le coffrage; B) à travers des fractures; C) à travers des ouvertures; D) entre le ciment et la formation; E) à travers le ciment. ( <i>Vidic et al.</i> , 2013). .....	8
<b>Figure 2.</b> Zone d'intérêt pour le gaz de schiste dans les Basses-Terres du Saint-Laurent ( <i>Thériault</i> , 2012). .....	9
<b>Figure 3.</b> Fuite de gaz naturel le long des puits abandonnés. a) Puits foré et abandonné. b) Puits foré, coffré, complété et abandonné. Pour chaque cas, les chemins de fuites potentiels sont présentés par des flèches. ( <i>Watson et Bachu</i> , 2009). .....	11
<b>Figure 4.</b> Schéma du procédé de la fracturation hydraulique. (ProPublica <a href="http://www.propublica.org/article/anatomy-of-a-gas-well-426">www.propublica.org/article/anatomy-of-a-gas-well-426</a> ). .....	13
<b>Figure 5.</b> a) Sites étudiés par <i>Davies et al.</i> (2012) : cinq shales aux États-Unis (Eagle Ford, Woodford, Barnett, Marcellus et Niobrara) et trois sites en mer de gaz et de pétrole conventionnel (Norvège, Mauritanie et Namibie). b) la probabilité de non-dépassement de la longueur des fractures stimulées et naturelles. ....	14
<b>Figure 6.</b> Lignes sismiques M-2001, 2002 et 2003 interprétées par <i>Castonguay et al.</i> (2006). Les lignes illustrent le style structural dans la région d'intérêt, la position des failles ainsi que la position stratigraphique du Shale d'Utica. ....	16
<b>Figure 7.</b> Modèle conceptuel du scénario 1 : puits de production abandonné (cas 1). Les flèches indiquent l'échange de masse entre le ciment et les couches géologiques (pas d'échange avec l'intérieur du coffrage). .....	18
<b>Figure 8.</b> Modèle conceptuel du scénario 2 : migration du gaz et des fluides de formation le long des failles. Les flèches indiquent l'échange de masse entre le ciment et les couches géologiques (pas d'échange avec l'intérieur du coffrage). .....	19
<b>Figure 9.</b> Colonne stratigraphique des Basses-Terres du Saint-Laurent ( <i>Comeau et al.</i> , 2013). .....	24
<b>Figure 10.</b> Histogrammes de distribution de la porosité et de la perméabilité du shale d'Utica ( <i>Duchaine et al.</i> , 2013). .....	27
<b>Figure 11.</b> Photos des échantillons de shale d'Utica et du Groupe de Lorraine. A gauche : les trois échantillons du shale récupérés à la carothèque du Ministère des Ressources naturelles. A droite : les six morceaux cubiques utilisés pour les analyses de la porosimétrie au mercure et au gaz (0.01m × 0.01m × 0.01m). .....	28



**Figure 12.** a) Pression capillaire  $P_c$  de gaz mesurée en laboratoire (porosimétrie au mercure) en fonction de la saturation en eau (convertie à partir de la saturation en mercure) pour les échantillons des puits A252, A257 et A262.  $P_e$  correspond à la pression d'entrée du gaz. b) Pression capillaire obtenue par le modèle Brooks-Corey en utilisant les pressions d'entrée du gaz obtenues pour les trois échantillons de shale A252, A257 et A262 et  $\lambda = 2$ . c) Perméabilité relative obtenues par le modèle Brooks-Corey en utilisant  $\lambda = 2$ . ..... 31

**Figure 13.** Variations de la porosité de ciment avec le rapport eau/ciment W/C (*Taylor, 1997*). ..... 34

**Figure 14.** Variations de la perméabilité de ciment avec a) la porosité et b) le rapport eau/ciment (*Breysse et Gérard, 1997*). ..... 35

**Figure 15.** a) Courbe de la pression capillaire eau/air en fonction de la saturation en eau pour des échantillon du ciment de la classe G utilisé pour la construction des puits de pétrole (*Ghabezloo et al., 2008*). Les résultats sont interprétés par les modèles de Brooks-Corey et de Van-Genuchten. b) Les résultats interprétés par les modèles de Brooks-Corey et de Van-Genuchten avec des saturations résiduelles  $S_{reau} = 20\%$  et  $S_{rair} = 0\%$ . c) Les courbes de la perméabilité relative  $k_r$  de modèle de Burdine-Brooks-Corey. .... 37

**Figure 16.** Schéma simplifié des échantillons représentatifs de l'espace annulaire entre le coffrage et la formation (*Bachu et Bennion, 2009*). ..... 41

**Figure 17.** Photographie rayon X des échantillons représentatifs de l'espace annulaire entre le coffrage et la formation (*Bachu et Bennion, 2009*). a) cimentation parfaite de l'espace annulaire, b) cimentation avec la présence des fractures sur l'interface tubage/ciment c et d) cimentation avec la présence des fractures sur toute l'interface tubage/ciment mais également dans le ciment, e et f) cimentation avec la présence de fractures très ouvertes sur toute l'interface tubage/ciment et dans le ciment. .... 42

**Figure 18.** Schéma descriptif de l'essai d'interférence vertical (*Crow et al., 2010*). ..... 43

**Figure 19.** a) Le schéma conceptuel du scénario 1 (puits abandonné). b) Discrétisation spatiale du domaine. .... 51

**Figure 20.** Discrétisation spatiale du scénario 2. .... 55

**Figure 21.** Influence de la perméabilité de l'annulaire du puits sur la fuite a) du méthane et b) du fluide de formation vers les dépôts meubles. Les paramètres utilisés pour ces calculs sont présentés dans le Tableau 11. Porosité et perméabilité du Shale d'Utica :  $\varepsilon_u = 3\%$  et  $k_u = 10^{-3}$  mDarcy. .... 61

**Figure 22.** Influence de la perméabilité de l'annulaire du puits sur la fuite a) du méthane et b) fluide de formation vers les dépôts meubles pour une période de 50 ans. Les paramètres utilisés pour ces calculs sont présentés dans le Tableau 11. Porosité et perméabilité du shale d'Utica :  $\varepsilon_u = 7\%$  et  $k_u = 10^{-1}$  mDarcy. Les résultats de la Figure 20 sont présentés en gris. .... 62

**Figure 23.** Étude de la sensibilité du débit volumique calculé pour le méthane à la saturation du Shale d'Utica pour une période de 50 ans. Les paramètres utilisés pour ces calculs sont présentés dans le Tableau 11. Les indices  $c$  et  $u$  font référence au ciment et au Shale d'Utica, respectivement. Porosité et perméabilité du shale d'Utica :  $\varepsilon_u = 3\%$  et  $k_u = 10^{-3}$  mDarcy..... 64

**Figure 24.** La migration a) de la saumure et b) du méthane à travers une faille vers la surface. La section horizontale du puits croise la base de la faille. La perméabilité de la faille est de  $k_f = 10^{-3}$  mDarcy. D'autres paramètres utilisés pour ces calculs sont listés dans le Tableau 7. .... 66

**Figure 25.** La migration a) de la saumure et b) du méthane à travers une faille vers la surface. La section horizontale du puits croise le pied de la faille. La perméabilité de la faille est de  $k_f = 10^{-1}$  mDarcy. D'autres paramètres utilisés pour ces calculs sont listés dans le Tableau 7. .... 67

## LISTE DES TABLEAUX

<b>Tableau 1.</b> Perméabilité, porosité et saturation en eau provenant des résultats d'essais aux tiges, des analyses de carottes, ainsi que des publications pour le shale d'Utica et le Groupe de Lorraine. Ces valeurs sont comparées avec les valeurs publiées pour le shale Marcellus aux États-Unis. ....	32
<b>Tableau 2.</b> Variations de la porosité de ciment avec le rapport eau/ciment et la température de la prise ( <i>Caré, 2008</i> ).....	34
<b>Tableau 3.</b> Coefficients des modèles de Brooks-Corey et de Van-Genuchten et l'erreur relative moyenne (ERM) entre les résultats expérimentaux et les modèles pour deux valeurs de la saturation résiduelle de l'eau ( $S_{reau}$ ). ....	38
<b>Tableau 4.</b> Caractéristiques des fractures introduites dans chaque échantillon ( <i>Bachu et Bennion, 2009</i> ). ....	43
<b>Tableau 5.</b> Résultats de la perméabilité équivalente de l'espace entre le coffrage et la roche. ....	43
<b>Tableau 6.</b> Valeurs des paramètres utilisés dans les simulations. ....	47
<b>Tableau 7.</b> Valeurs des paramètres utilisés dans les simulations. ....	54
<b>Tableau 8.</b> Le débit du gaz et du fluide de formation en fonction du temps. ....	63
<b>Tableau 9.</b> Le flux du gaz et du fluide de formation en fonction du temps. ....	68

## INTRODUCTION

Ce rapport a été préparé dans le cadre de l'Évaluation environnementale stratégique (ÉES) sur les gaz de schistes. Les objectifs de l'ÉES sont définis dans le Plan de réalisation de l'évaluation environnementale stratégique sur les gaz de schiste (ÉES, 2011). L'un des objectifs visé par l'ÉES est l'évaluation des impacts et des risques environnementaux, des facteurs influant sur l'acceptabilité sociale et des méthodes de mitigation appropriées. Dans ce contexte, l'Université du Québec à Montréal (UQAM), l'Université Concordia, et l'Université Laval, membres du Réseau Québécois sur les Eaux souterraines (RQES) ont obtenu le financement nécessaire afin de réaliser les deux études suivantes du plan de réalisation de l'ÉES :

- Évaluation de la concentration naturelle de méthane dans les eaux souterraines dans les Basses Terres du Saint-Laurent; identification de l'origine du méthane présent; identification des mécanismes de migration préférentielle du méthane d'origine naturelle (E3-9);
- Modélisation, à partir de simulation numérique, de la migration des eaux de fracturation et du méthane, en utilisant les variables physiques (géologiques, physicochimiques et hydrogéologiques) propres à la province géologique des basses terres du Saint-Laurent et de ses bassins versants (E3-10).

Ce rapport concerne uniquement le second de ces deux volets (E3-10), soit la modélisation numérique des eaux de fracturation et du méthane et a été réalisé exclusivement au Département de géologie et de génie géologique de l'Université Laval. Cette étude a été subventionnée par le Fonds de Recherche Québécois – Nature et Technologies (FRQ-NT) et par le Ministère du Développement durable, de l'Environnement de la Faune et des Parcs (MDDEFP) dans le cadre du programme d'Initiatives stratégiques pour l'innovation (ISI ; projet n° 171083).



## 1. PROBLÉMATIQUE ET OBJECTIFS

La réalisation de cette étude a été motivée par les préoccupations concernant la contamination des eaux de surface et souterraines peu profondes par les fluides de fracturation ou les fluides de formation (saumure, gaz, etc.) en relation avec l'exploitation et l'extraction du gaz naturel et la fracturation hydraulique. Au cours des dernières années, les médias ont publié des articles et des vidéos plus ou moins spectaculaires concernant des fuites de fluides, et particulièrement de gaz naturel, en relation avec la fracturation hydraulique. Ces problématiques environnementales ont également été étudiées et sont rapportées dans plusieurs rapports et articles scientifiques :

- L'impact sur les réserves d'eau potable dû au grand volume d'eau nécessaire pour la fracturation hydraulique (*Broderick et al., 2011; Jiang et al. 2011; Stephenson et al., 2011*).
- La contamination des réserves en eau potable par une fuite du méthane vers les nappes phréatiques (*Bair et al., 2010; Osborn et al., 2011*) ou par un accident en surface pendant la procédure de la fracturation hydraulique.
- La possibilité de la migration du gaz ou des fluides de fracturation vers les formations peu profondes (*Myers, 2012*).
- La réinjection du fluide de fracturation usagé dans des aquifères salins (*MIT, 2011*) ou dans le même puits, une fois l'exploitation terminée (*Gregory et al., 2011*).
- Le risque lié au transport de matériel lourd et d'importants volumes d'eau et de sable (ou propant) jusqu'au puits ou encore la pollution atmosphérique qui résulte de l'exploitation des puits (*BAPE, 2011*).

Bien que ces études aient mis en lumière la majorité des processus responsables ou qui pourraient à long terme être responsables de la contamination des sols ou des eaux souterraines reliés aux activités d'exploitation du gaz naturel dans le shale et de fracturation hydraulique, il est difficile d'évaluer l'importance relative de chacun de ces processus, car peu d'analyses comparatives ont été effectuées. Il existe également peu d'exemples bien documentés et peu d'études prédictives qui ont été publiées jusqu'à maintenant. De plus, la majorité des études publiées ont été réalisées à l'extérieur du Québec et pour des contextes géologiques/hydrogéologiques parfois différents (e.g., *Osborn et al., 2011; Kreese et al., 2012*).

L'objectif de cette étude est d'identifier et d'évaluer les problématiques environnementales potentielles reliées à la migration du méthane et des fluides de fracturation vers un aquifère peu profond pendant et après les activités de fracturation hydraulique dans les Basses-Terres du Saint-Laurent. Dans un premier temps, une analyse des problématiques environnementales rapportées dans la littérature sera

présentée. Dans un deuxième temps, les problématiques jugées les plus importantes et les plus pertinentes sont retenues afin de simuler, par modélisation numérique, la migration des fluides en utilisant les variables physiques (géologiques, physico-chimiques et hydrogéologiques) propres à la province géologique des Basses-Terres du Saint-Laurent.

Bien que ce travail s'appuie en grande partie sur des données propres au bassin des Basses-Terres du Saint-Laurent, aucun travail de caractérisation des fuites ou d'évaluation de l'état actuel des puits n'a été réalisé sur le terrain dans le cadre de cette étude. Toutefois, des essais de caractérisation pétrophysique ont été réalisés sur des échantillons du Shale d'Utica et du Groupe de Lorraine afin d'alimenter le modèle numérique. Ces échantillons proviennent de la carothèque du Ministère des Ressources naturelles.

## 2. PROBLÉMATIQUES ENVIRONNEMENTALES RAPPORTÉES DANS LA LITTÉRATURE

La contamination des eaux de surface et souterraines par les activités d'exploration et d'exploitation de gaz peut être attribuée aux activités réalisées en surface ou le résultat d'activités souterraines. Les activités de surface incluent, par exemple, le déversement accidentel de produits chimiques ou des eaux usées, les fuites de liquide provenant de l'équipement de forage, des véhicules et des bassins de rétention. Pour ce qui est des activités souterraines, la contamination peut être reliée à la conception du puits (p. ex. la cimentation) ainsi qu'à la réalisation de la fracturation hydraulique. D'après *Jackson et al. (2013)*, la contamination des eaux de surface et souterraine par la fracturation hydraulique peut être attribuée (1) aux fuites de gaz par un puits de production ou par interconnexion entre des puits rapprochés de production et abandonnés ou (2) à la migration du gaz ou des fluides de formation par des failles et des fractures naturelles.

Dans le cadre de ce projet, nous limiterons notre analyse aux risques reliés à la conception des puits et aux activités de fracturation hydraulique.

### 2.1 Conception et intégrité des puits

Les problématiques environnementales peuvent varier selon que le puits soit en production ou qu'il soit abandonné.

#### 2.1.1 Puits en production

La migration de gaz naturel le long de puits de production a toujours été un problème reconnu pour l'industrie du pétrole et du gaz (*Stein et al., 2003*). Par exemple, 4% de plus de 12000 puits forés en Alberta ont déjà montré une fuite du gaz le long du ciment entre le coffrage et la formation géologique (*Watson et Bachu, 2009*).

Un puits est foré par sections successives dont les diamètres diminuent au fur et à mesure que la profondeur augmente. Un puits de production est construit généralement en trois sections : 1) coffrage conducteur, 2) coffrage de surface et 3) coffrage de production (Figure 1). Dans certains puits, un coffrage intermédiaire est également présent entre les coffrages de surface et de production. Chaque section doit être coffrée et puis cimentée (sauf le coffrage conducteur), avant que la section suivante ne soit forée. Le diamètre et l'épaisseur des coffrages varient selon le type d'acier utilisé et la pression maximale à laquelle ils sont soumis.

L'injection du coulis de ciment entre le tubage du puits et la formation est réalisée pour isoler les formations poreuses et pour empêcher la migration du gaz, des fluides de formation et des fluides de fracturation vers des formations peu profondes ou plus profondes. En pratique, il est cependant difficile de contrôler l'étanchéité (ou l'intégrité ciment/roche) du puits tout au long de son exploitation. Dans le cas des gaz de schistes,



les très fortes pressions nécessaires à la fracturation hydraulique peuvent également contribuer à révéler des faiblesses structurelles dans la construction du puits.

La qualité du ciment entre le coffrage et la roche et la présence de discontinuités est généralement vérifiée par un essai de pression ou à l'aide d'un outil de diagraphie acoustique (*Boyd et al., 2006*). Dans le cas d'un essai de pression, le coffrage est mis sous une pression de 7000 kPa pour une durée de 10 minutes. En ce qui concerne la méthode de diagraphie acoustique, il est important de noter que cette méthode ne permet pas toujours de détecter les discontinuités. Cette méthode ne constitue donc pas une solution unique pour la détection des discontinuités. La présence de micro-canaux, la position excentrée du coffrage, la présence d'une formation peu poreuse (ce qui est le cas des shales), la présence de ciment à faible densité (ciment très poreux) et le temps nécessaire à la réalisation des diagraphies par rapport au durcissement complet du ciment sont des facteurs qui peuvent fortement influencer la qualité des résultats de diagraphie acoustique (*Boyd et al., 2006*). Dans le cas où les résultats permettent d'identifier des discontinuités, elles peuvent être bouchées en réinjectant du ciment par un processus appelé "compression" (remedial cementing or squeezing). Une autre technique proposée permettant de détecter une fuite de gaz liée à la présence de discontinuités du ciment est le suivi des eaux souterraines peu profondes dans le voisinage des puits de gaz (*e.g., van Stempvoort et al., 2005, Bair et al., 2010*). Par contre, cette méthode ne permet pas d'identifier la profondeur de la fuite dans le puits. Pour l'instant, les règlements actuels au Canada et aux États-Unis requièrent des travaux de réparation des zones endommagées uniquement en cas d'une fuite importante de fluides ou la présence de H<sub>2</sub>S.

Lorsque les discontinuités sont présentes (Figure 1), elles peuvent créer, selon l'âge et la qualité de cimentation du puits, une fuite de gaz vers la surface et dans les nappes phréatiques à court terme (pendant la production) ou à long terme (après la fermeture du puits). La nature de ces discontinuités (généralement sous forme de fractures ou micro-canaux dans le ciment ou à l'interface ciment/formation) et leur processus de formation ne sont pas encore clairement identifiés. Cependant, plusieurs hypothèses sont considérées dans la littérature :

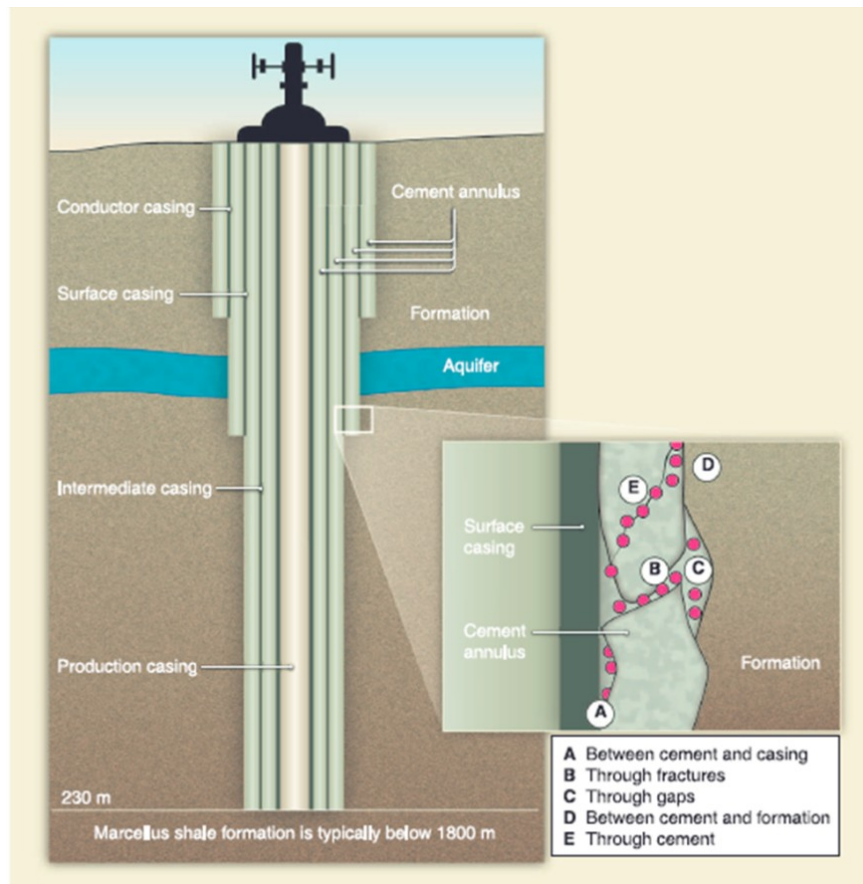
- La perte de pression dans la colonne de ciment pendant le durcissement (*Cooke et al., 1983*).
- La présence de boues de forage entre le coffrage et la formation pendant l'injection du ciment liquide (*Bonett et Pafitis, 1996*).
- La présence possible du gaz à haute pression dans les formations proches de la surface (*Bol et al., 1991*).
- La contraction du ciment lors de la prise (*Dusseault et al., 2000*). En effet, la contraction du ciment réduit la contrainte radiale initiale entre le ciment et la roche de la formation. Une fois que cette contrainte devient plus petite que la

pression des fluides dans les pores (gaz ou fluide de formation), des micro-fractures pourraient être créées à l'interface entre le ciment et la formation.

- La perte de ciment due à la pression hydrostatique très élevée de la colonne de ciment liquide (avant le durcissement) qui fracture la formation et cause la pénétration de ciment dans la formation (*Vidic et al., 2013*).

Quelle que soit la nature de ces discontinuités, les fractures générées peuvent se propager vers le haut en raison d'un déséquilibre entre la pression du gaz ou du fluide de formation dans les micro-fractures et les contraintes dans la roche de la formation. (*Dusseault et al., 2000*). La propagation des fractures est très lente pendant les premières années de production. Durant cette période, la pression importante à l'intérieur du puits maintient les fractures fermées. Comme la pression diminue au fur et à mesure que le gaz est extrait, les fractures ont tendance à s'ouvrir et à se propager vers la surface. D'après *Dusseault et al. (2000)*, quelques décennies sont nécessaires pour que les micro-canaux forment un chemin préférentiel et que le gaz atteigne la surface.

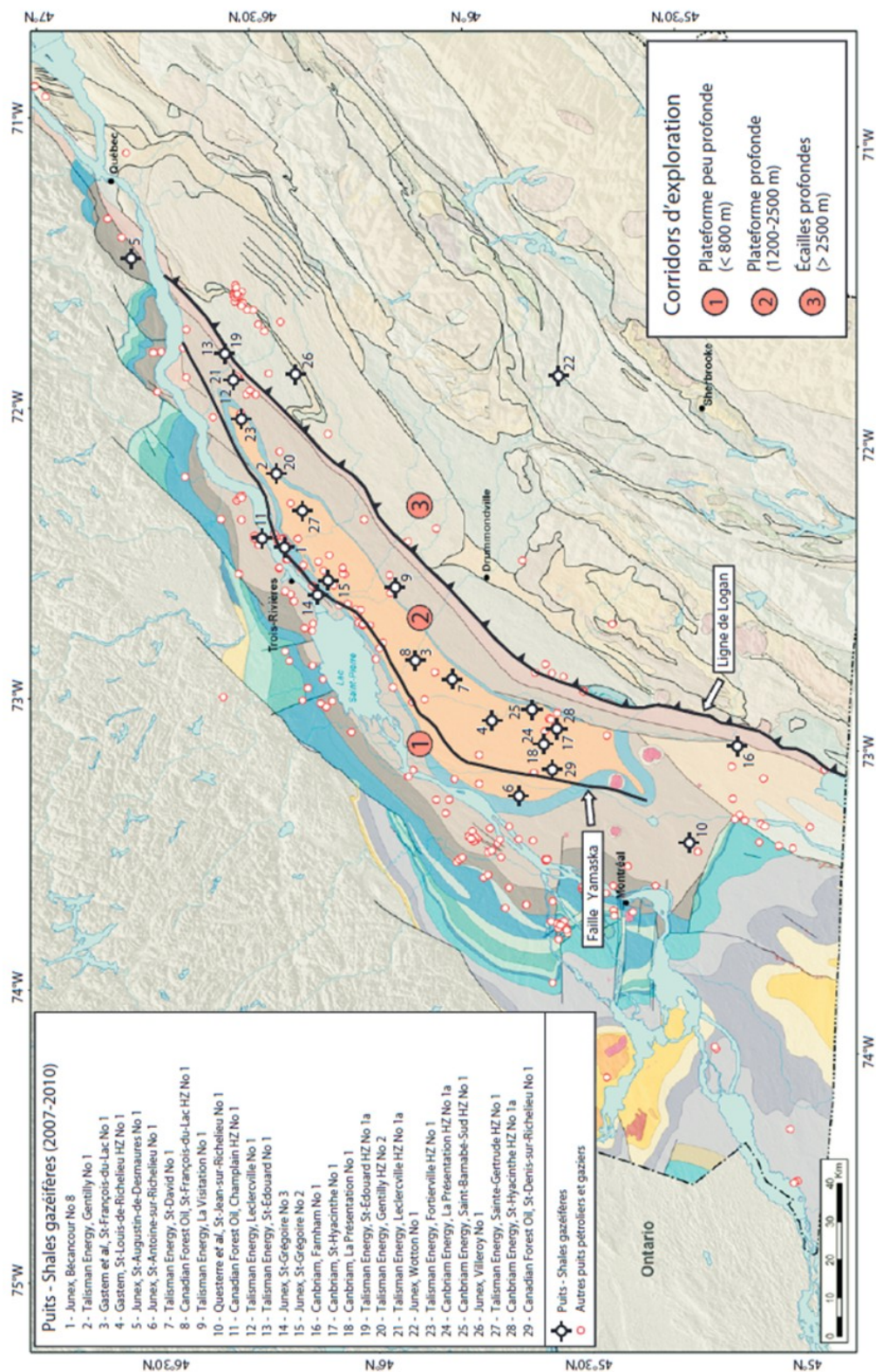
Plusieurs exemples de migration du méthane vers des puits d'eau potable, y compris un accident près de Dimock en Pennsylvanie, liés aux activités de production dans le shale Marcellus (*DEP, 2009*), sont présentés dans la littérature (e.g., *Gough et Waite, 1990*; *Breen et al., 2007*; *Buckwalter et Moore, 2007*; *Pittsburgh Geological Society, 2009*).



**Figure 1.** Construction d'un puits et exemples de fuites de gaz le long d'un puits de production. A) entre le ciment et le coffrage; B) à travers des fractures; C) à travers des ouvertures; D) entre le ciment et la formation; E) à travers le ciment. (*Vidic et al., 2013*).

### 2.1.2 Puits abandonnés

L'exploration du gaz et du pétrole a débuté au Québec en 1860. Pour cette raison, il existe de nombreux puits abandonnés. Le Système d'Information Géoscientifique Pétrolier et Gazier (SIGPEG) du Ministère des Ressources naturelles montrent la présence d'environ 280 puits (dont 29 puits pour le gaz de schiste) dans la zone d'intérêt pour le gaz de schiste (corridors 1,2 et 3 de la Figure 2). Ces 280 puits peuvent présenter un risque pour l'environnement, notamment parce qu'ils peuvent servir de chemin préférentiel pour la migration des fluides de fracturation ou de formation et ainsi causer la contamination des eaux souterraines. A l'heure actuelle, la seule étude permettant d'évaluer l'intégrité des puits abandonnés au Québec est le projet de fermeture sécuritaire des puits dans la région des Basses-Terres réalisé en 1993 qui avait comme objectif principal la localisation de 68 puits sélectionnés et ensuite, pour les puits localisables, la vérification de l'état et d'une fuite probable du méthane (*Girard, 1993*).



**Figure 2.** Zone d'intérêt pour le gaz de schiste dans les Basses-Terres du Saint-Laurent (Thériault, 2012).

Lorsque des formations géologiques perméables sont en contact avec des couches peu perméables, ces dernières constituent normalement des barrières naturelles à la migration des fluides de formation et du gaz naturel vers les aquifères superficiels. Cependant, si des puits abandonnés mal scellés traversent ces formations peu perméables, ils peuvent alors créer un chemin préférentiel d'écoulement vers les couches perméables et transmettre au cours du temps les fluides de formation et le gaz naturel vers les formations superficielles. (*Chafin, 1994; Lacombe et al., 1995*).

D'après *Chafin (1994)*, la concentration importante de 39 mg/l du méthane (par rapport à la limite de 10 mg/l considérée aux États-Unis) dans les eaux souterraines peu profondes de bassin de San Juan en Four Corners aux États-Unis est directement liée à la faible qualité de scellement des puits forés dans les années 1930 et par la suite abandonnés. La contamination d'un aquifère alluvial peu profond près de Fort Knox (Kentucky, USA) par le chlorure (concentration supérieure à 10 g/L) serait un autre exemple de ce type de disfonctionnement (*Lyverse et Unthank, 1988*). Dans une étude récente, *Osborn et al. (2011)* ont également trouvé des concentrations élevées (entre 20 et 64 mg/l) de méthane dans les échantillons d'eau prélevés dans des puits d'eau potable (profondeurs comprises entre 36 à 190 m) à moins de 1000 m de sites de production de gaz de schiste en Pennsylvanie. Malgré la présence du méthane dans les échantillons prélevés, ces auteurs n'ont trouvé aucune trace de contamination des échantillons d'eau prélevés par l'eau saline profonde ou le fluide de la fracturation hydraulique.

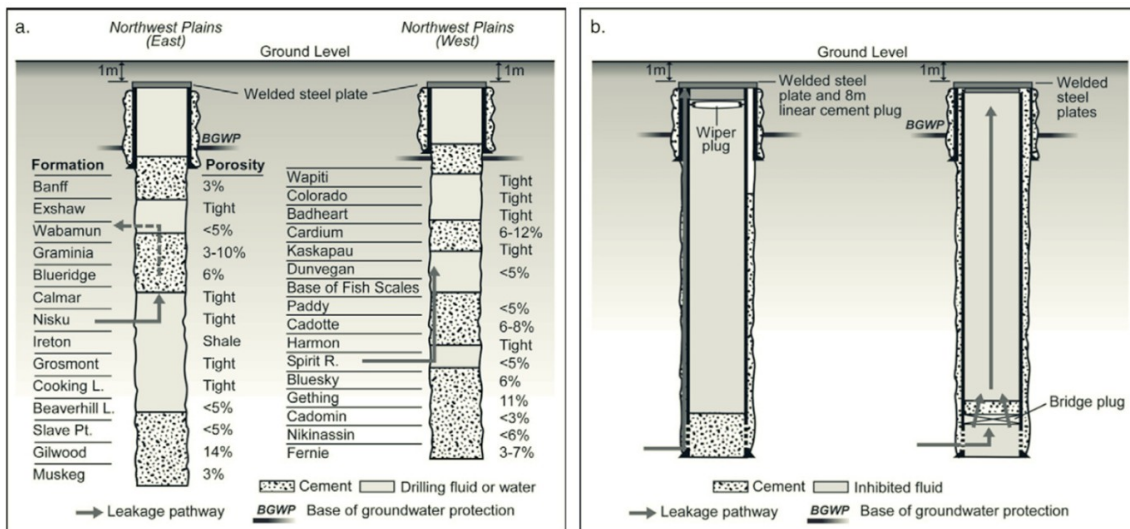
La procédure de la fracturation hydraulique (qui consiste à injecter de l'eau à haute pression dans la formation géologique contenant du gaz) peut également causer une augmentation de pression dans les formations géologiques et faciliter la migration des fluides de fracturation ou de formation le long des puits abandonnés situés à proximité du puits d'injection. De tels cas ont été signalés en Alberta (*Willard, 2012*), y compris un cas récent dans lequel la fracturation hydraulique dans un puits aurait provoqué une fuite d'huile dans un puits voisin abandonné (*Calgary Herald, 2012*).

La Figure 3 illustre un exemple typique d'abandon de puits après l'exploration (Figure 3a) ou l'épuisement du réservoir (Figure 3b) et les chemins de fuites potentiels pour chacun de ces cas. Comme le montre cette figure, il existe deux méthodes d'abandon des puits du gaz et du pétrole (*Watson et Bachu, 2009*) :

- *Puits foré et abandonné* (Figure 3a): Ces puits doivent être colmatés conformément aux normes provinciales. Le colmatage devrait se faire le plus tôt possible après la mise hors service du puits. Le colmatage consiste à isoler toute zone poreuse par des bouchons de ciment afin de prévenir tout mouvement de liquide vers le haut ou vers le bas et ainsi éviter la contamination des nappes d'eau souterraines et les éruptions potentiellement dangereuses à la surface. Il

existe également un autre type de colmatage, qui nécessite une plus grande quantité de ciment mais qui est parfois plus simple sur le plan technique, et qui consiste à injecter du ciment sous pression dans la totalité du trou de forage, à partir du fond vers le haut du puits.

- *Puits foré, coffré, complété et abandonné* (Figure 3b): Ces puits doivent être également abandonnés selon les normes provinciales énoncées dans la Loi sur les ressources en pétrole, en gaz et en sel. Le processus d'abandon consiste à obturer un puits en plaçant dans le coffrage de production des bouchons mécaniques ou en ciment, à des profondeurs stratégiques pour séparer diverses zones et les sceller en permanence. Le processus permet d'empêcher que des fluides, notamment du pétrole, du gaz naturel ou de la saumure, s'échappent du puits. Également, le tubage de production doit être rempli par un fluide inhibé avec une pression minimale de 7000 kPa.



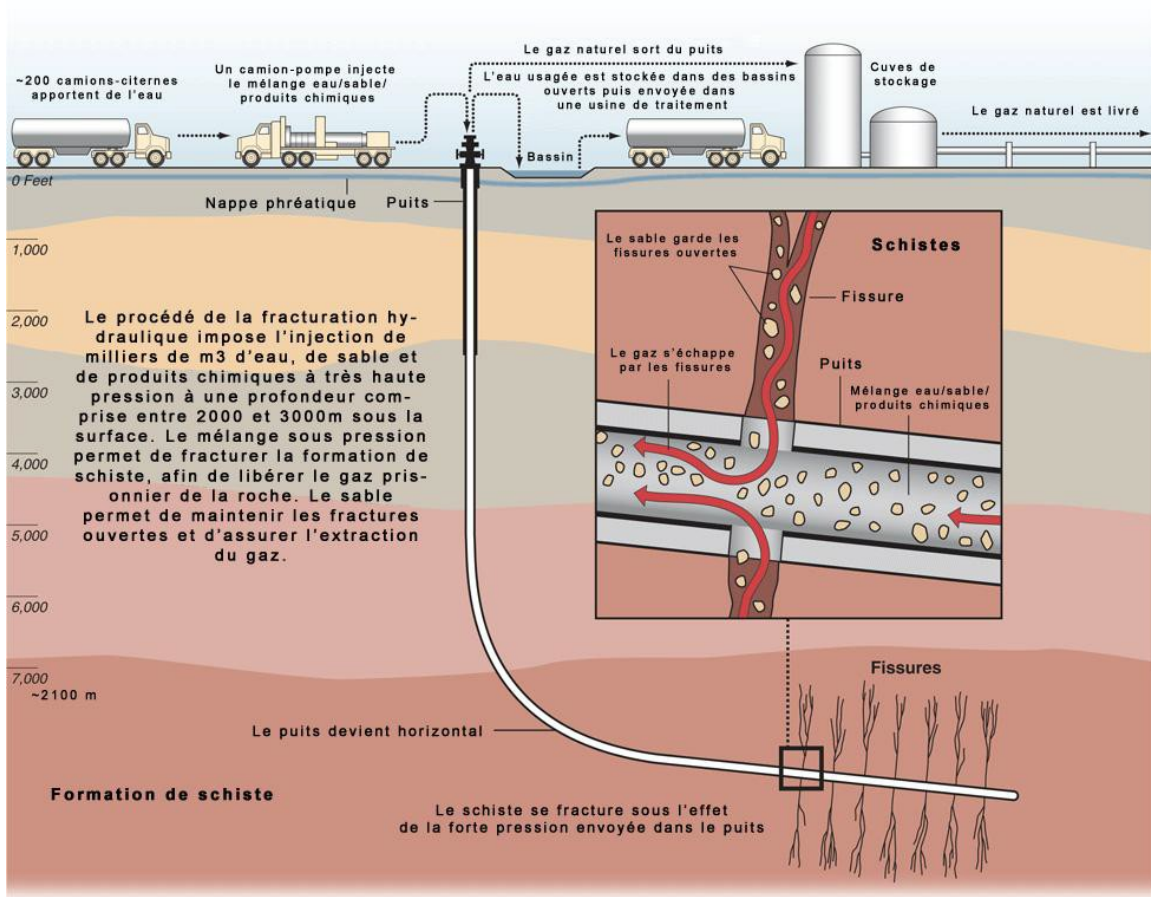
**Figure 3.** Fuite de gaz naturel le long des puits abandonnés. a) Puits foré et abandonné. b) Puits foré, coffré, complété et abandonné. Pour chaque cas, les chemins de fuites potentiels sont présentés par des flèches. (*Watson et Bachu, 2009*).

## 2.2 Migration des fluides dans des failles et des fractures naturelles pendant ou après la fracturation hydraulique

Alors que la migration de gaz via des puits de production et abandonnés mal cimentés est relativement bien documentée, peu d'informations sont disponibles sur le potentiel de migration de gaz suite à la fracturation hydraulique par des systèmes de fractures naturelles.

La fracturation hydraulique (Figure 4) est un procédé essentiel à l'extraction du gaz naturel dans des formations géologiques peu perméables telles que le schiste. Dans l'Ouest canadien, l'industrie utilise cette technologie depuis plus de 60 ans en géothermie, pour la stimulation des puits d'eau souterraines afin d'améliorer leurs débits.

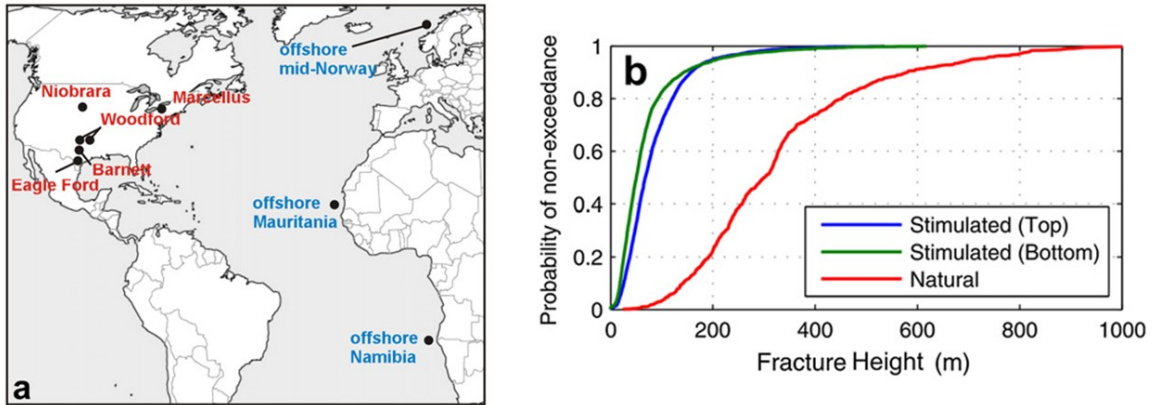
La fracturation hydraulique est, par définition, une forme d'activité sismique induite. Cette activité sismique est généralement souterraine et rarement ressentie à la surface. Pour assurer la sécurité de la fracturation hydraulique, les micro-séismes associés à cette procédure peuvent être enregistrés par des capteurs micro-sismiques. Ces données, s'ils représentent uniquement la création/propagation des fractures et non d'autres sources d'événements micro-sismiques comme les bruits en surface ou en profondeur, peuvent être utilisées pour estimer l'extension des fractures produites par le mécanisme de fracturation hydraulique. Dans une étude récente, *Davies et al., (2012)* ont comparé les données sismiques obtenues pour cinq shales aux États-Unis (Eagle Ford, Woodford, Barnett, Marcellus et Niobrara) avec les données sismiques préexistantes de trois sites en mer de gaz et de pétrole conventionnel (Norvège, Mauritanie et Namibie ; Figure 5). Leur analyse indique qu'une longueur maximale de fracture d'environ 590m pourrait être produite par la fracturation hydraulique (courbes bleues et vertes sur la Figure 5b). Cependant, en comparant les courbes bleues ou vertes (fractures stimulées) avec la courbe rouge (fractures naturelles), nous constatons que la probabilité pour que l'extension verticale des fractures stimulées dépassant une hauteur de 350m est de moins de 1%, alors que cette probabilité est de 33% pour les fractures naturelles. Ces résultats renseignent sur les dimensions probables des fractures induites par la fracturation hydraulique.



**Figure 4.** Schéma du procédé de la fracturation hydraulique. (ProPublica [www.propublica.org/article/anatomy-of-a-gas-well-426](http://www.propublica.org/article/anatomy-of-a-gas-well-426)).

Il a été suggéré que la contamination des eaux souterraines peu profondes peut se produire par la migration du gaz et des fluides de formation après la stimulation par fracturation hydraulique (Myers, 2012; Gassiat et al., 2013). En effet, dans un massif rocheux, la présence de fractures et, encore plus, de failles peut servir de chemin préférentiel à l'écoulement de fluides si les conditions hydrauliques le permettent (e.g. Gurevich et al., 1993). Quelques exemples de ces chemins structuraux sont déjà identifiés dans la région des Appalaches (Beebe et Rauch, 1979; Harrison, 1983; Rauch, 1983). Également, des études récentes de la migration de gaz thermogénique à New York et en Pennsylvanie (Fountain et Jacobi, 2000; Molofsky et al., 2011; Osborn et al., 2011) impliquent la migration de gaz le long des fractures naturelles comme source de pollution pour les eaux souterraines peu profondes. Cependant, à une échelle locale ou régionale, sans avoir des informations pertinentes sur les zones fracturées par la fracturation hydraulique et sur les caractéristiques des fractures naturelles et des failles (géométrie et propriétés hydrauliques), il sera impossible de juger et d'estimer le rôle exact de ces voies dans la contamination des ressources en eau souterraine.

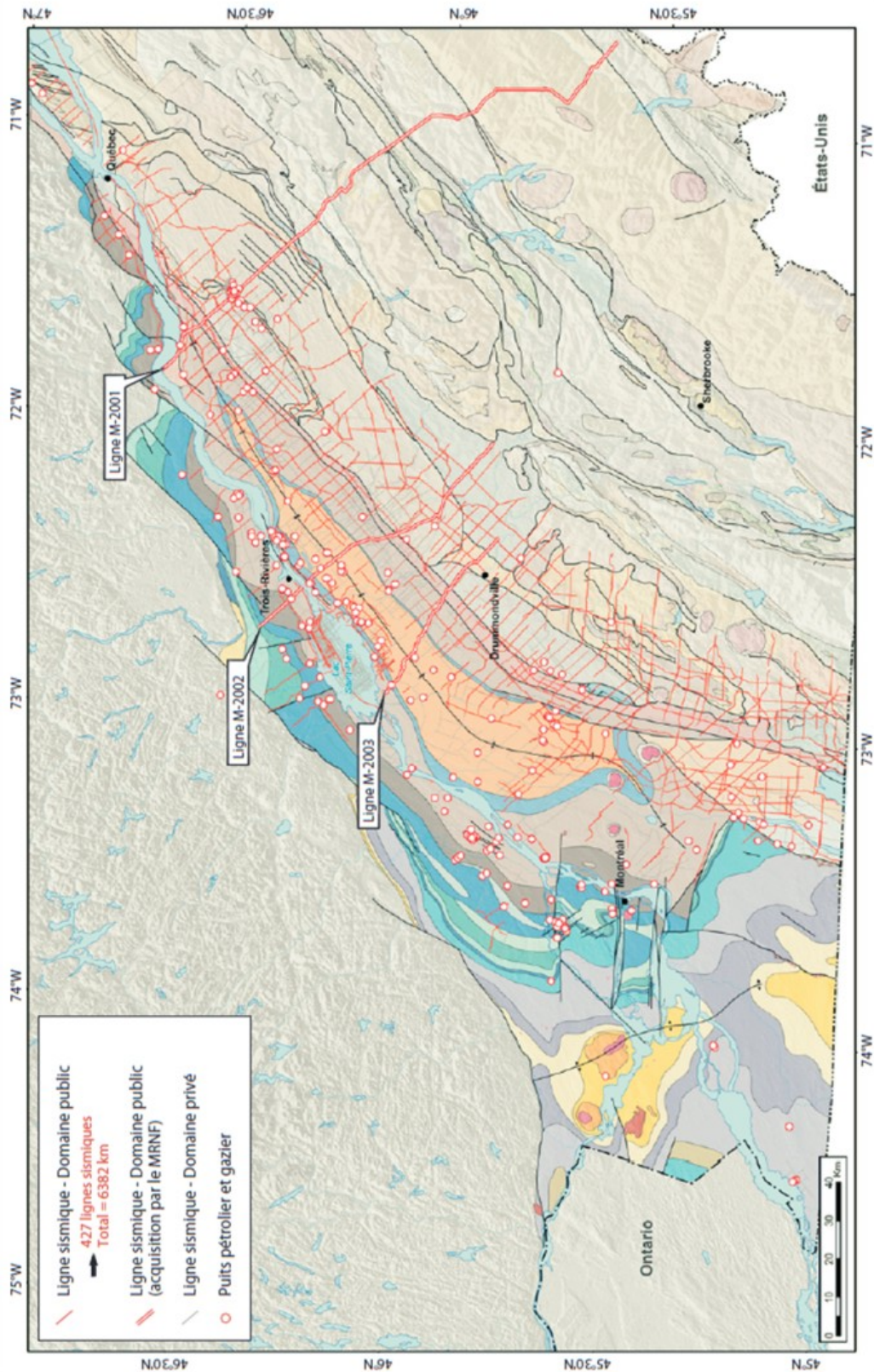


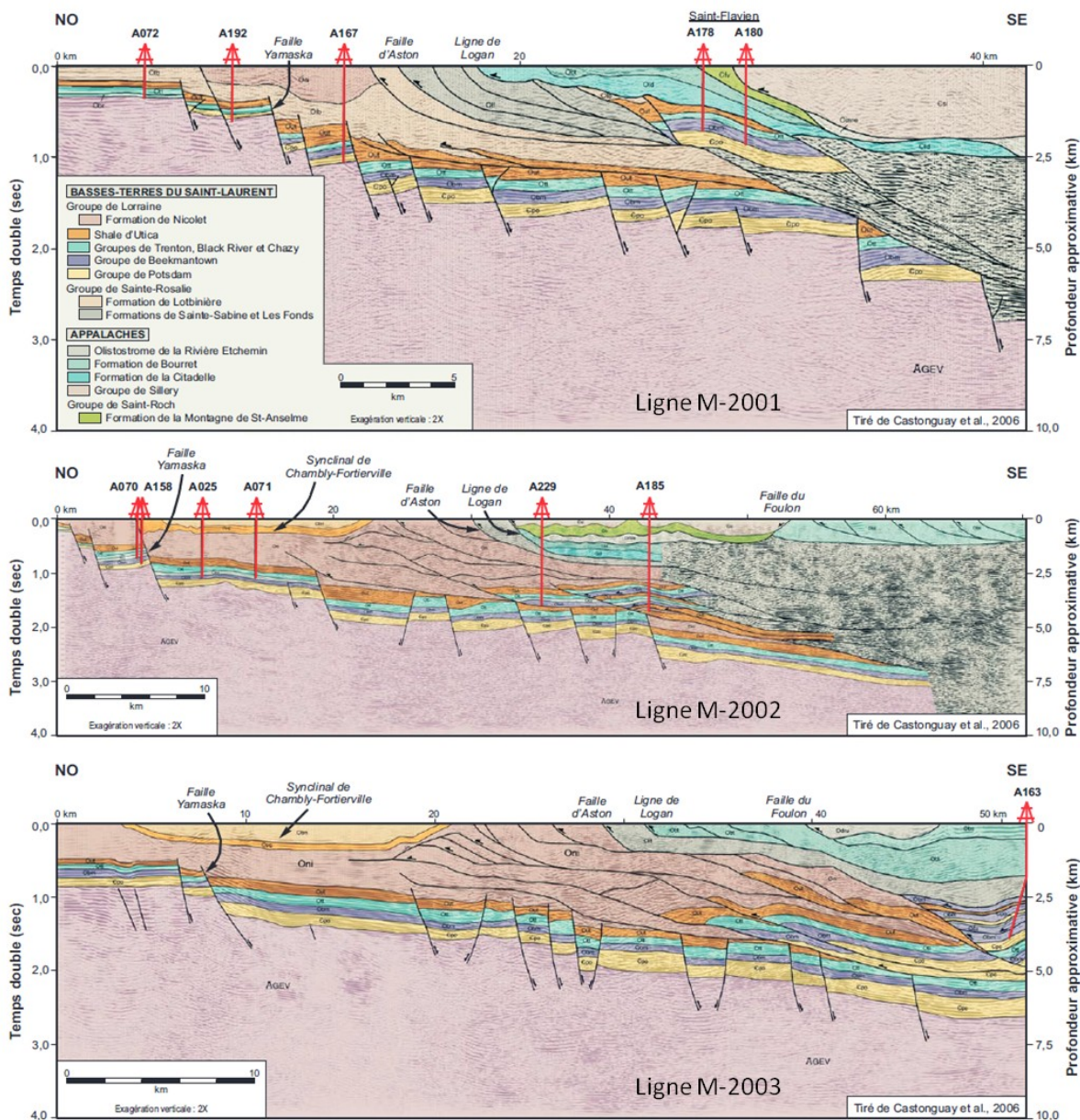


**Figure 5.** a) Sites étudiés par *Davies et al. (2012)* : cinq shales aux États-Unis (Eagle Ford, Woodford, Barnett, Marcellus et Niobrara) et trois sites en mer de gaz et de pétrole conventionnel (Norvège, Mauritanie et Namibie). b) la probabilité de non-dépassement de la longueur des fractures stimulées et naturelles.

En ce qui concerne la zone d'exploitation de gaz de shale au Québec, il n'y a pas présentement d'étude précise sur l'évaluation de la migration du gaz et des fluides de formation le long des fractures naturelles et, plus particulièrement, des failles (les travaux de *Thériault, (2008,2012)* indiquent une forte présence de puits gazifères autour de la faille Yamaska). Dans l'une des rares études, *Hardy et Lamothe (1997)* rapportent que le gaz naturel retrouvé à la base des dépôts meubles près de Pointe-du-Lac et de Yamachiche serait d'origine thermogénique et qu'il pourrait avoir migré du shale d'Utica le long des failles, pour ensuite se retrouver dans un dépôt granulaire de sable reposant sur le shale d'Utica et recouvert par des dépôts argileux (réservoir de Pointe-du-Lac exploité par Intragaz). Il est important de noter que cette étude est réalisée antérieurement à l'exploration du gaz de schiste au Québec. Ainsi, la migration du gaz n'est pas liée aux activités de la fracturation hydraulique.

Cependant, les profils de sismique réflexion M-2001, 2002 et 2003 (Figure 6) interprétés par *Castonguay et al. (2006)* et les résultats des études récentes sur la stabilité mécanique des failles durant la procédure de l'injection du CO<sub>2</sub> (*Konstantinovskaya et al., 2012; Konstantinovskaya et al., soumis*) fournissent des informations sur les caractéristiques géométriques et hydrauliques (extension, porosité et perméabilité) des failles dans les Basses-Terres de Saint-Laurent. Ces résultats seront utilisés dans la pour étudier la possibilité de la migration du gaz le long d'une faille.





**Figure 6.** Lignes sismiques M-2001, 2002 et 2003 interprétées par *Castonguay et al. (2006)*. Les lignes illustrent le style structural dans la région d'intérêt, la position des failles ainsi que la position stratigraphique du Shale d'Utica.

### 3. SCÉNARIOS ET MODÈLES CONCEPTUELS RETENUS

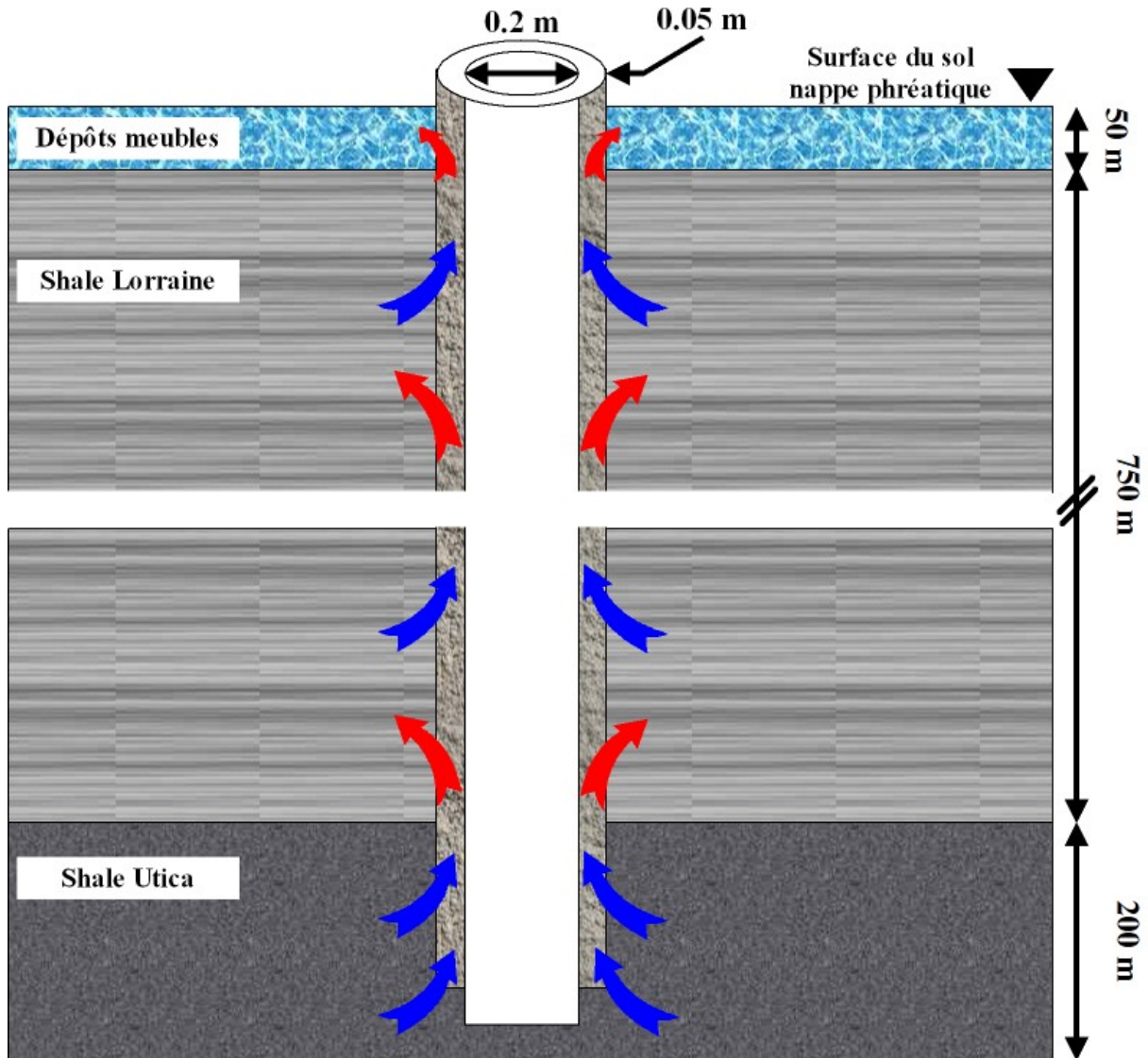
Suite à l'analyse des problématiques environnementales rapportées dans la littérature et compte tenu des contraintes temporelles reliées à la réalisation de cette étude, il a été convenu, en concertation avec le comité de l'ÉES, de s'intéresser uniquement à deux problématiques particulières, soit la conception et l'intégrité d'un puits de production abandonné et à la migration du gaz et des fluides de formation le long d'une faille dans son état naturel et pendant la fracturation hydraulique. Cette section présente les deux scénarios retenus ainsi que les modèles conceptuels correspondants.

#### 3.1 Scénario 1 - Puits abandonné

Le premier scénario considéré vise à étudier le comportement à long terme d'un puits d'exploitation de gaz de shale abandonné. Plus particulièrement, nous allons étudier le rôle de la qualité de la cimentation de l'annulaire entre le coffrage de production et la formation géologique sur les fuites éventuelles de gaz et des fluides de formation vers un aquifère superficiel à nappe libre.

Un schéma illustrant le modèle conceptuel considéré dans ce scénario est représenté sur la Figure 7. Le puits est situé dans une succession de trois couches géologiques dont l'épaisseur totale est de 1000 m constituée de la base vers le sommet de : Shale d'Utica, Groupe de Lorraine et des dépôts meubles perméables. Le Shale d'Utica est situé à la base de la séquence avec une épaisseur de 200 m. Le groupe de Lorraine se situe au-dessus du Shale d'Utica avec une épaisseur de 750 m. Les 50 m restant représentent les dépôts meubles. La surface du modèle représente la surface du sol. Dans ce modèle conceptuel, le shale d'Utica se retrouve donc à 800 m de profondeur. Il s'agit d'une valeur conservatrice basée sur les travaux de [Thériault \(2012\)](#) qui indique que le toit du Shale d'Utica se retrouve à moins de 800 m de profondeur dans le corridor 1 et à moins de 1200 m de profondeur dans le corridor 2 de l'exploration du gaz de schiste (Figure 2).

Seule la partie verticale du puits est considérée puisque c'est dans cette partie que les fuites vers les aquifères superficiels peuvent se produire. Le diamètre externe du coffrage est de 0.2 m, ce qui correspond au diamètre moyen des coffrages de production des puits gaziers à cette profondeur. La profondeur du puits est de 950 m, ce qui signifie que le puits se termine à 50 m au-dessus de la base du shale d'Utica. L'épaisseur du ciment dans l'espace annulaire entre le coffrage et la formation est de 0.05 m. Comme le montre la Figure 7, nous prenons en compte la migration des fluides entre le ciment et les couches géologiques, ce qui exclut l'intérieur du coffrage. De plus, même si les puits sont généralement composés de plusieurs coffrages (production, intermédiaire et de surface), nous considérons que la migration des fluides va se produire à l'extérieur de chacun de ces coffrages. Ainsi, seul un coffrage est représenté, même s'il s'agit d'une simplification de la réalité.



**Figure 7.** Modèle conceptuel du scénario 1 : puits de production abandonné (cas 1). Les flèches indiquent l'échange de masse entre le ciment et les couches géologiques (pas d'échange avec l'intérieur du coffrage).

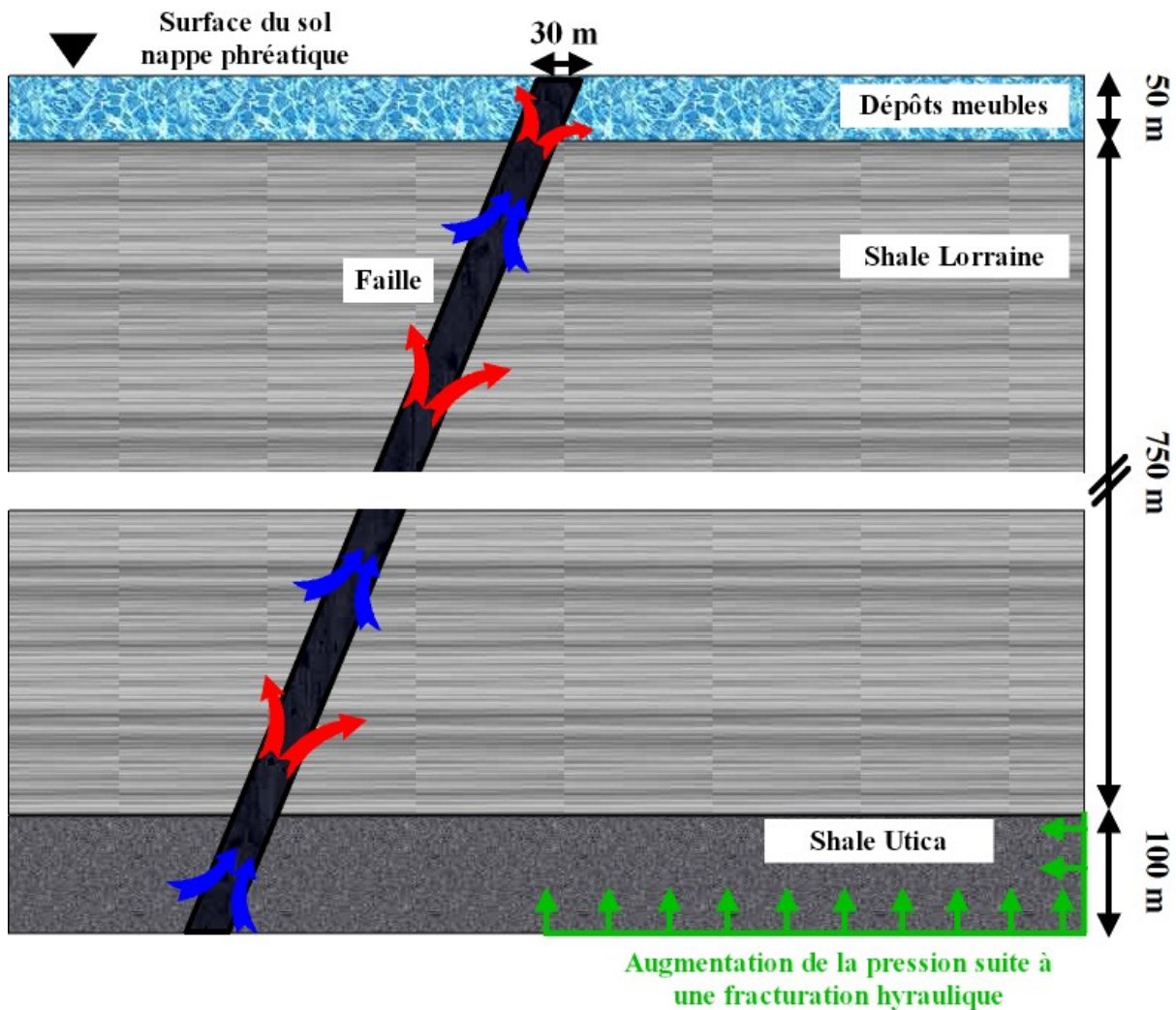
### 3.2 Scénario 2 - Migration du gaz et des fluides de formation le long des failles

Le second scénario vise à étudier l'influence de la fracturation hydraulique sur la migration du gaz et des fluides de formation le long d'une faille. Plus particulièrement, nous visons à évaluer si les failles des Basses-Terres du Saint-Laurent peuvent représenter des chemins préférentiels de migration sur une échelle de temps à moyen terme suivant une opération de fracturation hydraulique (100 ans).

Un schéma illustrant le modèle conceptuel considéré dans ce scénario est représenté sur la Figure 8. Comme le scénario précédent, trois couches géologiques sont

considérées : Shale d'Utica, Groupe de Lorraine et dépôts meubles. La profondeur maximale est de 900 m. Seule la moitié supérieure du shale d'Utica est prise en compte (une épaisseur de 100 m). Le groupe de Lorraine et les dépôts meubles ont une épaisseur de 750 m et 50 m, respectivement. Une faille avec une épaisseur constante de 30 m traverse les formations géologiques. Ce choix s'appuie sur les travaux de *Konstantinovskaya et al., (2012)*.

Dans ce scénario, on considère une augmentation de la pression dans une partie du shale Utica (indiquée en vert dans la Figure 8) suite à une activité de la fracturation hydraulique voisine et on étudie la migration du gaz et des fluides de formation le long de la faille.



**Figure 8.** Modèle conceptuel du scénario 2 : migration du gaz et des fluides de formation le long des failles. Les flèches indiquent l'échange de masse entre le ciment et les couches géologiques (pas d'échange avec l'intérieur du coffrage).



#### 4. MODÈLE MATHÉMATIQUE ET NUMÉRIQUE

Le code retenu pour réaliser les simulations numériques est le code DuMux (*Flemisch, 2011*) qui est un code ouvert distribué librement. Le modèle mathématique sur lequel repose le code DuMux est présenté à l'Annexe A. DuMux est un simulateur d'écoulement multiphase multi-constituant non-isotherme et de transport en milieux poreux basé sur la méthode des éléments finis et des volumes de contrôle. Il est développé comme un module externe de DUNE (Distributed and United Numerics Environment), un outil générique de résolution des équations différentielles (*Bastien et Helmig, 1997*). La version 4.2 a été utilisée pour la réalisation de cette étude (téléchargeable à l'adresse suivante <http://www.dumux.org/>).

Le modèle DuMux est principalement utilisé pour l'étude de la séquestration géologique du CO<sub>2</sub>. Afin de rendre le modèle applicable à cette étude, le système de fluide utilisé par DuMux a dû être modifié afin d'inclure les propriétés du méthane, de la saumure (également considéré comme le fluide de la fracturation hydraulique dans les modélisations du scénario 2) ainsi que du mélange entre ces fluides. Les détails du système de fluide utilisé dans le cadre de cette étude seront présentés dans la section 6.3 et à l'Annexe B.



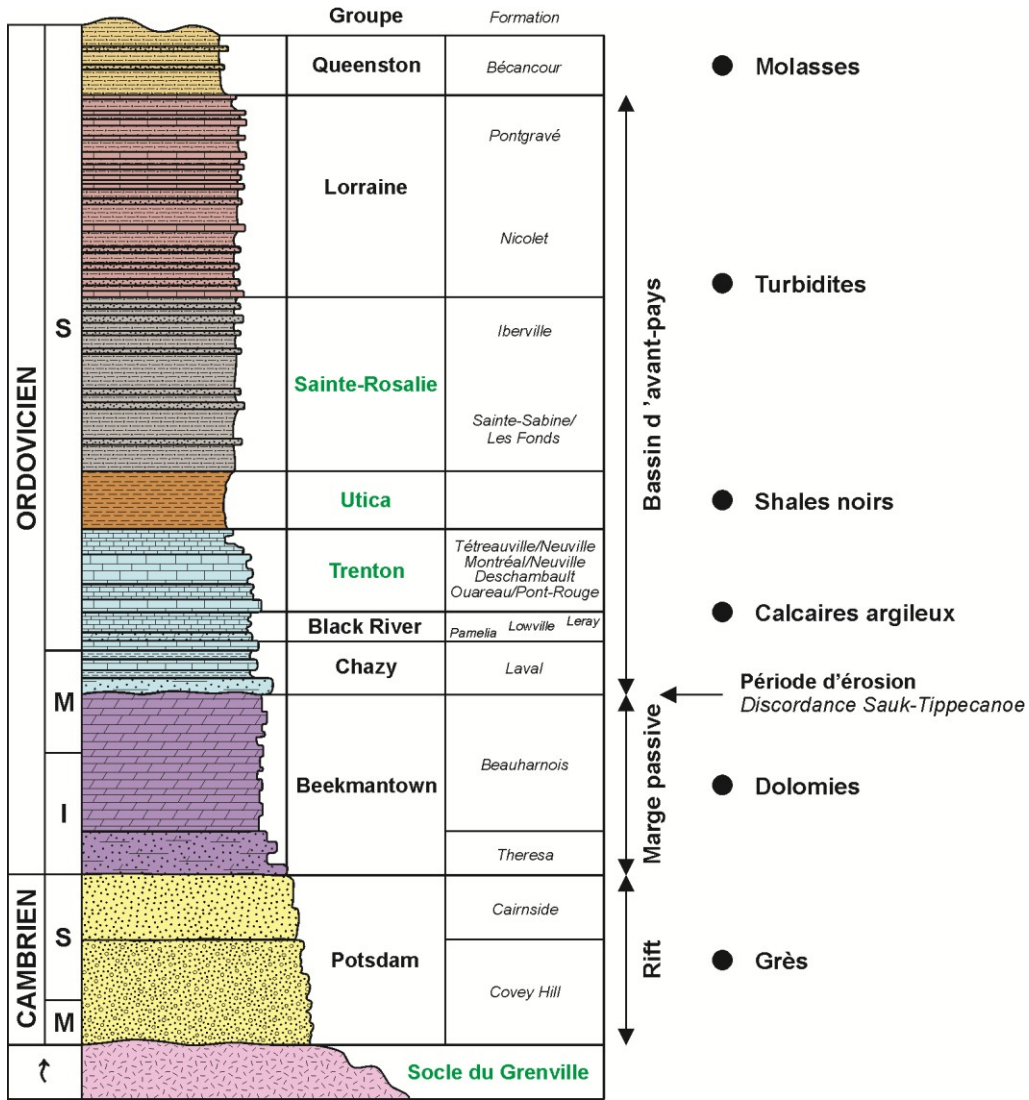


## **5. PROPRIETES HYDRODYNAMIQUES**

Dans cette section nous présentons d'abord les propriétés hydrauliques du Shale d'Utica, du Groupe de Lorraine ainsi que celles du ciment utilisé dans les puits pétroliers. Les propriétés des dépôts meubles ne sont pas présentées car ceux-ci ne sont pas représentés explicitement dans le modèle (voir section 6). Nous présentons ensuite les propriétés thermodynamiques des fluides de formation (saumure), du méthane ainsi que leur mélange.

### **5.1 Shale d'Utica et Groupe de Lorraine**

La stratigraphie simplifiée des Basses-Terres du Saint-Laurent est représentée sur la Figure 9. Les unités géologiques rencontrées dans les Basses-Terres sont le Groupe de Queenston, Groupe de Lorraine, Utica, Trenton, Black River, Chazy et de Beekmantown. Dans cette section, on s'intéresse plus particulièrement aux propriétés hydrodynamiques des unités de Groupe de Lorraine (shale silteux avec de minces lits de grès à grains fins et un peu de calcaire à sa base) et d'Utica (shale calcaireux de couleur foncée avec de minces interlits de calcaire).



**Figure 9.** Colonne stratigraphique des Basses-Terres du Saint-Laurent (Comeau *et al.*, 2013).

Il existe peu d'information disponible sur les propriétés hydrauliques du Shale d'Utica et les unités sus-jacentes. Toutefois, il existe quelques rapports et publications (*Lavoie et al., 2011; Konstantinovskaya et al., 2012; Séjourné et al., 2012*) que nous utiliserons comme références principales.

Ces données sont principalement issues des analyses diagaphiques réalisées en forage et d'analyses de laboratoire réalisées sur des carottes prélevées en forage par les compagnies pétrolières. Un sommaire des résultats de ces analyses est présenté dans le Tableau 1. Les résultats de porosité et de perméabilité publiés dans *Lavoie et al. (2011)* pour le shale d'Utica et dans *BAPE (2010)* pour le shale d'Utica et le Groupe de Lorraine sont également présentés dans ce tableau. Le faible nombre de données

disponibles et l'importante variabilité pour chacune des propriétés, probablement due à l'hétérogénéité des dépôts sédimentaires, ne permettent pas de réaliser une analyse statistique et de définir des valeurs moyennes représentatives pour les Basses-Terres du Saint-Laurent. Cependant, ces données peuvent être utilisées pour quantifier l'ordre de grandeur des paramètres nécessaires pour les simulations numériques.

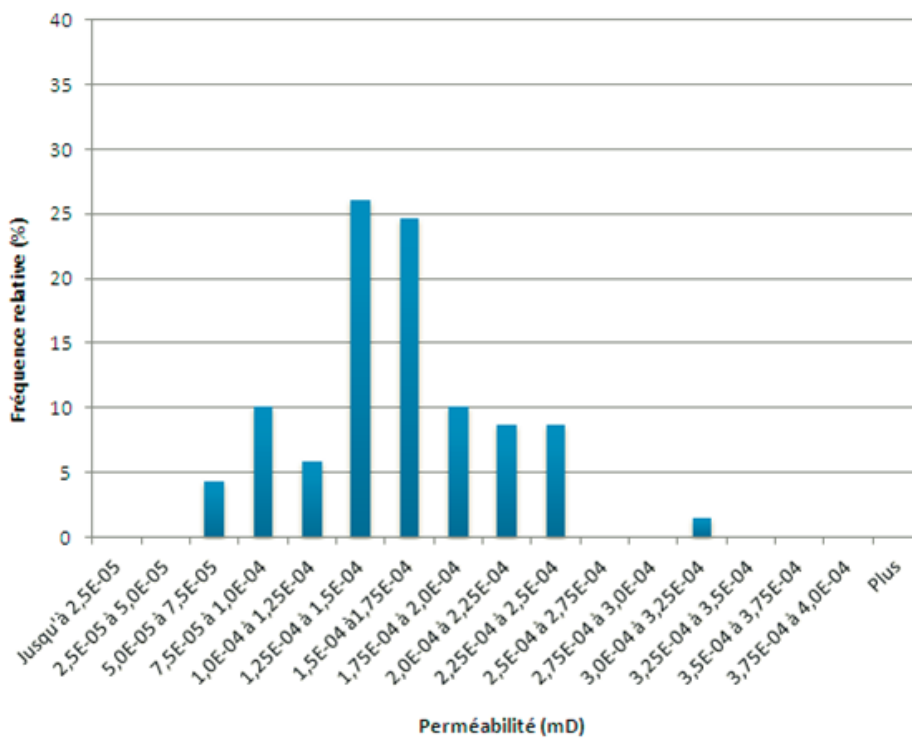
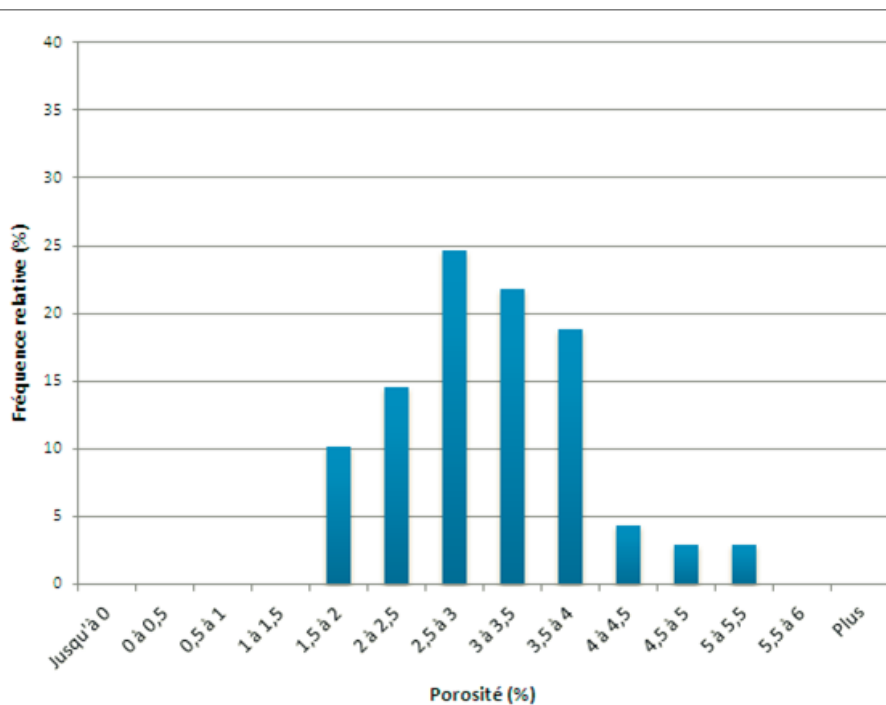
L'analyse des sources d'information sur les propriétés hydrodynamiques des shales disponibles dans la littérature montre que ce sont les analyses sur les carottes qui sont les plus fréquentes. En plus des données disponibles dans le cadre de cette étude, nous avons procédé à l'analyse de la porosité au laboratoire pour trois échantillons de shale récupérés à la carothèque du Ministère des Ressources naturelles (Figure 11). La porosité a été mesurée à l'aide de deux méthodes différentes :

- *Porosimétrie par intrusion de mercure*. Cette méthode permet d'obtenir en plus de la porosité, la distribution de la taille des pores et la densité apparente. Tandis que l'intrusion de mercure dans les macropores se produit déjà à basse pression, une pression plus élevée est nécessaire pour forcer l'intrusion de mercure dans les plus petits pores. De cette façon, une vaste étendue dynamique de la taille des pores peut être mesurée et une distribution de taille de pore peut être obtenue à partir de 0.004  $\mu\text{m}$  (à une pression de 400 MPa) jusqu'à environ 800  $\mu\text{m}$  (sous vide). La porosimétrie au mercure convient particulièrement aux matériaux dont la distribution des pores est très étendue ou composés principalement de macropores. La distribution de la taille des pores dans les shales varie généralement de 0.005  $\mu\text{m}$  (proche de la résolution supérieure de ce méthode) à 0.1  $\mu\text{m}$  (e.g., [Nelson, 2009](#)). Par conséquent, cette méthode peut éventuellement sous-estimer la porosité réelle des échantillons. Les mesures de la porosimétrie par intrusion de mercure ont été effectuées sur un AutoPore IV 9500 V1.05 du Micrometrics Instrument Corporation au département de géologie et de génie géologique de l'Université Laval.
- *Pycnomètre à gaz*. Cette méthode consiste à mesurer la densité précise du solide à l'aide d'un gaz (azote dans le cadre de cette étude). Puisque l'azote, qui peut entrer dans les moindres pores, est utilisée pour mesurer le volume inconnu d'un matériel ayant un certain poids, le résultat final est souvent évoqué comme correspondant à la densité de la matrice (skeletal density). En combinant les résultats de cette technique de pycnométrie avec les valeurs de densité apparente (Envelope density) issues de la porosimétrie au mercure, des informations sur la porosité peuvent également être obtenues. Les mesures de densité par pycnométrie à l'azote ont été effectuées sur un Quantachrome penta pycnomètre (UltraFoam™ Automatic Gas Pycnometer) au département de chimie de l'Université Laval.

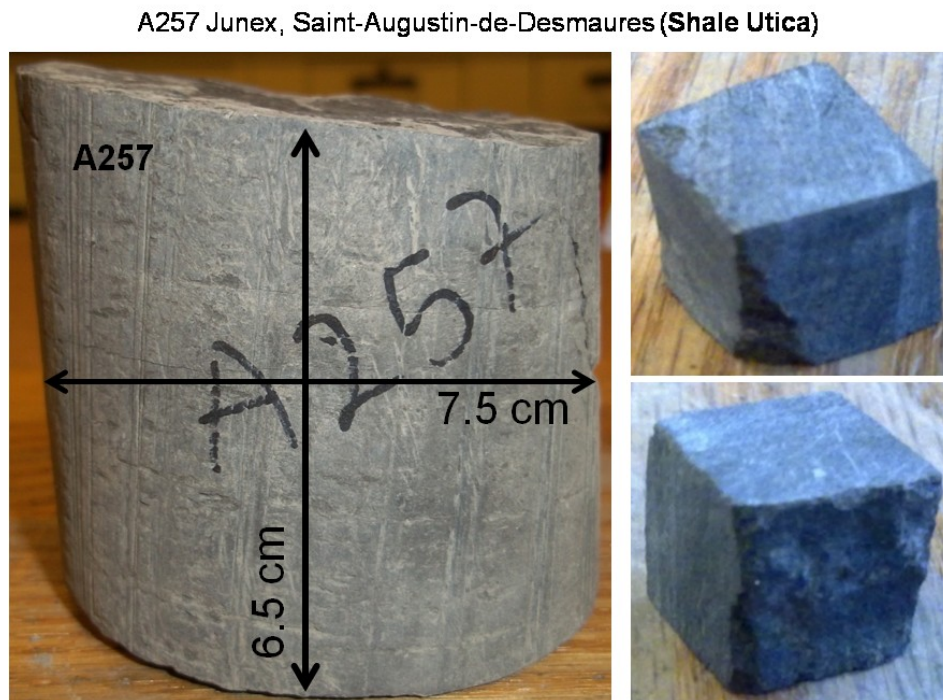
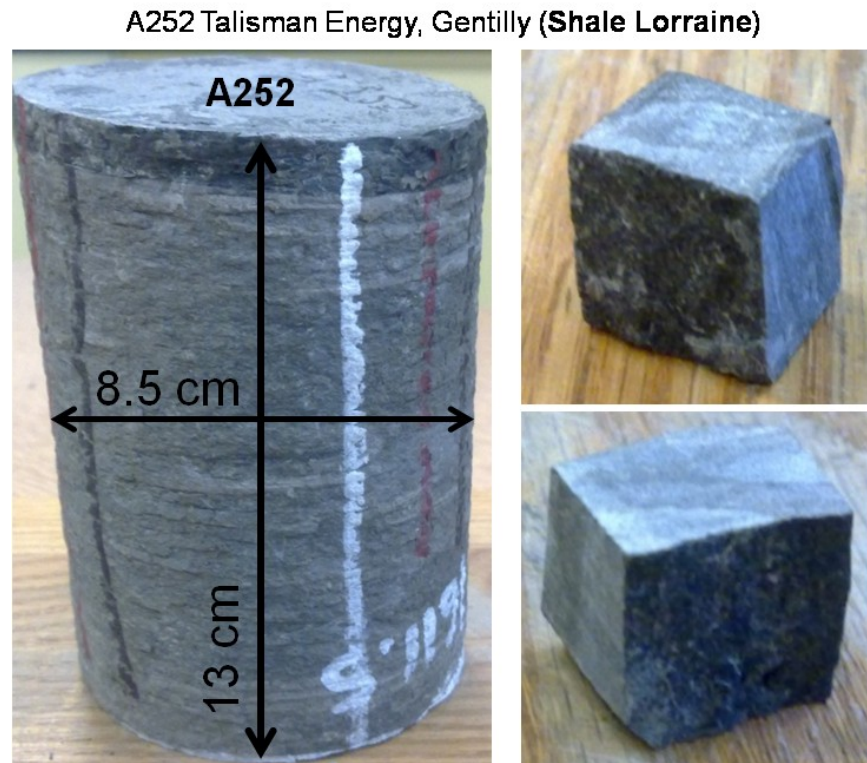
Les échantillons proviennent des puits A252, A257 et A262 et ont été prélevés à des profondeurs de 1600, 480 et 1630 m. Les porosités obtenues par la porosimétrie au

mercure (A252 = 2.7%, A257 = 3.4% et A262 = 3.0%) et par le pycnomètre au gaz (A252 = 5.9%, A257 = 7.3% et A262 = 6.8%) sont présentées dans le Tableau 1. Comme nous pouvons le constater, il existe une différence relativement importante entre les porosités mesurées par ces deux méthodes (un rapport d'environ de 2 entre les mesures effectuées par la porosimétrie au gaz et au mercure). Cette différence peut être expliquée par la présence de plusieurs pores inaccessibles au mercure dans les échantillons (taille de pore inférieure à 0.004  $\mu\text{m}$ ). Un rapport similaire de 1.5 entre ces deux méthodes est également obtenu dans une étude similaire réalisée sur les échantillons du shale Barnett aux États-Unis (*Sigal, -*).

Considérant l'ensemble des résultats présentés auparavant, quelques conclusions peuvent être tirées afin d'alimenter le modèle numérique : 1) Les shales de Lorraine et d'Utica semblent avoir des porosités et des perméabilités comparables. La porosité moyenne pour les shales de Lorraine et d'Utica est de 3.5%. La moyenne individuelle est de 3.7% pour le shale de Lorraine et de 3.5% pour le shale d'Utica. La perméabilité moyenne pour le shale de Lorraine est de  $8.79 \times 10^{-2}$  mDarcy (en tenant compte de toutes les valeurs) et de  $1.28 \times 10^{-4}$  mDarcy (en excluant les valeurs obtenues pour les puits A168 et A183 à cause de leurs grandes différences par rapport aux autres valeurs) et la perméabilité moyenne pour le shale d'Utica est de  $8 \times 10^{-3}$  mDarcy (en tenant compte de toutes les valeurs) et de  $6 \times 10^{-4}$  mDarcy (en excluant les valeurs de  $10^{-2}$  et  $8 \times 10^{-2}$  mDarcy rapportées par *Lavoie et al., (2011)*). 2) La saturation en eau moyenne dans les shales de Lorraine et d'Utica est de 47% (une saturation en gaz de 53%). Cependant, les mesures sont uniquement effectuées pour les échantillons prélevés en profondeur (1280 - 2590 m) et ne permettent pas de définir la saturation pour les couches moins profondes (< 1280 m). 3) Sauf pour la porosité, on trouve des valeurs très proches entre la perméabilité et la saturation en eau pour le shale Marcellus aux États-Unis et les shales de Lorraine et d'Utica.

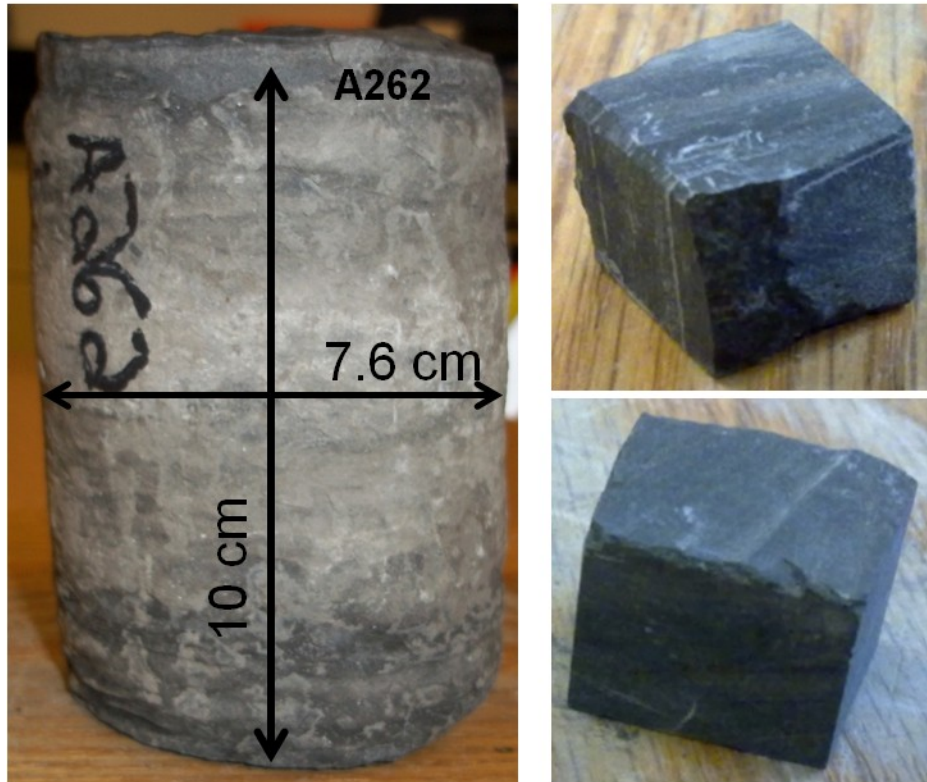


**Figure 10.** Histogrammes de distribution de la porosité et de la perméabilité du shale d'Utica (*Duchaine et al, 2013*).



**Figure 11.** Photos des échantillons de shale d'Utica et du Groupe de Lorraine. A gauche : les trois échantillons du shale récupérés à la carothèque du Ministère des Ressources naturelles. A droite : les six morceaux cubiques utilisés pour les analyses de la porosimétrie au mercure et au gaz (0.01m × 0.01m × 0.01m).

A262 Junex, Bécancour (Shale Utica)



**Figure 11. (suite)** Photos des échantillons du Shale d'Utica et du Groupe de Lorraine. A gauche : les trois échantillons du shale récupérés à la carothèque du Ministère des Ressources naturelles. A droite : les six morceaux cubiques utilisés pour les analyses de la porosimétrie au mercure et au gaz ( $0.01\text{m} \times 0.01\text{m} \times 0.01\text{m}$ ).

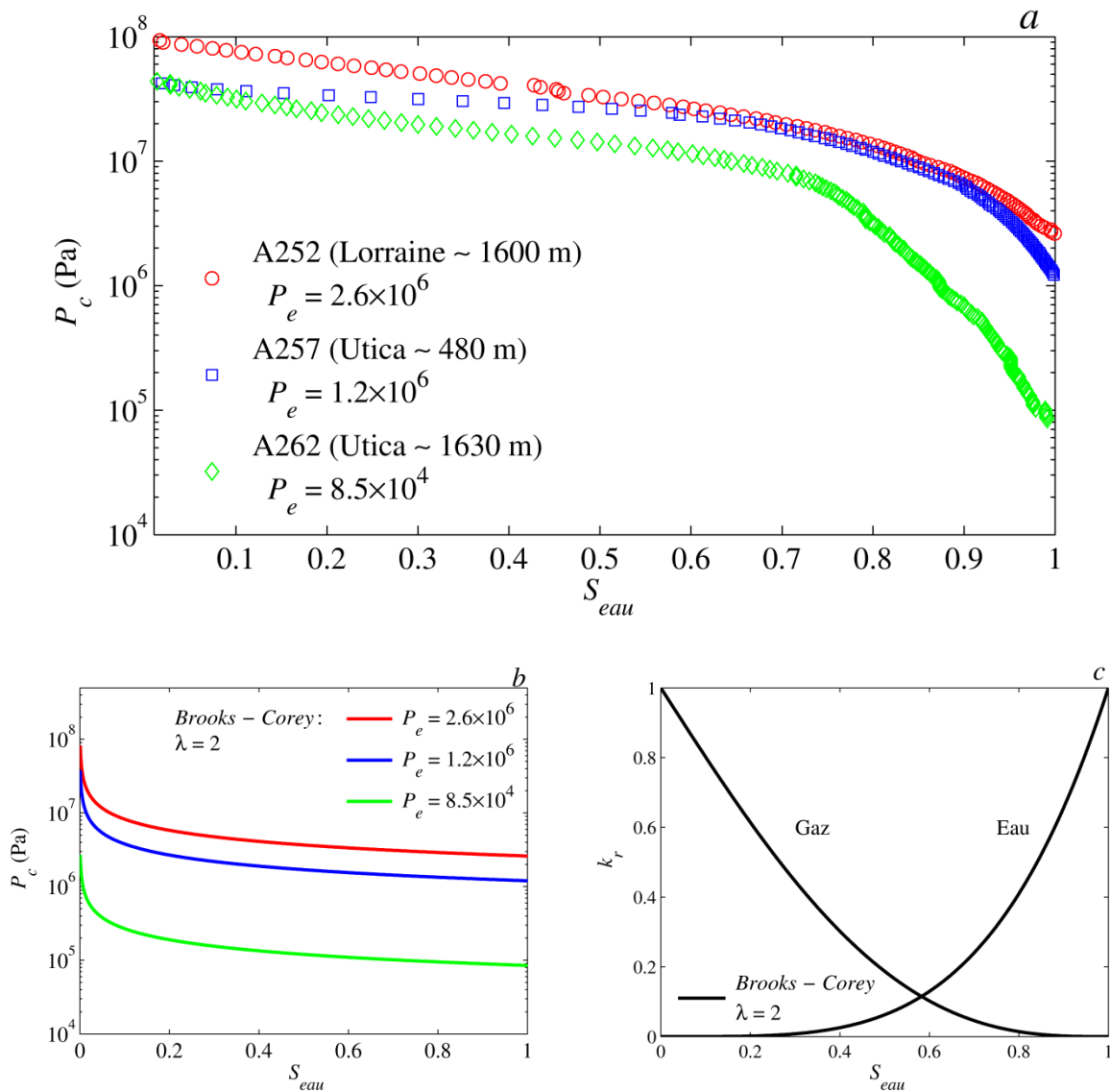
En ce qui concerne les propriétés diphasiques (pression capillaire et perméabilité relative), aucune publication ne semble être disponible pour les shales de Lorraine et d'Utica. La réalisation des simulations nécessite néanmoins une connaissance adéquate de ces propriétés. Afin de mesurer ces propriétés, nous avons développé une collaboration avec l'École Nationale Supérieure Art et Métier en France pour réaliser quelques expériences d'écoulements monophasiques avec de l'eau et diphasiques eau/méthane sur les mêmes échantillons de shale utilisés pour la porosimétrie. Malheureusement, leurs équipements actuels ne permettent pas d'obtenir une injection continue, ceci étant dû à la perméabilité très faible des échantillons. Les chercheurs de L'ENSAM tentent d'améliorer leur système d'injection pour reprendre des mesures au cours des prochains mois.

En attendant ces résultats, nous utiliserons les résultats de la porosimétrie au mercure qui peuvent être convertis en une courbe de pression des gaz en fonction de la saturation en eau (loi du *Jurin*, 1718). À partir de cette courbe, il est possible d'estimer



la pression d'entrée du gaz pour les shales. Les résultats obtenus sont présentés sur la Figure 12a. Les valeurs de la pression d'entrée ( $P_e$ ) du gaz, qui correspond à la valeur mesurée lorsque l'échantillon est complètement saturé ( $S_{eau} = 1$ ), sont également présentées sur cette figure. Pour un réservoir de gaz conventionnel, cette pression se retrouve généralement entre  $10^3$ - $10^4$  Pa. Comme nous pouvons le constater, les résultats indiquent des valeurs largement supérieures à cette limite pour nos échantillons (A252 =  $2.6 \times 10^6$  Pa, A257 =  $1.2 \times 10^6$  Pa, A262 =  $8.5 \times 10^4$  Pa). Dans une étude récente, [Amann-Hildenbrand et al., \(2012\)](#) ont également obtenu des valeurs allant de 0.1 MPa à 10 Mpa pour des échantillons de shale et grès (tight gas) très peu perméables (aucune information est révélée par ces auteurs sur l'origine des échantillons utilisés). Ce comportement est probablement dû à la faible porosité des shales et à la mauvaise connexion entre les pores. Les courbes de pression capillaire montrent un écart entre les résultats des échantillons A252 et A257 et l'échantillon A262. Cet écart est peut-être attribuable à la présence d'une fracture naturelle dans la matrice poreuse de cet échantillon. En effet, les échantillons prélevés avaient tendance à se débiter naturellement le long de plans préférentiels.

En raison de la forme atypique des courbes de pression capillaire en fonction de la saturation en eau obtenues pour nos échantillons (Figures 12a et b), il n'a pas été possible de leur faire correspondre les modèles théoriques de Brooks et Corey et Van Genuchten. Néanmoins, nous avons utilisé le modèle de Brooks et Corey en utilisant plutôt des valeurs provenant de la littérature. Parmi les modèles capillaires, le modèle de Brooks-Corey avec l'exposant  $\lambda$  compris entre 1.3 et 2 est suggéré par quelques auteurs pour les shales (e.g., [Tarek, 2006](#); [Cluff et Byrnes, 2010](#)). N'ayant pas d'autre source d'information plus précise, ce modèle est utilisé avec une valeur de  $\lambda = 2$ . Les courbes de pression capillaire et de perméabilité relative obtenues par ce modèle en utilisant les pressions d'entrée du gaz obtenues pour les trois échantillons de shale A252, A257 et A262 sont présentées sur la Figure 12b et c. Dans nos travaux futurs, nous allons tenter de faire correspondre d'autres modèles capillaires aux données obtenues (p. ex. modèle à double porosité).



**Figure 12.** a) Pression capillaire  $P_c$  de gaz mesurée en laboratoire (porosimétrie au mercure) en fonction de la saturation en eau (convertie à partir de la saturation en mercure) pour les échantillons des puits A252, A257 et A262.  $P_e$  correspond à la pression d'entrée du gaz. b) Pression capillaire obtenue par le modèle Brooks-Corey en utilisant les pressions d'entrée du gaz obtenues pour les trois échantillons de shale A252, A257 et A262 et  $\lambda = 2$ . c) Perméabilité relative obtenues par le modèle Brooks-Corey en utilisant  $\lambda = 2$ .

**Tableau 1.** Perméabilité, porosité et saturation en eau provenant des résultats d'essais aux tiges, des analyses de carottes, ainsi que des publications pour le shale d'Utica et le Groupe de Lorraine. Ces valeurs sont comparées avec les valeurs publiées pour le shale Marcellus aux États-Unis.

Unité	Profondeur (m)	Perméabilité (mD)	Porosité (%)	Saturation en eau (%)	Source
<b>Shale Utica et Lorraine (Séjourné et al., 2012)</b>					
Lorraine	1554.5 - 1602.9	$6.8 \times 10^{-1}$	-	-	Puits A168 - Essais aux tiges
Lorraine	457.2 - 533.4	$3 \times 10^{-4}$	-	-	Puits A178 - Essais aux tiges
Lorraine	1044.9 - 1244.8	$2.3 \times 10^{-2}$	-	-	Puits A183 - Essais aux tiges
Lorraine	1325 - 1340.5	$4.03 \times 10^{-12}$ - $7.71 \times 10^{-7}$	0.012 - 4.66	37.86 - 95.53	Puits A253 - Carotte
Utica	1419 - 1492	$2.36 \times 10^{-12}$ - $2.46 \times 10^{-6}$	0.16 - 2.35	31.16 - 92.17	Puits A253 - Carotte
Lorraine	1490.64 - 1502.23	$5.82 \times 10^{-7}$ - $6.74 \times 10^{-5}$	2.7 - 5.1	20 - 45	Puits A254 - Carotte
Utica	1574.48 - 1676.05	$9.62 \times 10^{-8}$ - $2.34 \times 10^{-5}$	1.3 - 4.6	12 - 63	Puits A254 - Carotte
Utica	-	$10^{-5}$ - $10^{-4}$	2 - 5.8	-	Lavoie et al. (2011)
Utica	-	$10^{-3}$ - $5 \times 10^{-3}$	2 - 5.5	-	Lavoie et al. (2011)
Utica	-	$10^{-2}$ - $8 \times 10^{-2}$	2 - 3	-	Lavoie et al. (2011)
Lorraine	1280 - 2590	$4 \times 10^{-4}$	5	45	BAPE (2010)
Utica	1280 - 2590	$3 \times 10^{-4}$	0.7 - 6.6	30	BAPE (2010)
<b>Shale Utica et Lorraine (Porosimétrie au mercure (m) et Pycnomètre à gaz(g)) (Université Laval, cette étude)</b>					
Lorraine	1600	-	$2.7^m$ - $5.9^g$	-	Puits A252
Utica	480	-	$3.4^m$ - $7.3^g$	-	Puits A257
Utica	1630	-	$3.0$ - $6.8^g$	-	Puits A262
<b>Shale Marcellus</b>					
Marcellus	2200	$6 \times 10^{-3}$ - $19 \times 10^{-3}$	10	-	Soeder, (1988)
Marcellus	753 - 1288	$4 \times 10^{-3}$ - $216 \times 10^{-3}$	< 15	50	Hill et al. (2004)
Marcellus	-	$10^{-5}$ - $10^{-2}$	10	20 - 45	Arthur et al. (2008)

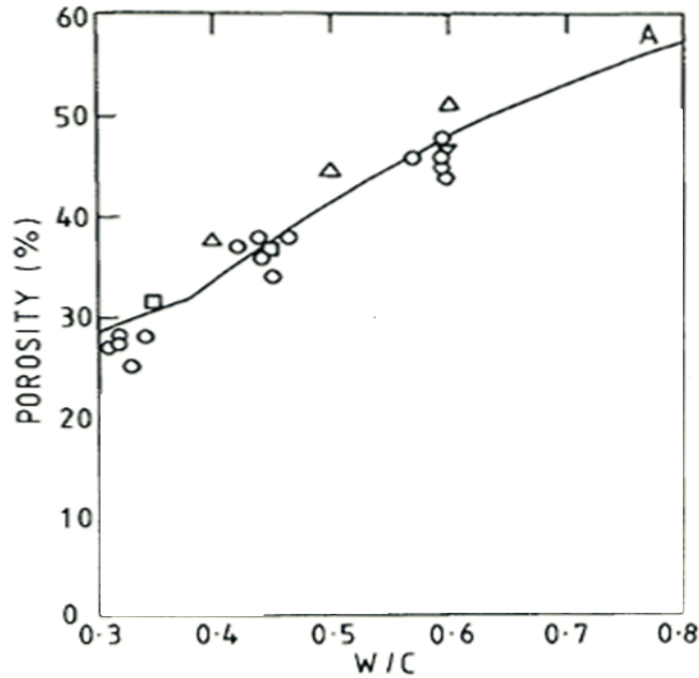
## 5.2 Ciment

Le ciment durci est un matériau homogène constitué d'une pâte formée de ciment et d'eau. Le ciment généralement utilisé dans l'industrie du pétrole est de type "Portland". Ce ciment est constitué essentiellement de silicates de calcium (alite,  $C_3S$ ) entre 50 et 70 %, silicate dicalcique (bélite,  $C_2S$ ) entre 15 et 30 %, Aluminate tricalcique (célite,  $C_3A$ ) entre 5 et 10 % et aluminoferrite tétracalcique (brownmillerite ou célite II,  $C_4AF$ ) entre 5 et 10%. En plus de ces quatre phases principales, on trouve du gypse à hauteur de 3 à 6 %. Après réaction du ciment anhydre avec l'eau, on obtient un mélange d'hydrates dont le plus important est le C-S-H, issu à la fois d'alite et de bélite, et qui représente environ 50 à 60 % du volume total. Les autres constituants sont les hydrates

de céliste et ceux de céliste II mais aussi la portlandite  $\text{Ca(OH)}_2$ . Le rapport entre la quantité de C-S-H et la quantité de portlandite formée dépend beaucoup du rapport eau/ciment lors de l'hydratation et du rapport molaire Ca/Si du coulis. De plus, l'hydratation du ciment dépend fortement des conditions de pression et de température environnante.

Le ciment, lorsqu'il est utilisé dans un puits pétrolier ou gazier, doit satisfaire à des besoins spécifiques : a) assurer un contrôle de puits efficace et éviter en tout temps la migration ascendante de fluides, et ce, malgré l'état du réservoir, b) veiller à ce que toutes les zones contenant de l'eau souterraine non salée soient isolées et scellées afin d'éviter la contamination de l'eau ou la diminution des réserves d'eau, c) veiller à ce que toutes les zones productives potentielles (les zones pouvant occasionner une pression trop élevée dans l'annulaire) ou les zones corrosives soient isolées et scellées afin d'éviter la migration verticale de fluides ou de gaz derrière le tubage. Le coulis de ciment au cours de sa mise en place dans le puits, peut atteindre une température élevée (jusqu'à  $250^\circ\text{C}$ ) et une pression de l'ordre de 150 MPa. Le coulis doit rester suffisamment fluide pendant l'opération de pompage et doit développer rapidement une résistance à la compression. Le ciment doit être aussi suffisamment étanche pour isoler les formations et empêcher l'écoulement de fluides (eau, saumure ou gaz) et cela en résistant à l'action corrosive des fluides. Différentes classes du ciment sont définies par l'American Petroleum Institute (API) pour l'utilisation dans les puits pétroliers et gaziers. Parmi elles, les classes G et H sont largement utilisées pour la construction des puits grâce à leur compatibilité avec tous les additifs (accélérateur ou retardateur) et leur résistance à de basses et hautes températures. La différence entre ces deux classes est leur teneur en  $\text{C}_3\text{A}$ . La concentration en  $\text{C}_3\text{A}$  doit être inférieure à 8% pour un ciment de la classe G et à 3% pour un ciment de la classe H.

Les propriétés hydrauliques du ciment et leur variation avec le rapport eau/ciment lors de l'hydratation ainsi que la pression et la température de la prise ont bien été documentées au cours des dernières décennies (*Breysse et Gérard, 1997; Taylor, 1997; Ghabezloo et al., 2008; Caré, 2008*). La Figure 13 représente la dépendance de la porosité d'une pâte de ciment durcie en fonction du rapport eau ciment (E/C) (*Taylor, 1997*). Lorsque le rapport E/C dans une pâte de ciment dépasse une limite de 0.4, les hydrates ne peuvent plus entièrement remplir l'espace disponible initialement occupé par l'eau et par conséquent, des pores relativement grands sont formés dans la pâte durcie. Comme nous l'avons indiqué, la température de la prise a également une influence importante sur la porosité finale du ciment durci. Un exemple de la variation de porosité avec la température est présenté dans le Tableau 2. L'augmentation de la porosité avec la température est due en partie à l'augmentation du volume total de la dimension des pores ainsi qu'à la microfissuration engendrée par la dilatation différentielle entre la pâte de ciment.



**Figure 13.** Variations de la porosité de ciment avec le rapport eau/ciment W/C (*Taylor, 1997*).

**Tableau 2.** Variations de la porosité de ciment avec le rapport eau/ciment et la température de la prise (*Caré, 2008*).

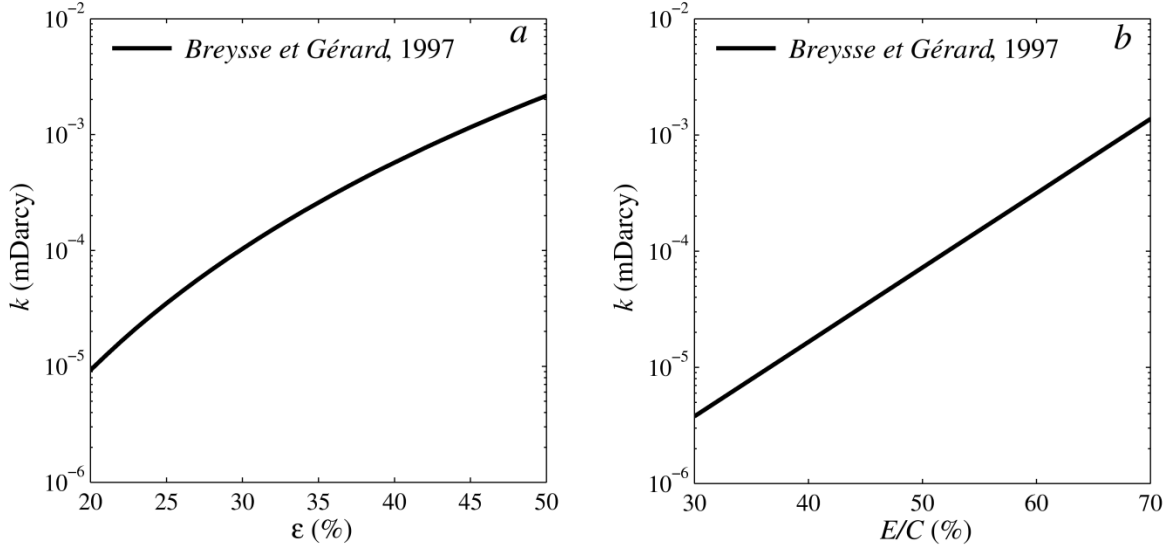
	T(°C)	E/C = 0.35	E/C = 0.45	E/C = 0.60
Porosité %	25	20%	30%	35%
	45	23%	32%	37%
	80	27%	33%	42%

La perméabilité du ciment est également une fonction du rapport E/C, du degré ou de la durée d'hydratation, de la température d'hydratation et du type du ciment. *Breyse et Gérard (1997)* ont fait des analyses statistiques sur les résultats de plusieurs essais de perméabilité publiés (e.g., *Mehta et Manmohan, 1980; Reinhardt et Gaber, 1990; Jacobs et Wittmann, 1992*) dans la littérature et ils ont proposé deux relations pour la perméabilité de ciment durci en fonction du rapport E/C et de la porosité  $\varepsilon$  :

$$k \text{ (mDarcy)} = \exp(5.95 E/C - 5.39) \times 10^{-5} \quad (1)$$

$$k \text{ (mDarcy)} = \exp(5.95 \ln(\varepsilon) + 9.5) \times 10^{-5} \quad (2)$$

D'après ces relations, pour un rapport E/C égal à 0.45, la porosité et la perméabilité du ciment durci à la température ambiante sont de 22% et de  $2 \times 10^{-5}$  mDarcy, respectivement. Les résultats de ces relations pour les plages des valeurs de la perméabilité et de la porosité utilisées dans ce rapport sont présentés sur la Figure 14.



**Figure 14.** Variations de la perméabilité de ciment avec a) la porosité et b) le rapport eau/ciment (*Breysse et Gérard, 1997*).

La performance des modèles capillaires de Brooks-Corey et Van-Genuchten pour décrire des propriétés diphasiques des matériaux cimentaires (pâtes de ciment et bétons) a été étudiée par plusieurs auteurs (e.g., *Monlouis-Bonnaire et al., 2004; Carlier et Burlion, 2011; Poyet et al., 2011*). Les résultats de ces études révèlent une grande variation des paramètres capillaires selon la structure des pores et les dimensions des échantillons utilisés. Afin de limiter le choix de la valeur de ces coefficients, nous avons étudié la courbe de la pression capillaire eau/air d'un échantillon de ciment durci de diamètre de 38 mm et de longueur de 76 mm; ciment de la classe G utilisé pour la construction des puits de pétrole (*Ghabezloo et al., 2008*). La Figure 15a représente la courbe expérimentale de la pression capillaire ( $P_c$ ) en fonction de la saturation en eau ( $S_{eau}$ ). Ces résultats sont également interprétés par les modèles de Brooks-Corey et de Van-Genuchten sur cette figure. Les coefficients estimés sont présentés au Tableau 3. L'erreur moyenne quadratique (EMQ) et le coefficient de détermination ( $r^2$ ) entre les résultats expérimentaux et les modèles sont déterminés à l'aide des équations suivantes afin de comparer la qualité d'ajustement des modèles :

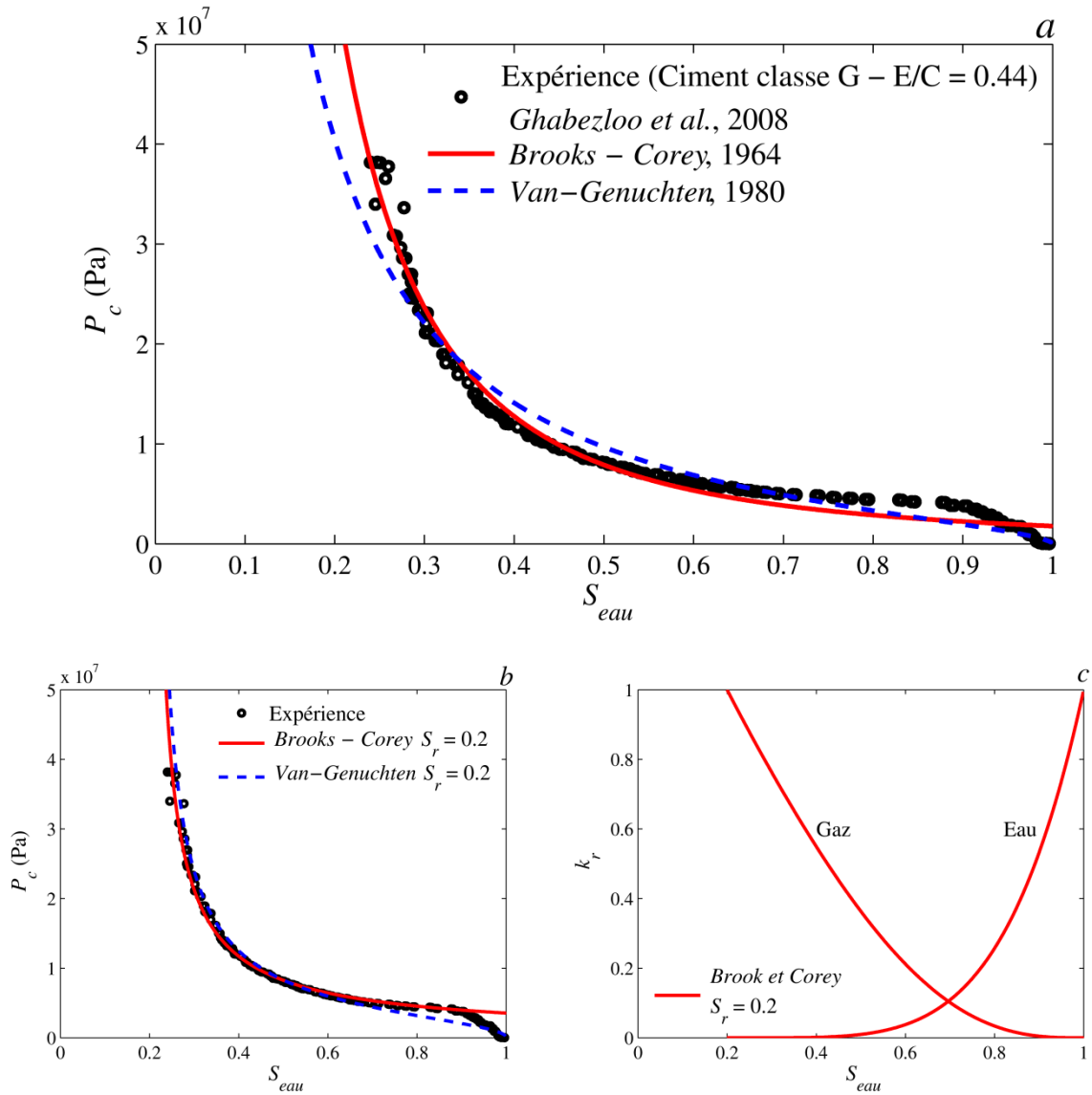
$$EMQ = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N (P(i)_{exp} - P(i)_{mod})^2}{N}} \quad (3)$$

$$r^2 = \frac{\sum_{i=1}^N (P(i)_{exp} - P(i)_{mod})^2}{\sum_{i=1}^N (P(i)_{exp} - \bar{P}_{exp})^2} \quad (4)$$

Les résultats sont également présentés au Tableau 3. Parmi les deux modèles utilisés, celui de Brooks et Corey permet d'obtenir une corrélation avec les observations légèrement supérieure au modèle de Van-Genuchten.

Les résultats expérimentaux indiquent une augmentation importante de la pression capillaire pour les saturations proches de 0.2. Dans ce cas, cette valeur peut être considérée comme la saturation résiduelle ( $S_r$ ) de l'eau retenue dans l'échantillon. Les résultats obtenus en utilisant une saturation résiduelle de 0.2 sont présentés sur la Figure 15b. Les valeurs de EMQ et  $r^2$  montrent une amélioration des résultats pour le modèle de Brooks-Corey. Sauf pour les saturations supérieures à 0.9, ce modèle est capable de décrire la pression capillaire avec une bonne précision. Les courbes de la perméabilité relative obtenues avec les paramètres estimés de ce modèle sont présentées sur la Figure 15c (voir l'annexe A pour consulter les équations de perméabilité relative).

Suite à l'analyse de l'ensemble de ces résultats, le modèle de Brooks-Corey semble être le meilleur modèle pour représenter les propriétés capillaires du ciment. Par la suite, nous utiliserons ce modèle ainsi que les valeurs présentées dans le Tableau 3 pour définir les propriétés diphasiques du ciment frais dans les simulations numériques.



**Figure 15.** a) Courbe de la pression capillaire eau/air en fonction de la saturation en eau pour des échantillon du ciment de la classe G utilisé pour la construction des puits de pétrole (Ghabezloo et al., 2008). Les résultats sont interprétés par les modèles de Brooks-Corey et de Van-Genuchten. b) Les résultats interprétés par les modèles de Brooks-Corey et de Van-Genuchten avec des saturations résiduelles  $S_{reau} = 20\%$  et  $S_{rair} = 0\%$ . c) Les courbes de la perméabilité relative  $k_r$  de modèle de Burdine-Brooks-Corey.



**Tableau 3.** Coefficients des modèles de Brooks-Corey et de Van-Genuchten et l'erreur relative moyenne (ERM) entre les résultats expérimentaux et les modèles pour deux valeurs de la saturation résiduelle de l'eau ( $S_{reau}$ ).

Echantillon du ciment durci (E/C = 0.44 et $\varepsilon = 26\%$ )					
Brooks-Corey $p_c = p_e (S_e)^{-1/\lambda}$			Van-Genuchten $p_c = \frac{1}{\alpha} (S_e^{-1/m} - 1)^{1/n}$		
$p_e$ (Pa)	$\lambda$	$\frac{1}{\alpha}$ (Pa)	$n$	$m = 1 - 1/n$	
$S_{reau} = 0$					
Valeur estimée	$1.78 \times 10^6$	0.466	$4.02 \times 10^6$	1.695	0.409
EMQ	$1.62 \times 10^6$		$2.37 \times 10^6$		
$r^2$	0.96		0.93		
$S_{reau} = 0.2$					
Valeur estimée	$3.55 \times 10^6$	1.462	$3.71 \times 10^6$	2.110	0.506
EMQ	$1.32 \times 10^6$		$2.35 \times 10^6$		
$r^2$	0.98		0.94		

Les analyses et les résultats précédents concernent uniquement les propriétés hydrauliques et diphasiques du ciment frais. Il est également important de comprendre et d'étudier la variation de ces propriétés avec l'âge du ciment. De plus, une modélisation de la migration du gaz entre la paroi externe du coffrage et la paroi rocheuse de la formation géologique nécessite la connaissance des propriétés hydrodynamiques équivalentes à cet espace annulaire. Cet espace annulaire peut être formé de ciment frais, ciment dégradé, défauts et fractures discrètes. Dans le modèle numérique, ces différents éléments ne sont pas représentés explicitement, mais on utilise plutôt des propriétés équivalentes (une perméabilité et porosité équivalente qui représente les propriétés du ciment et des fractures).

Au cours de ces dernières années, dans le cadre des projets reliés au stockage souterrain du  $\text{CO}_2$ , l'intégrité et la qualité de la cimentation des puits ont grandement été étudiés (e.g., *Bachu et Bennion, 2009; Celia et al, 2009; Crow et la., 2010*). Le ciment étudié dans ces études a été fabriqué directement au laboratoire ou prélevé dans des puits de production de  $\text{CO}_2$ .

*Bachu et Bennion (2009)* ont réalisé deux séries d'expériences sur des échantillons de ciment de la classe G fabriqués en laboratoire. Dans un premier temps, ils ont étudié la perméabilité à l'eau de trois échantillons cylindriques de ciment de bonne qualité (non-fracturé). La dimension des échantillons était de 38 mm de diamètre et 30 mm de longueur. D'après leurs résultats, la perméabilité de ces échantillons varie entre  $1.16 \times 10^{-4}$  et  $2.32 \times 10^{-4}$  mDarcy. Ces valeurs se retrouvent bien dans la plage de la perméabilité attendue pour le ciment frais (Figure 14 - *Breysse et Gérard, 1997*). Dans leur deuxième série d'expérience, quatre échantillons représentatifs de l'espace annulaire entre le coffrage et la formation ont été étudiés. Un schéma simplifié de ces échantillons est représenté sur la Figure 16. La dimension des échantillons est de 70 mm de diamètre et 95.5 mm de longueur. Les échantillons, sauf le premier, sont mis en torsion (action mécanique) afin d'introduire des fractures sur l'interface ciment/tubage ainsi que dans le ciment. Les caractéristiques des fractures introduites dans chaque échantillon sont présentées dans le Tableau 4. Les résultats obtenus par les essais de perméabilité à l'eau montrent que pour:

- l'échantillon 1 (Figure 17a), qui représente une cimentation parfaite de l'espace entre le coffrage et la formation, la perméabilité effective est de l'ordre de  $10^{-6}$  mDarcy.
- l'échantillon 2 (Figure 17b), qui contient uniquement des fractures sur toute l'interface tubage/ciment, la perméabilité effective est de 0.241 mDarcy.
- l'échantillon 3 (Figure 17c et d), qui contient des fractures sur toute l'interface tubage/ciment mais également dans le ciment, la perméabilité effective est de 0.402 mDarcy.
- l'échantillon 4 (Figure 17e et f), qui contient des fractures très ouvertes sur toute l'interface tubage/ciment et dans le ciment, la perméabilité effective est de 1.56 mDarcy.

Dans une autre étude, *Liteanu et Spiers (2010)* ont analysé la perméabilité de cinq échantillons cylindriques de ciment de la classe A (un échantillon non-fracturé et quatre échantillons fracturés). Leur résultats indiquent une différence de trois ordres de grandeur entre la perméabilité de l'échantillon non-fracturé ( $k = 10^{-2}$  mDarcy) et les échantillons fracturés ( $k = 10$  mDarcy). Comme nous pouvons le constater, la présence des fractures dans l'espace annulaire entre le coffrage et la formation peut entraîner une augmentation très importante de la perméabilité effective du ciment. A l'échelle d'un puits de gaz, cette augmentation peut créer un lien hydraulique pour la migration du gaz vers les formations peu profondes (*Watson et Bachu, 2009*).

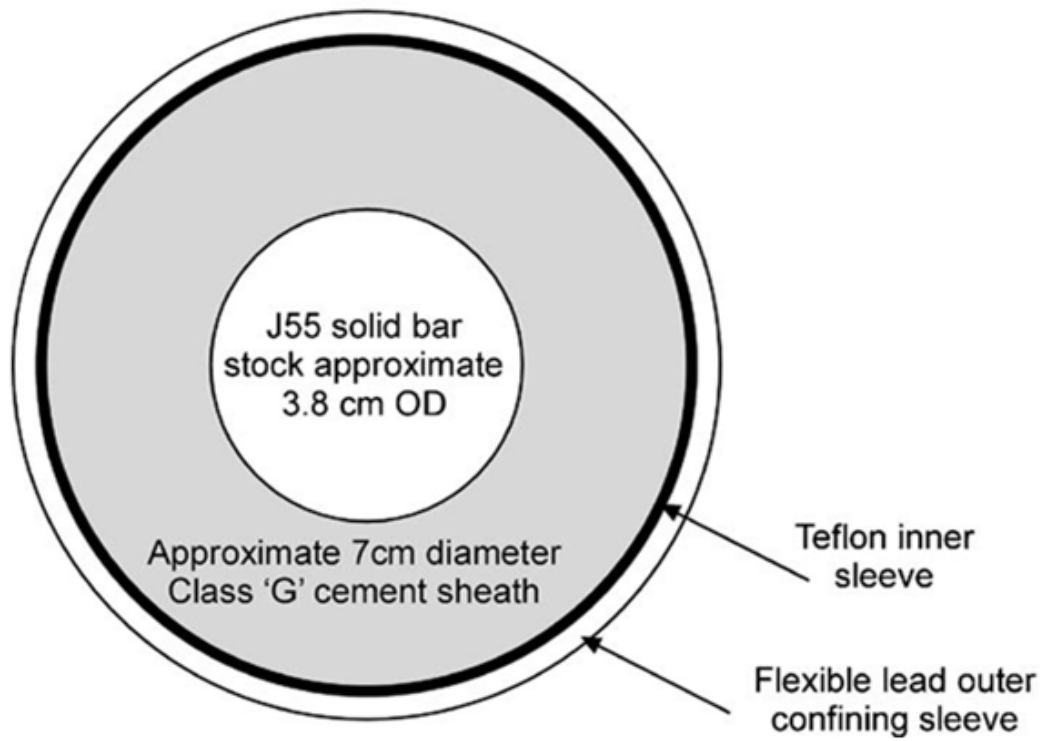
Dans une autre étude, *Crow et al., (2010)* ont étudié les propriétés hydrauliques de dix échantillons de ciment (classe H), prélevés dans l'intervalle compris entre 1360 et 1430 m d'un puits de production naturel de CO<sub>2</sub> de 30 ans d'âge situé au Colorado. Le puits a

été foré en 1976, mais la production a été reportée neuf années jusqu'à 1985 en raison de la disponibilité de l'oléoduc. Le puits a produit pour une durée réelle de 20 ans en moyenne 7000 pieds cubes par jour de CO<sub>2</sub>.

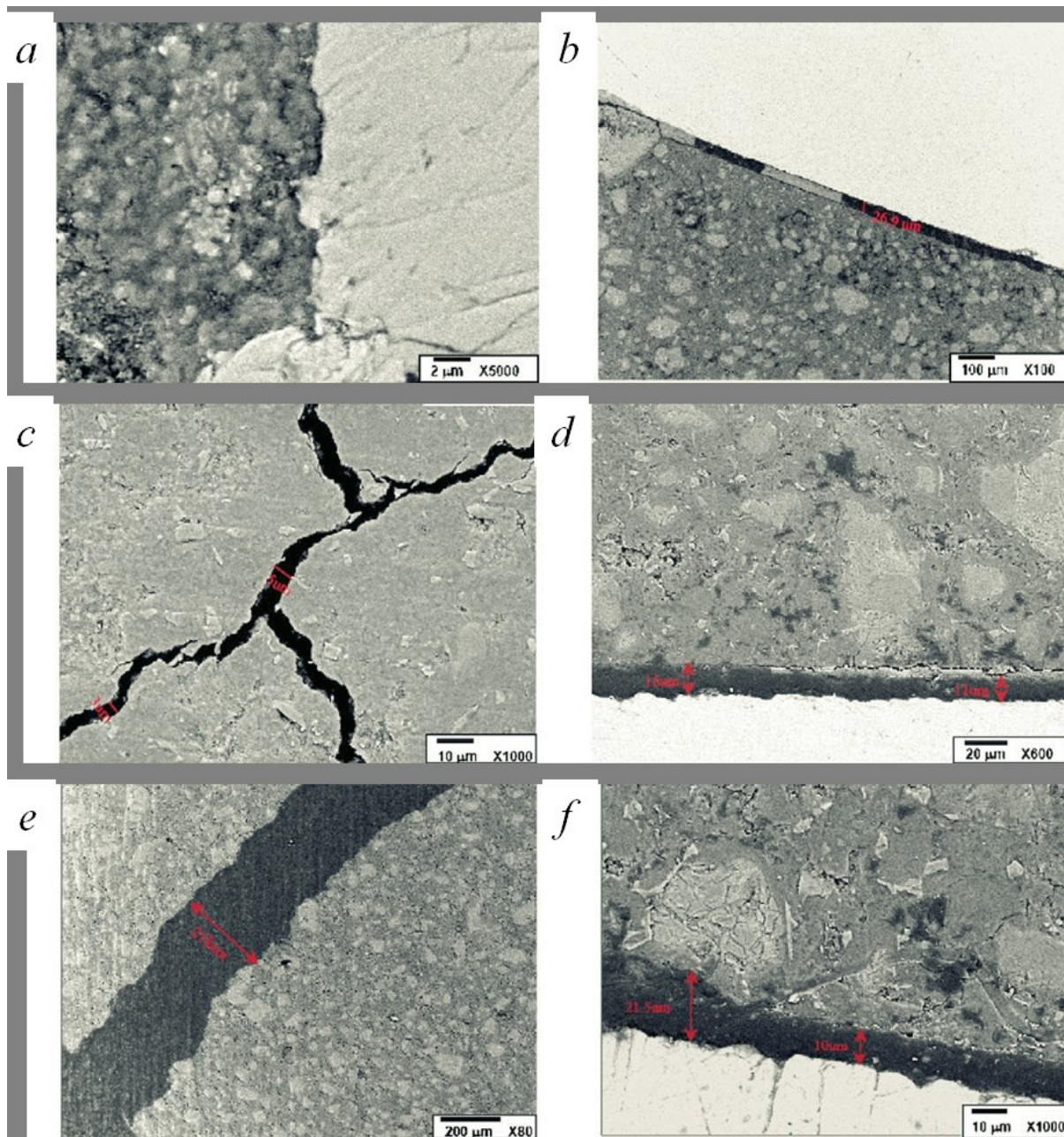
Leur résultats indiquent des valeurs de porosité entre 18 et 29% et de perméabilité entre  $3 \times 10^{-4}$  et  $2.3 \times 10^{-3}$  mDarcy pour les échantillons prélevés près de la surface et des valeurs de la porosité entre 38 et 45% et de perméabilité entre  $3 \times 10^{-3}$  et  $3.22 \times 10^{-2}$  mDarcy pour ceux prélevés en profondeur (ciment carbonaté). En comparant ces résultats avec les résultats présentés par *Bachu et Bennion (2009)*, nous trouvons une augmentation d'environ un ordre de grandeur pour les échantillons prélevés près de la surface et une augmentation environ de deux ordres de grandeur pour les échantillons plus profonds prélevés près du réservoir de CO<sub>2</sub>.

D'après *Crow et al. (2010)*, cette plage de perméabilité de la matrice du ciment ne représente aucun danger pour la migration de fluides vers la surface. Seule une augmentation de la perméabilité du ciment pourrait permettre une migration suffisante de fluides afin de représenter une problématique de migration vers les aquifères superficiels. Toujours selon eux, cette augmentation n'est possible qu'en raison d'une mauvaise qualité de cimentation de l'espace annulaire entre le coffrage et la formation géologique. Afin de valider cette hypothèse, ils ont étudié l'intégrité du même puits de production naturelle de CO<sub>2</sub> au Colorado à l'aide d'un essai d'interférence vertical (Figure 18). Cet essai consiste 1) à perforer le tubage à deux intervalles (indiqués par des lignes noires sur la Figure 18), 2) à isoler l'intervalle perforé inférieur, 3) à mettre la partie supérieure du puits en surpression et 4) à mesurer la pression dans chaque intervalle à l'aide de capteurs de pression. Les résultats obtenus sont ensuite interprétés par un modèle numérique afin de déterminer la perméabilité verticale équivalente du ciment. Dans une étude récente, *Gasda et al. (2013)* ont également utilisé cette technique pour déterminer la perméabilité équivalente de deux puits de production du pétrole. Les estimations de perméabilité effective pour les trois puits sont présentées dans le Tableau 5. Comme nous pouvons le constater, les trois tests couvrent deux ordres de grandeur, d'environ 1 mDarcy à plus de 100 mDarcy. Comme les analyses de *Bachu et Bennion (2009)*, ces résultats montrent une différence importante entre la perméabilité de la matrice du ciment et la perméabilité équivalente de l'espace entre le coffrage et la roche (Ciment + fractures). En effet, la présence de fractures a pour effet de considérablement augmenter la perméabilité de l'espace annulaire entre le tubage et la formation géologique.

L'étude bibliographique réalisée dans cette section nous a permis d'obtenir une base de données sur les propriétés hydrauliques du ciment. Cette base de données sera utilisée dans la section 7 pour alimenter le modèle numérique.



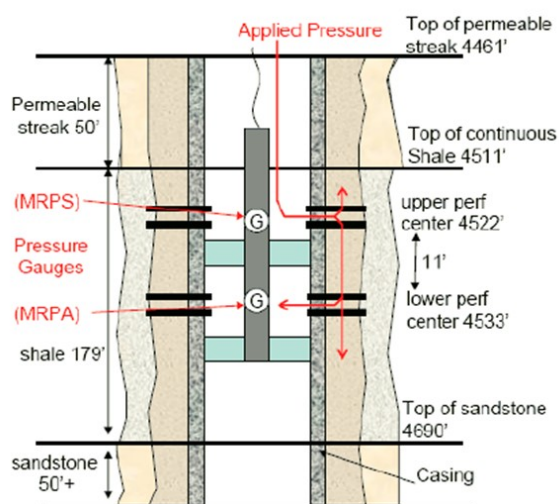
**Figure 16.** Schéma simplifié des échantillons représentatifs de l'espace annulaire entre le coffrage et la formation (*Bachu et Bennion, 2009*).



**Figure 17.** Photographie rayon X des échantillons représentatifs de l'espace annulaire entre le coffrage et la formation (*Bachu et Bennion, 2009*). a) cimentation parfaite de l'espace annulaire, b) cimentation avec la présence des fractures sur l'interface tubage/ciment c et d) cimentation avec la présence des fractures sur toute l'interface tubage/ciment mais également dans le ciment, e et f) cimentation avec la présence de fractures très ouvertes sur toute l'interface tubage/ciment et dans le ciment.

**Tableau 4.** Caractéristiques des fractures introduites dans chaque échantillon (*Bachu et Bennion, 2009*).

	Ouverture moyenne des fractures entre le tubage et la formation (mm)	Ouverture moyenne des fractures dans le ciment (mm)	Longueur moyenne des fractures dans le ciment (mm)	Perméabilité effective (mDarcy)
Echantillon 1	0	0	0	$10^{-6}$
Echantillon 2	0.3	0	0	0.241
Echantillon 3	0.12	0.04	420	0.402
Echantillon 3	0.18	2	400	1.56


**Figure 18.** Schéma descriptif de l'essai d'interférence verticale (*Crow et al., 2010*).

**Tableau 5.** Résultats de la perméabilité équivalente de l'espace entre le coffrage et la roche.

Nature de puits	Perméabilité équivalente (mDarcy)	Référence
Production naturelle du CO <sub>2</sub>	1.7	<i>Crow et la. (2010)</i>
Production du pétrole	170	<i>Gasda et al. (2013)</i>
Production du pétrole	25	<i>Gasda et al. (2013)</i>

### 5.3 Propriétés des fluides

Les propriétés thermodynamiques des fluides de formation (saumure), du méthane ainsi que leur mélange en fonction de la pression et la température doivent être définies dans le modèle numérique. Les propriétés de l'eau et de la vapeur sont déterminées à partir des nouvelles formulations de l'Association Internationale pour les Propriétés de l'eau et de la vapeur (IAPWS - *Wagner et Kretzschmar, 1997*). Pour les propriétés thermodynamiques du méthane CH<sub>4</sub>, une équation d'état basée sur l'énergie spécifique libre de Helmholtz est employée (*Setzmann et Wagner, 1991*). Pour le mélange de saumure (H<sub>2</sub>O + NaCl) et de méthane (CH<sub>4</sub>), un modèle de la composition des phases en fonction de la pression et de la température a été développé dans le cadre de cette étude et intégré au code DuMux. Le modèle de composition des phases repose principalement sur les travaux de *Spycher et al. (2003)*, *Spycher et Pruess (2005)* et *Zirrahi et al. (2012)*. Les détails du système de fluides utilisé dans le cadre de cette étude est présenté à l'Annexe B.

## 6. DISCRÉTISATION, PROPRIÉTÉS, CONDITIONS INITIALES ET CONDITIONS LIMITES

La résolution des équations différentielles de l'Annexe A (équations A.20 et A.21) nécessite la discrétisation spatiale du domaine de calcul considéré (développement d'un maillage), l'attribution de propriétés et la définition des conditions initiales et aux limites. Dans cette section, nous présentons ces informations pour chacun des deux modèles considérés. Dans la section suivante, les résultats obtenus sont présentés et discutés.

### 6.1 Scénario 1 - Puits abandonné

Comme nous l'avons expliqué dans la section 4.1, ce scénario conceptuel vise à étudier le comportement d'un puits d'exploitation de gaz de shale abandonné afin d'évaluer s'il pose un problème environnemental à long terme pour les aquifères superficiels. À l'aide des simulations numériques, nous allons évaluer le rôle de la qualité de la cimentation de l'annulaire entre le coffrage de production et la formation géologique sur les fuites éventuelles de gaz vers un aquifère superficiel à nappe libre. Un schéma illustrant le modèle conceptuel considéré dans ce scénario est représenté à la Figure 7.

Les simulations pour ce scénario sont effectuées pour une période de 600 ans. Le système d'équations A.20 et A.21 est résolu pour la pression  $p$  de la phase liquide et la fraction massique  $X$  du composant  $\text{CH}_4$  ou la saturation  $S$  de la phase gazeuse selon le cas.

#### 6.1.1 Discrétisation spatiale et propriétés des matériaux

Un schéma illustrant le modèle conceptuel considéré dans ce scénario est représenté sur la Figure 19a. Pour une visualisation adéquate, le rayon externe du puits ( $r_e$  [0.15 m] =  $r_i$  [0.10 m] + épaisseur du ciment [0.05m]) y est représenté selon une exagération correspondant à 1000 x sa taille réelle. Le puits est situé au centre d'une séquence géologique constituée de trois couches : Shale d'Utica, Groupe de Lorraine et des dépôts meubles, dont l'épaisseur totale est de 1000 m. Toutefois, les dépôts meubles ne sont pas représentés explicitement dans le modèle numérique car celui-ci ne permet pas de simuler l'écoulement de la saumure et de l'eau douce simultanément. Néanmoins, un aquifère à nappe libre est tout de même représenté dans les dépôts meubles en spécifiant une pression hydrostatique (eau douce) à la surface du Groupe de Lorraine (voir la section 7.1.3 sur les conditions limites).

Comme nous l'avons expliqué dans la section 4.1, seul l'espace entre le coffrage de production et les formations géologiques est considéré. Dans ce modèle, les propriétés des formations géologiques sont latéralement homogènes. Pour cette raison, l'écoulement des fluides autour du puits est radial et symétrique, ce qui permet de considérer seulement une portion du domaine cylindrique pour la réalisation des



simulations numériques. La portion considérée pour les simulations est représentée en jaune sur la Figure 19a et illustrée de façon détaillée à la Figure 19b. Les épaisseurs des couches sont également représentées sur cette figure. Le rayon maximal et la hauteur du domaine sont de 950 m et de 1000 m respectivement (950×1000 m). Le domaine est discrétisé par 54 150 éléments hexaédriques (114×1×475).

Plusieurs paramètres doivent être définis dans le modèle numérique, soit la porosité  $\varepsilon$ , la perméabilité  $k$ , la saturation  $S$  en gaz et un modèle capillaire (Annexe A) pour chaque couche. La salinité et le gradient géothermique doivent également être spécifiés sur l'ensemble du domaine simulé. Les couches sont considérées homogènes et isotropes. Les paramètres utilisés dans les simulations sont présentés dans le Tableau 6. Les valeurs attribuées à ces paramètres ont pour la plupart été déterminées à partir des résultats présentés dans la section 6. Pour les paramètres pour lesquels aucune information n'était disponible au Québec, nous avons utilisé les valeurs utilisées dans des études de modélisation similaires (p. ex, le modèle capillaire ; voir section 6 pour les références).

Pour le ciment, la porosité et la perméabilité de l'annulaire entre le tubage de production et la formation sont on été choisies à partir des résultats et des analyses présentés dans la section 6.2 (Tableaux 4 et 5). Les valeurs minimales et maximales considérées sont de 20% et 40 % pour la porosité et de  $10^{-3}$  et  $10^2$  mDarcy pour la perméabilité. Les valeurs minimales correspondent à une cimentation parfaite (ciment sans fractures) alors que les valeurs maximales correspondent à une cimentation inadéquate (ciment + fractures). La pression d'entrée du gaz est la valeur présentée dans le Tableau 3. L'exposant  $\lambda$  est considéré constant dans toutes les simulations. La saturation résiduelle dans le modèle de Brooks et Corey est également considérée constante. Le ciment est considéré initialement saturé en saumure (0% du constituant  $CH_4$ ).

**Tableau 6.** Valeurs des paramètres utilisés dans les simulations.

Puits / Couche géologique	Paramètre	Unité	Shale d'Utica ( $\varepsilon = 3\%$ et $k = 10^{-3}$ mD)					Shale d'Utica ( $\varepsilon = 7\%$ et $k = 10^{-1}$ mD)				
			Cas 1	Cas 2	Cas 3	Cas 4	Cas 5	Cas 6	Cas 7	Cas 8	Cas 9	Cas 10
Ciment ou annulaire du puits	$\varepsilon$	%	20	30	35	40	40	20	30	35	40	40
	$k$	mD	$10^{-3}$	$10^{-1}$	$10^0$	$10^1$	$10^2$	$10^{-3}$	$10^{-1}$	$10^0$	$10^1$	$10^2$
	$P_e$	Pa	$10^6$	$5 \times 10^5$	$10^5$	$5 \times 10^4$	$10^4$	$10^5$	$5 \times 10^5$	$10^5$	$5 \times 10^4$	$10^4$
	$\lambda$	-	1.47					1.47				
	$S_g$	%	0					0				
	$S_{re}$	%	20					20				
Shale de Lorraine	$\varepsilon$	%	3					3				
	$k$	mD	$10^{-4}$					$10^{-4}$				
	$P_e$	Pa	$3 \times 10^5$					$3 \times 10^5$				
	$\lambda$	-	2					2				
	$S_g$	%	10					10				
	$S_{re}$	%	20					20				
Shale d'Utica	$P_e$	%	$10^6$					$10^5$				
	$l$	mD	2					2				
	$S_g$	Pa	30					30				
	$S_{re}$	-	20					20				

Pour le Groupe de Lorraine, la porosité et la perméabilité sont de 3% et de  $1 \times 10^{-4}$  mDarcy respectivement. Pour la perméabilité, la même valeur est également obtenue à partir de la relation proposée par *Yang et Alplin (2010)*; une relation empirique permettant de déterminer la perméabilité du shale à partir de son pourcentage d'argile (50% d'après *Thériault (2012)*). La pression d'entrée du gaz est déterminée à partir du résultat de la porosimétrie au mercure pour l'échantillon A252 (section 6.1). Pour l'exposant  $\lambda$  de shale, la valeur de 2 proposée par plusieurs auteurs est employée. Les résultats d'une étude de sensibilité ont également montré une influence négligeable de la variation de ces paramètres sur les résultats obtenus.

Pour les Shales d'Utica, deux couples de valeurs de la porosité et la perméabilité sont considérés : 1)  $\varepsilon = 3\%$  et  $k = 10^{-3}$  mDarcy et 2) :  $\varepsilon = 7\%$  et  $k = 10^{-1}$  mDarcy. Le premier couple de valeurs peut correspondre à un shale non fracturé et le deuxième à un shale fracturé. Les pressions d'entrée du gaz obtenues à partir des résultats de la porosimétrie au mercure pour les échantillons A257 et A262 (section 6.1) sont utilisées. L'exposant  $\lambda$  utilisé est le même que celui utilisé pour le Groupe de Lorraine ( $\lambda = 2$ ).

En ce qui concerne le gradient géothermique, les valeurs de  $24.1^\circ\text{C}/\text{km}$  (*Majorowicz et Minea, 2012*) et de  $23.5^\circ\text{C}/\text{km}$  (*Tran-Ngoc et al., 2012*) sont proposées pour les Basses-Terres du Saint-Laurent. Un gradient géothermique de  $24^\circ\text{C}/\text{km}$  avec une température moyenne au sol de  $8^\circ\text{C}$  (283.15 K) est utilisé dans les simulations :

$$T(x, y, z) = 283.15 + 24 \times 10^{-3}(1000 - z) \quad (5)$$

où  $T$  est la température en kelvin et  $z$  est l'élévation en mètre par rapport à la base du Shale d'Utica.

Enfin, tel qu'expliqué dans Annexe B, une salinité constante de 150 g/l est considérée pour l'ensemble du domaine.

### 6.1.2 Conditions initiales

Les conditions initiales à définir dans le modèle concernent la pression des fluides ainsi que leur composition. À partir des résultats provenant d'essais aux tiges réalisés dans plusieurs puits (A180, A156, A158, A185, A196, A198, A214, A222, A250), *Konstantinovskaya et al. (2012)* ont étudié la variation du gradient de pression dans les Basses-Terres du Saint-Laurent. Leurs résultats indiquent un gradient de pression hydrostatique moyen de 12 kPa/m pour cette région :

$$p_e(x, y, z) = 10^5 + 12 \times 10^3(1000 - z) \quad (6)$$

où  $p_e$  est la pression en Pascals. Cette équation a été utilisée afin de définir les conditions initiales de pression pour l'ensemble du domaine simulé. Cependant, il faut

noter que la pression diminue dans le shale d'Utica pendant la phase de production. Cette pression augmente par la suite, après l'abandon du puits. Cependant, elle n'atteint jamais sa condition initiale. L'utilisation de l'équation 6 comme condition initiale représente donc une situation conservatrice afin de calculer le flux maximum du gaz et du fluide de formation vers l'aquifère superficiel à nappe libre.

En ce qui concerne la pression initiale du gaz, comme nous l'avons expliqué dans l'Annexe A et dans la section 6, elle dépend de la présence de gaz, la saturation du gaz ainsi que des propriétés capillaires considérées. Dans ce scénario, seuls le Groupe de Lorraine et le shale d'Utica contiennent du gaz initialement. La relation utilisée pour définir la pression initiale du gaz dans ces couches est :

$$p_g(x, y, z) = 10^5 + 12 \times 10^3(1000 - z) + p_e(S_e)^{-1/\lambda} \quad (6)$$

Les valeurs de la pression d'entrée et l'exposant  $\lambda$  utilisés pour définir la pression du gaz pour les différents cas étudiés sont présentés dans le Tableau 6.

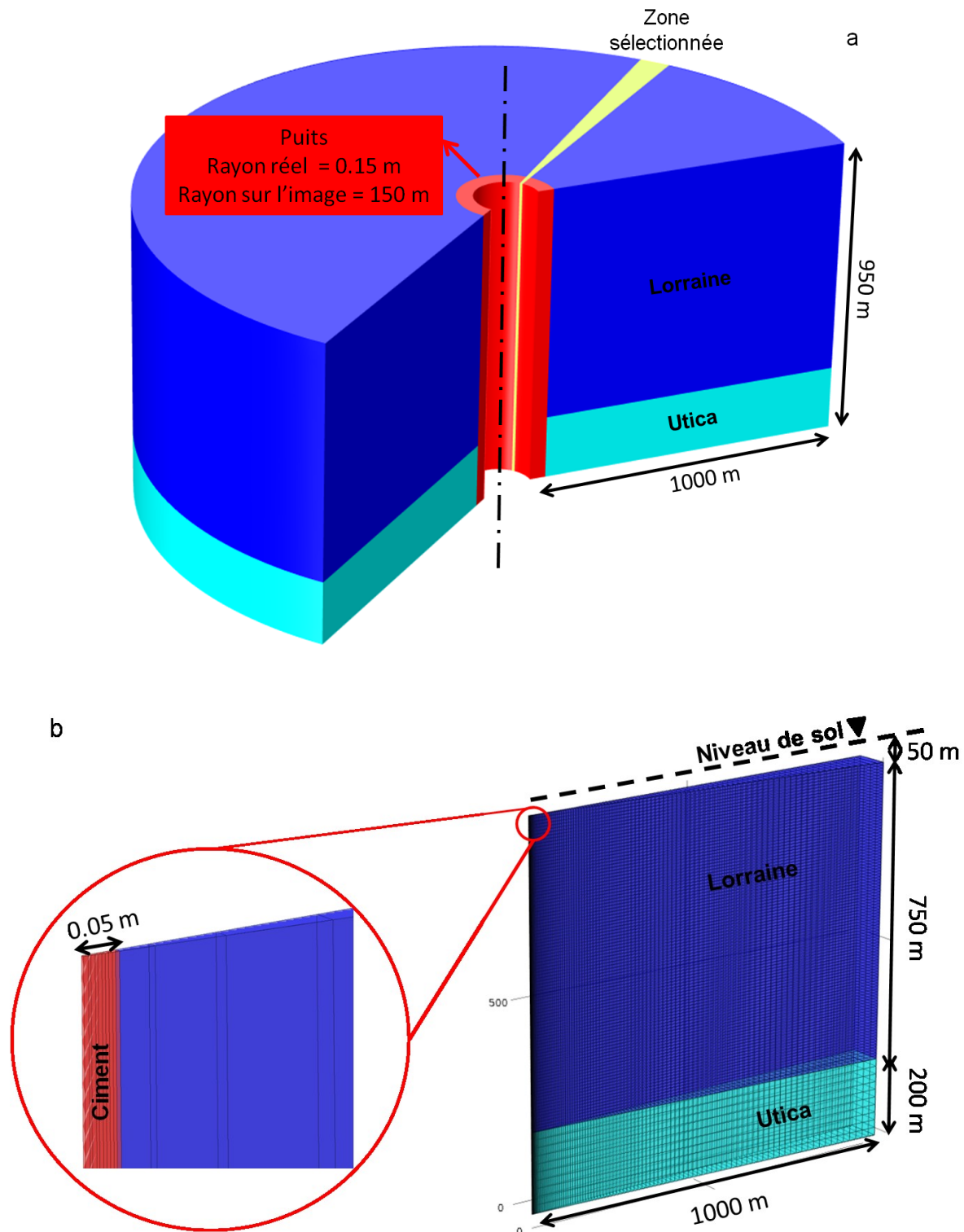
En ce qui concerne la saturation initiale en gaz dans le ciment, elle est considérée comme nulle (milieu initialement saturé en saumure). Pour les shales, les résultats des analyses de carotte présentés dans le Tableau 1 ont révélé une très grande variabilité de la saturation en gaz dans les shales d'Utica et de Lorraine (de 4.5 à 88 % avec une valeur moyenne de 53% en supposant une distribution normale). De plus, les échantillons utilisés dans ces analyses sont tous prélevés en profondeur (entre 1300 et 2600 m où le gaz est fortement présent) et ne permettent pas de définir la saturation pour les couches moins profondes (< 1300 m). L'autre facteur qu'il faut également prendre en compte dans le cadre de ce scénario est la quantité du gaz exploité pendant la phase de production (10 à 20 % d'après [Lee et al., \(2011\)](#)). Pour le cas de base, nous avons donc considéré une saturation initiale en gaz de 30% pour le Shale d'Utica et de 10 % pour le Groupe de Lorraine. Toutefois, nous avons analysé l'impact de la variation de la saturation du shale d'Utica sur les résultats à l'aide d'une étude de sensibilité.

### 6.1.3 Conditions aux limites

Les conditions aux limites suivantes sont utilisées pour l'ensemble des simulations :

- *Surface du maillage (sommet du Groupe de Lorraine)*. Une pression hydrostatique (en considérant de l'eau douce) constante obtenue à partir de l'équation 6 pour la phase aqueuse (condition de Dirichlet) et une condition limite libre pour le transport du constituant CH<sub>4</sub> qui permet au gaz de quitter le domaine. Cette condition vise à représenter de façon implicite l'aquifère à nappe libre contenu dans les dépôts meubles.

- *Base du shale d'Utica*. Une pression constante obtenue à partir de l'équation 6 pour la phase aqueuse et une saturation constante égale à la saturation initiale considérée pour la phase gazeuse (condition de Dirichlet).
- *Surface latérale à  $r = 0.1$  m*. Aucun n'échange de masse entre le ciment et le coffrage de production n'est considéré. Donc, un flux horizontal nul pour les deux phases (condition de Neumann).
- *Surface latérale à  $r = 1000$  m*. Une pression fixe, obtenue à partir de l'équation 6, pour la phase aqueuse et une saturation constante, égale à la saturation initiale attribuée à chaque couche, pour la phase gazeuse (condition de Dirichlet).
- *Autres surfaces latérales*. Un flux nul pour le transport de chacun des constituants dans la direction normale à la surface (écoulement radial symétrique - condition de Neumann).



**Figure 19.** a) Le schéma conceptuel du scénario 1 (puits abandonné). b) Discrétisation spatiale du domaine.

## **6.2 Scénario 2 - Migration du gaz et des fluides de formation le long des failles**

Comme nous l'avons expliqué dans la section 4.2, le second scénario vise à étudier l'influence de la fracturation hydraulique sur la migration du gaz et des fluides de formation le long d'une faille. Plus particulièrement, nous visons à évaluer si les failles des Basses-Terres du Saint-Laurent peuvent représenter des chemins préférentiels de migration sur une échelle de temps allant de moyen à long terme.

Dans le cadre de cette étude, nous présentons des résultats préliminaires obtenus pour la migration du gaz et des fluides de formation le long d'une faille suite à une augmentation temporaire de la pression due aux activités de fracturation hydraulique. Celle-ci est causée par une activité de la fracturation hydraulique à la base de la faille; la section horizontale du puits est située à la base du Shale d'Utica et croise la faille. Comme nous pouvons constater, ce scénario représente le pire cas possible et n'est pas tout à fait réaliste. L'étude approfondie de l'influence de la position de la section horizontale du puits par rapport à la faille et son impact sur la migration des fluides est en cours de préparation et sera présentée dans les futures communications. Nous considérons que les résultats obtenus pour ce cas sont préliminaires car les paramètres utilisés ne sont pas aussi fouillés que ceux utilisés pour le cas 1 et que la faille est verticale plutôt qu'inclinée.

La démarche de simulation suivie pour étudier ce modèle conceptuel comprend quatre étapes principales qui sont réalisées successivement :

- Étape 1 : Simulation à long terme en régime transitoire (7 millions d'années) en conditions naturelles afin d'évaluer les flux naturels du gaz (méthane) et du fluide de formation (saumure) en régime permanent.
- Étape 2 : Simulation simplifiée d'une fracturation hydraulique pendant une période d'un mois.
- Étape 3 : Fin de la fracturation hydraulique et simulation de la migration des fluides dans la faille pendant une période de 1000 an.
- Étape 4 : Comparaison des fuites de fluides au sommet de la faille avant et après la fracturation hydraulique.

### **6.2.1 Discrétisation spatiale et propriétés des matériaux**

Un schéma illustrant le modèle conceptuel considéré dans ce scénario est présenté sur la Figure 20. Une faille verticale est située au centre d'une séquence géologique constituée de deux couches : Shale d'Utica, Groupe de Lorraine, dont l'épaisseur totale est de 850 m. Les épaisseurs des couches sont également présentées sur cette figure. La longueur du domaine est de 3000 m (3000×850 m). Le domaine est discrétisé par 18 700 éléments rectangulaires (110×170). Encore une fois, les dépôts meubles ne sont

pas représentés explicitement, mais sont considérés à l'aide de la même condition limite que pour le scénario 1 (pression hydrostatique d'eau douce).

La porosité de la faille est considérée de 10%. Deux valeurs sont utilisées pour la perméabilité dans les simulations. Une perméabilité de  $10^{-3}$  mDarcy suggérée par Dr. Elena Konstantinovskaya (communication personnelle), et une perméabilité plus élevée ( $10^{-1}$  mDarcy) afin d'étudier l'influence de la perméabilité de la faille sur la migration des fluides vers la surface. La valeur de pression d'entrée du gaz pour la faille est présentée dans le Tableau 7. L'exposant  $\lambda$  est considéré constant dans toutes les simulations ( $\lambda = 2$ ). La saturation résiduelle dans le modèle de Brooks-Corey est également considérée constante ( $S_{re} = 20\%$ ). La saturation initiale du gaz dans la faille est équivalente à la saturation de la couche voisine (30% dans le shale d'Utica et 0% dans les autres unités géologiques). Dans cette étude, afin de simplifier la modélisation numérique, nous avons uniquement considéré une faille verticale. Dans des simulations ultérieures, nous étudierons l'influence de l'orientation de la faille sur la migration des fluides.

Afin de mieux évaluer et comparer l'impact des propriétés de la faille sur la migration des fluides, le Groupe de Lorraine est considéré comme imperméable dans ce scénario. Il s'agit donc d'un scénario conservateur qui aura tendance à surévaluer les flux de méthane vers la surface (dans un cas réel, le méthane et les composés de la saumure pourront diffuser dans la matrice du groupe de Lorraine et donc réduire les flux dans la faille).

Pour le Shale d'Utica, deux couples de valeurs de porosité et de perméabilité sont considérés dans chaque simulation : 1)  $\varepsilon = 3\%$ ,  $k_{xx} = 10^{-3}$  et  $k_{zz} = 10^{-5}$  mDarcy avant et pendant l'augmentation de la pression suite à une fracturation hydraulique et 2) :  $\varepsilon = 7\%$  et  $k_{xx} = k_{zz} = 10^{-3}$  mDarcy après la procédure de fracturation hydraulique. Les pressions d'entrée du gaz obtenues à partir des résultats de la porosimétrie au mercure pour les échantillons A257 et A262 (section 6.1) sont utilisées pour les cas 1 et 2, respectivement. L'exposant  $\lambda$  est considéré constant dans les simulations ( $\lambda = 2$ ). La saturation résiduelle dans le modèle de Brooks-Corey est également considérée constante ( $S_{re} = 20\%$ ).

Enfin, une salinité constante de 150 g/l est spécifiée pour l'ensemble du domaine et un gradient géothermique de 24°C/km avec une température moyenne au sol de 8 °C (283.15 K).



**Tableau 7.** Valeurs des paramètres utilisés dans les simulations.

Faille / unité géologique	Paramètre	Unité	Faille ( $\varepsilon = 10\%$ et $k = 10^{-3}$ mD)		Faille ( $\varepsilon = 10\%$ et $k = 10^{-1}$ mD)	
			Avant la fracturation	Après la fracturation	Avant la fracturation	Après la fracturation
Shale d'Utica	$\varepsilon$	%	3	7	3	7
	$k$	mD	$k_{xx} = 10^{-3}$ $k_{zz} = 10^{-5}$	$k_{xx} = k_{zz} = 10^{-3}$	$k_{xx} = 10^{-3}$ $k_{zz} = 10^{-5}$	$k_{xx} = k_{zz} = 10^{-3}$
	$P_e$	Pa	$10^6$	$10^5$	$10^6$	$10^5$
	$\lambda$	-	2		2	
	$S_g$	%	30		30	
	$S_{re}$	%	20		20	
Faille	$P_e$	%	$5 \times 10^4$		$10^4$	
	$\lambda$	-	2		2	
	$S_g$	%	30% dans le shale d'Utica		30% dans le shale d'Utica	
	$S_{re}$	-	20		20	

### 6.2.2 Conditions initiales

La simulation de ce scénario requiert plusieurs étapes. Pour chacune des étapes, des conditions initiales et des conditions aux limites doivent être définies. Les conditions initiales suivantes sont utilisées pour chacune des étapes :

Étape 1 : Comme le scénario précédent, un gradient de pression hydrostatique moyen de 12 kPa/m est spécifié. La saturation initiale en gaz est de 30% pour le shale d'Utica et une saturation nulle est utilisée pour la faille.

Étape 2 : les résultats obtenus pour l'étape 1 sont utilisés comme des conditions initiales de cette étape.

Étape 3 : les résultats obtenus pour l'étape 2 sont utilisés comme des conditions initiales de cette étape.

### 6.2.3 Conditions aux limites

- *Surface du maillage (sommet du Groupe de Lorraine)*. Une pression hydrostatique (en considérant de l'eau douce) constante obtenue à partir de l'équation 6 pour la phase aqueuse (condition de Dirichlet) et une condition limite libre pour le transport du constituant CH<sub>4</sub> qui permet au gaz de quitter le domaine. Cette condition vise à représenter de façon implicite l'aquifère à nappe libre contenu dans les dépôts meubles.
- *Base du shale d'Utica*. Pour la phase aqueuse une pression constante obtenue à partir de l'équation 6 avant et après la fracturation hydraulique (étapes 1 et 3) et une pression constante de  $400 \times 10^5$  Pa pendant la fracturation hydraulique (étape 2). Pour la phase gazeuse, une saturation constante, égale à la saturation initiale considérée pour le Shale d'Utica (condition aux limites de Dirichlet).
- *Surface latérale à  $x = 0$  m et à  $x = 3000$  m*. Une pression fixe, obtenue à partir de l'équation 6, pour la phase aqueuse et une saturation constante, égale à la saturation initiale attribuée à chaque couche, pour la phase gazeuse (condition aux limites de Dirichlet).

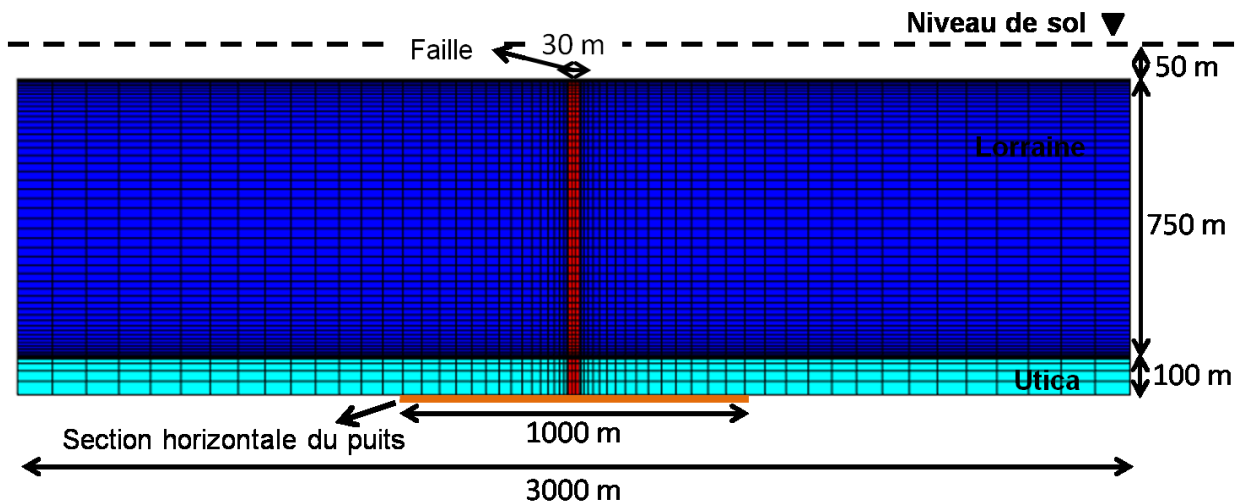


Figure 20. Discrétisation spatiale du scénario 2.



## 7. RÉSULTATS ET DISCUSSION

### 7.1 Scénario 1 – Puits abandonné

Dans cette section, nous présentons les principaux résultats obtenus pour le scénario 1 qui correspond au puits de production abandonné. Afin d'alléger le document, seul le débit vertical à travers l'annulaire du puits à la base des dépôts meubles ( $Z = -50$  m par rapport à la surface des dépôts meubles) est présenté. Cette valeur correspond donc au volume annuel de gaz qui fuit dans un aquifère superficiel à nappe libre en raison de fuites dans l'espace annulaire d'un puits abandonné.

Le débit volumique vertical du méthane  $Q_g$  et du fluide de formation  $Q_e$  sont calculés à partir des variables de pression, fraction massique et saturation simulées. Les débits calculés comprennent l'advection et la diffusion des constituants dans les phases aqueuse et gazeuse.

Les résultats obtenus pour le débit volumique du méthane et du fluide de formation en fonction du temps pour cinq différentes qualités de la cimentation de l'annulaire du puits sont présentés sur la Figure 21 (cas 1 à 5) et 22 (cas 6 à 10) et dans le Tableau 8 (cas 1 à 10). Les résultats indiquent clairement l'influence des propriétés hydrauliques (plus particulièrement la perméabilité équivalente) de l'annulaire entre le coffrage de production et la formation géologique sur l'importance des fuites de gaz et du fluide de formation vers la surface. Pour les cinq cas étudiés, les résultats de simulations prédisent des fuites des fluides dans l'aquifère superficiel. Cependant, la magnitude des fuites simulées dépend fortement des valeurs de perméabilité utilisées. En se basant sur les analyses présentées dans la section 6.2, les résultats obtenus peuvent être interprétés selon l'état du ciment.

#### 7.1.1 Ciment frais (cas 1 et 2)

Les perméabilités considérées pour le ciment dans ces deux cas correspondent à la plage de valeurs présentées par *Bachu et Bennion (2009)* et *Crow et al., (2010)* pour le ciment frais. D'après ces auteurs, un ciment dont la perméabilité est comprise dans cette plage de perméabilité ne présente pas de danger de fuite et l'intégrité à long terme du puits est assurée. Les résultats obtenus dans notre étude confirment ces pronostics. En effet, les fuites de gaz vers l'aquifère superficiel (Figure 21a) sont très faibles ( $1.97 \times 10^{-4}$  m<sup>3</sup>/an après 250 an pour le cas 1 et  $1.32 \times 10^{-2}$  m<sup>3</sup>/an après 250 an pour le cas 2). Pour les deux cas, la saturation maximale atteinte pour le gaz dans le ciment est de 10%. Cette valeur correspond à la saturation considérée pour le Groupe de Lorraine.

Le mécanisme de transfert du gaz depuis du Groupe de Lorraine vers le ciment est purement diffusif (contrôlé par le gradient de concentration) pendant les premières

années (50 ans pour le cas 1 et 20 ans pour le cas 2) et devient advectif (contrôlé par le gradient de pression) par la suite.

En ce qui concerne le débit du fluide de formation, les résultats obtenus (Figure 21b) montrent une augmentation rapide du débit de la saumure dans les premières années. Cette augmentation est due à la migration du gaz depuis le shale vers le ciment. Comme nous pouvons constater, le débit de la saumure diminue par la suite et atteint une valeur légèrement inférieure à sa valeur initiale. Cette différence par rapport à la valeur initiale est liée à la présence de gaz qui occupe une partie de l'espace poreux, ce qui contribue à réduire le débit de la saumure par rapport à la condition initiale où le gaz n'était pas présent dans le ciment. Comme pour le gaz, les fuites de la saumure vers l'aquifère superficiel sont très faibles ( $5.35 \times 10^{-6}$  m<sup>3</sup>/an après 250 an pour le cas 1 et  $2.57 \times 10^{-4}$  m<sup>3</sup>/an après 250 an pour le cas 2).

### **7.1.2 Ciment dégradé (cas 3, 4 et 5)**

A partir des analyses de terrain, [Crow et al., \(2010\)](#) et [Gasda et al., \(2013\)](#) ont obtenu des valeurs allant environ de  $10^0$  à  $10^2$  mDarcy pour la perméabilité équivalente de l'annulaire de trois puits dont le ciment est dégradé (Tableau 5). Comme discuté dans la section 6.2, la perméabilité importante de cette espace par rapport au ciment frais est due à la présence de discontinuités (fractures) dans les gaines de ciment. Les résultats obtenus pour les cas 3, 4 et 5 montrent une influence très importante de la perméabilité de l'espace annulaire de ciment sur les fuites de gaz. Pour une augmentation de deux ordres de grandeur de la perméabilité par rapport au cas de base (cas 1), le débit volumique du gaz augmente d'environ de quatre ordres de grandeur. Pour une perméabilité de  $10^2$  mDarcy (qui correspond à la valeur présentée par [Gasda et al., \(2013\)](#) pour un puits de pétrole) le débit du gaz atteint une valeur de 900 m<sup>3</sup>/an après uniquement 10 ans et une valeur de 1100 m<sup>3</sup>/an après 50 ans. Ces valeurs n'excèdent pas le critère de 300 m<sup>3</sup>/j ( $1.09 \times 10^5$  m<sup>3</sup>/an) mesurée à l'évent spécifiée dans le règlement de l'Alberta comme étant une fuite du gaz dangereuse qui nécessite une intervention immédiate. Cependant, nous avons uniquement considéré des perméabilités équivalentes comprises entre  $10^0$  et  $10^2$  mDarcy pour le ciment. Une perméabilité équivalente supérieure à cette limite peut se produire si les zones poreuses derrière le coffrage ne sont pas complètement cimentées. Dans ce cas, le flux du gaz augmentera et pourra éventuellement atteindre ou dépasser la valeur de 300 m<sup>3</sup>/jour. La simulation de ces scénarios est en cours et les résultats seront présentés dans les futures communications.

Le temps d'arrivée du gaz diminue avec l'augmentation de la perméabilité et peut être distingué sur les courbes de la Figure 21a par un changement brusque de la pente (200 ans pour le cas 3, 18 ans pour le cas 4 et 2 ans pour le cas 5). La saturation maximale

du gaz dans le ciment à la base des dépôts meubles pour les cas 3, 4 et 5 est de 15, 40 et 47%, respectivement.

Les résultats présentés sur la Figure 21b montrent clairement l'influence de la perméabilité équivalente du ciment sur le débit de la saumure vers la surface (uniquement Cas 4 et 5). Pour le cas 3, les résultats sont similaires aux cas 1 et 2. Pour le cas 4,  $k_c = 10^1$  mDarcy, une première augmentation de débit de la saumure se produit dans les deux premières années suite à la migration du gaz vers le ciment depuis le groupe de Lorraine. Ensuite, avec l'arrivée du gaz depuis du shale d'Utica (après 18 ans), le débit de la saumure ré-augmente pour une deuxième fois et atteint une valeur maximale de  $0.25 \text{ m}^3/\text{an}$ . Comme les cas précédents, le débit de la saumure diminue par la suite et atteint une valeur bien inférieure à sa valeur initiale. Pour le cas 5,  $k_c = 10^2$  mDarcy, le résultat est similaire au cas 4. Néanmoins, contrairement au cas précédent, on obtient une seule phase d'augmentation du débit de saumure. Celle-ci est due à l'arrivée très rapide du gaz depuis le shale d'Utica à la surface (après uniquement 2 ans). Pour ce cas le débit maximum de la saumure est de  $4.5 \text{ m}^3/\text{an}$ .

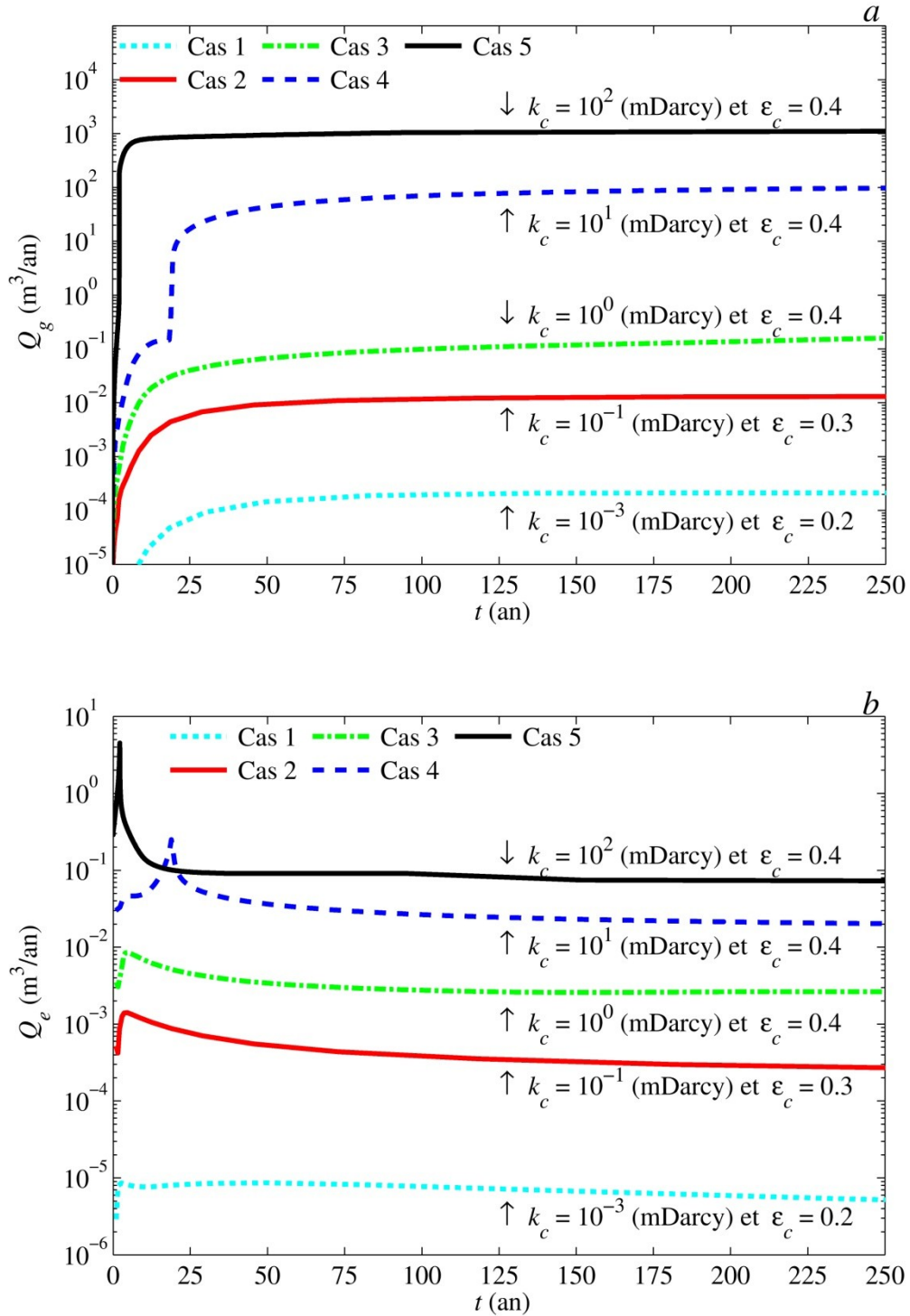
### **7.1.3 Shale d'Utica fracturé (cas 6 à 10)**

Les propriétés du ciment provenant des cas 1 à 5 ont été utilisées dans une nouvelle série de cinq simulations (cas 6 à 10) dans lesquelles la porosité et la perméabilité du Shale d'Utica sont augmentées suite à une opération de fracturation hydraulique. L'influence de la perméabilité du Shale d'Utica sur le débit du méthane est présentée sur la Figure 22 (courbes colorées pour  $k_u = 10^{-1}$  mDarcy et courbes grises pour  $k_u = 10^{-3}$  mDarcy).

Dans le cas d'une cimentation parfaite ( $k_c = 10^{-3}$  et  $10^{-1}$  mDarcy ; cas 6 et 7 ; Figure 22), aucune différence ne peut être observée par rapport aux cas 1 et 2. Les débits du gaz et du fluide de formation obtenus pour ces cas sont dus à la migration du gaz depuis le Groupe de Lorraine. Les mêmes paramètres sont utilisés pour le Groupe de Lorraine et le ciment dans les simulations et donc, les mêmes résultats sont obtenus.

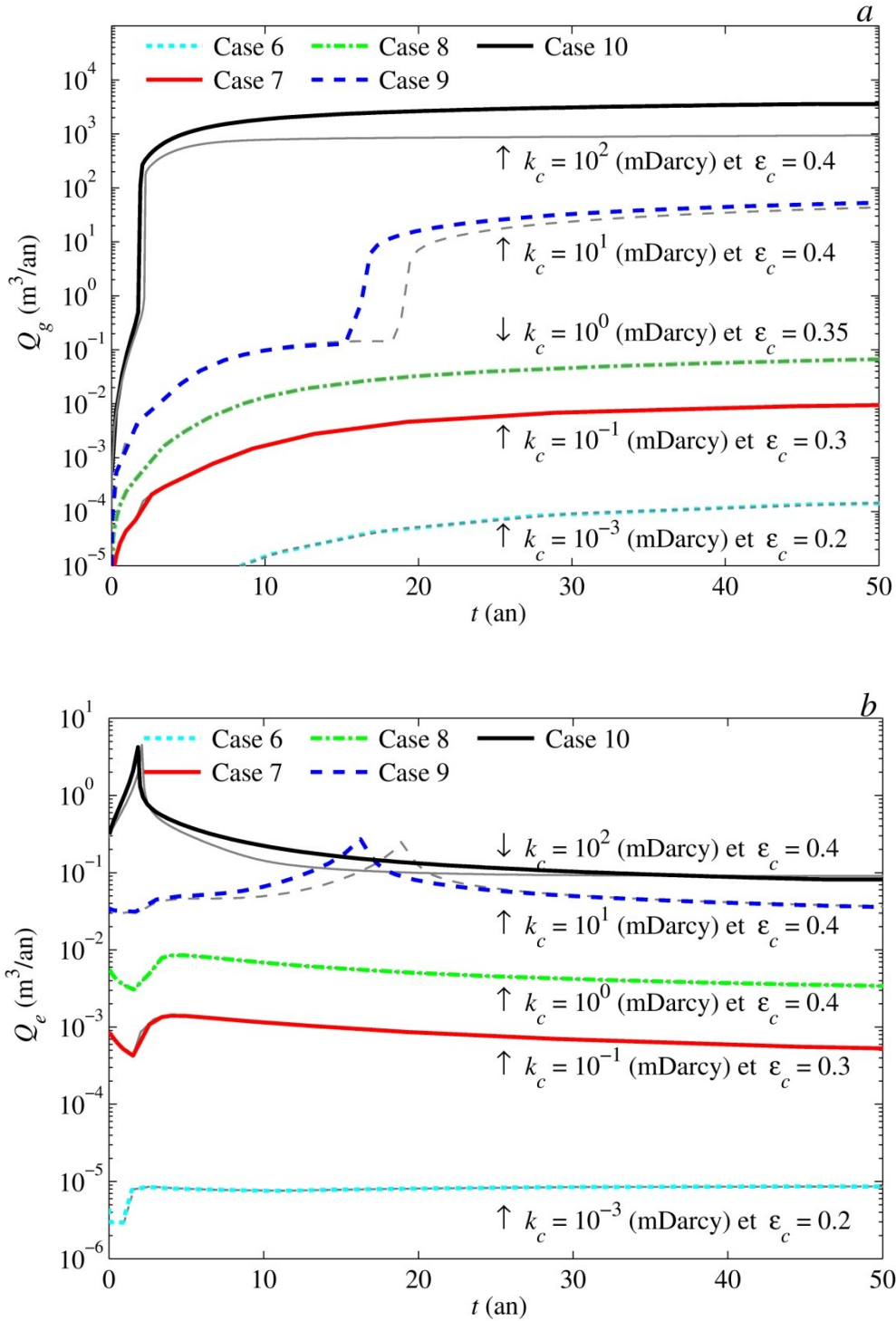
Pour le cas d'une cimentation inadéquate ( $k_c = 10^0$ ,  $10^1$  et  $10^2$  mDarcy ; cas 8, 9 et 10 ; Figure 22), on observe un temps d'arrivée plus court et un débit volumique plus élevé pour une perméabilité plus importante du Shale d'Utica (pour le  $k_c = 10^0$ , la différence arrive à environ 125 ans et ne peut pas être distinguée sur cette figure). Une perméabilité plus élevée du shale entraîne donc une migration plus importante du gaz de la formation géologique vers le ciment ( $Q_g = V \times A$  où  $V$  est la vitesse de l'écoulement et  $A$  est la section de l'annulaire du puits). Cette augmentation de la migration vers le ciment (vitesse plus élevée par rapport au shale non-fracturé) est responsable de l'arrivée plus rapide du gaz vers la surface. Malgré une influence de la

perméabilité du Shale d'Utica sur les débits du gaz et de la saumure, elle est marginale par rapport à l'influence de la qualité de la cimentation.



**Figure 21.** Influence de la perméabilité de l'annulaire du puits sur la fuite a) du méthane et b) du fluide de formation vers les dépôts meubles. Les paramètres utilisés pour ces calculs sont présentés dans le Tableau 11. Porosité et perméabilité du Shale d'Utica :  $\epsilon_u = 3\%$  et  $k_u = 10^{-3}$  mDarcy.





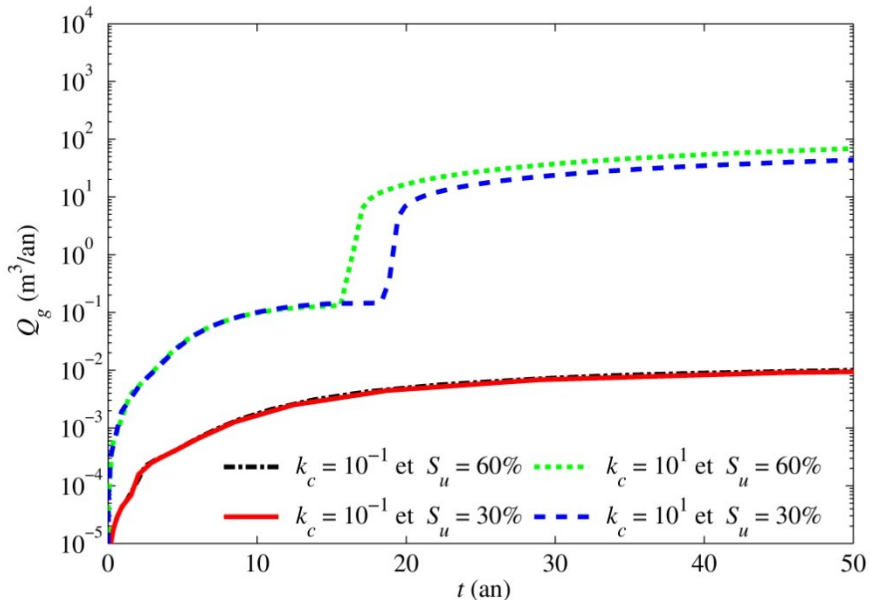
**Figure 22.** Influence de la perméabilité de l'annulaire du puits sur la fuite a) du méthane et b) fluide de formation vers les dépôts meubles pour une période de 50 ans. Les paramètres utilisés pour ces calculs sont présentés dans le Tableau 11. Porosité et perméabilité du shale d'Utica :  $\varepsilon_u = 7\%$  et  $k_u = 10^{-1}$  mDarcy. Les résultats de la Figure 20 sont présentés en gris.

**Tableau 8.** Le débit du gaz et du fluide de formation en fonction du temps.

	$Q_g$ (m <sup>3</sup> /an)				
	2 ans	5 ans	10 ans	50 ans	200 ans
Shale d'Utica ( $\varepsilon = 3\%$ et $k = 10^{-3}$ mD)					
Cas 1	$3.08 \times 10^{-6}$	$4.06 \times 10^{-6}$	$1.95 \times 10^{-5}$	$1.45 \times 10^{-4}$	$2.13 \times 10^{-4}$
Cas 2	$1.57 \times 10^{-4}$	$4.08 \times 10^{-4}$	$2.15 \times 10^{-3}$	$9.12 \times 10^{-3}$	$1.29 \times 10^{-2}$
Cas 3	$9.22 \times 10^{-4}$	$3.22 \times 10^{-3}$	$1.36 \times 10^{-2}$	$6.53 \times 10^{-2}$	$1.39 \times 10^{-1}$
Cas 4	$5.82 \times 10^{-3}$	$2.42 \times 10^{-2}$	$9.84 \times 10^{-2}$	44.13	91.68
Cas 5	173.61	546.83	900.61	1100.51	1125.46
Shale d'Utica ( $\varepsilon = 7\%$ et $k = 10^{-1}$ mD)					
Cas 6	$3.07 \times 10^{-6}$	$3.95 \times 10^{-5}$	$1.97 \times 10^{-5}$	$1.43 \times 10^{-4}$	$2.13 \times 10^{-4}$
Cas 7	$1.63 \times 10^{-4}$	$4.71 \times 10^{-4}$	$2.23 \times 10^{-3}$	$9.35 \times 10^{-3}$	$1.32 \times 10^{-2}$
Cas 8	$9.24 \times 10^{-4}$	$3.20 \times 10^{-3}$	$1.34 \times 10^{-2}$	$6.55 \times 10^{-2}$	$1.66 \times 10^{-1}$
Cas 9	$7.03 \times 10^{-3}$	$3.05 \times 10^{-2}$	$1.08 \times 10^{-1}$	53.59	92.70
Cas 10	269.22	1086.96	1918.94	3580.83	3603.57
	$Q_e$ (m <sup>3</sup> /an)				
	2 ans	5 ans	10 ans	50 ans	200 ans
Shale d'Utica ( $\varepsilon = 3\%$ et $k = 10^{-3}$ mD)					
Cas 1	$8.60 \times 10^{-6}$	$8.25 \times 10^{-6}$	$8.21 \times 10^{-6}$	$8.14 \times 10^{-6}$	$5.34 \times 10^{-6}$
Cas 2	$8.64 \times 10^{-4}$	$1.41 \times 10^{-3}$	$1.06 \times 10^{-3}$	$5.53 \times 10^{-4}$	$3.01 \times 10^{-4}$
Cas 3	$5.02 \times 10^{-3}$	$8.51 \times 10^{-3}$	$6.82 \times 10^{-3}$	$3.46 \times 10^{-3}$	$2.63 \times 10^{-3}$
Cas 4	$3.31 \times 10^{-2}$	$4.60 \times 10^{-2}$	$4.92 \times 10^{-2}$	$3.61 \times 10^{-2}$	$2.13 \times 10^{-2}$
Cas 5	4.50	$3.15 \times 10^{-1}$	$1.44 \times 10^{-1}$	$8.88 \times 10^{-2}$	$7.53 \times 10^{-2}$
Shale d'Utica ( $\varepsilon = 7\%$ et $k = 10^{-1}$ mD)					
Cas 6	$8.54 \times 10^{-6}$	$8.22 \times 10^{-6}$	$8.15 \times 10^{-6}$	$8.03 \times 10^{-6}$	$5.65 \times 10^{-6}$
Cas 7	$8.49 \times 10^{-4}$	$1.39 \times 10^{-3}$	$1.12 \times 10^{-3}$	$5.56 \times 10^{-4}$	$2.97 \times 10^{-4}$
Cas 8	$4.97 \times 10^{-3}$	$8.58 \times 10^{-3}$	$6.79 \times 10^{-3}$	$3.33 \times 10^{-3}$	$2.35 \times 10^{-3}$
Cas 9	$3.29 \times 10^{-2}$	$4.95 \times 10^{-2}$	$6.48 \times 10^{-2}$	$3.56 \times 10^{-2}$	$1.97 \times 10^{-2}$
Cas 10	4.23	$3.95 \times 10^{-1}$	$2.15 \times 10^{-1}$	$8.18 \times 10^{-2}$	$7.12 \times 10^{-2}$

### 7.1.4 Influence de la saturation en gaz du Shale d'Utica

L'influence de la saturation en gaz du shale d'Utica sur le débit du méthane vers la surface est représentée sur la Figure 23 (courbes vertes et noires pour  $S_u = 60\%$  et courbes rouges et bleues pour  $S_u = 30\%$ ). Pour le cas d'une cimentation parfaite ( $k_c = 10^{-1}$  mDarcy), aucune différence ne peut être observée entre les résultats. Comme pour les résultats présentés dans le paragraphe précédent, le débit du gaz obtenu pour les deux cas est dû à la migration du gaz depuis le Groupe de Lorraine. Pour le cas d'une cimentation inadéquate ( $k_c = 10^1$  mDarcy), on observe un temps d'arrivé plus court et un débit volumique légèrement plus élevé du gaz pour une saturation plus élevée. En effet, une saturation plus élevée est l'équivalent d'une pression plus élevée pour le gaz dans le Shale d'Utica. Celle-ci cause un écoulement plus rapide du gaz dans le ciment et par conséquent l'arrivée plus rapide du gaz. Cette vitesse plus importante explique le débit de gaz plus important vers l'aquifère superficiel.



**Figure 23.** Étude de la sensibilité du débit volumique calculé pour le méthane à la saturation du Shale d'Utica pour une période de 50 ans. Les paramètres utilisés pour ces calculs sont présentés dans le Tableau 11. Les indices  $c$  et  $u$  font référence au ciment et au Shale d'Utica, respectivement. Porosité et perméabilité du shale d'Utica :  $\varepsilon_u = 3\%$  et  $k_u = 10^{-3}$  mDarcy.

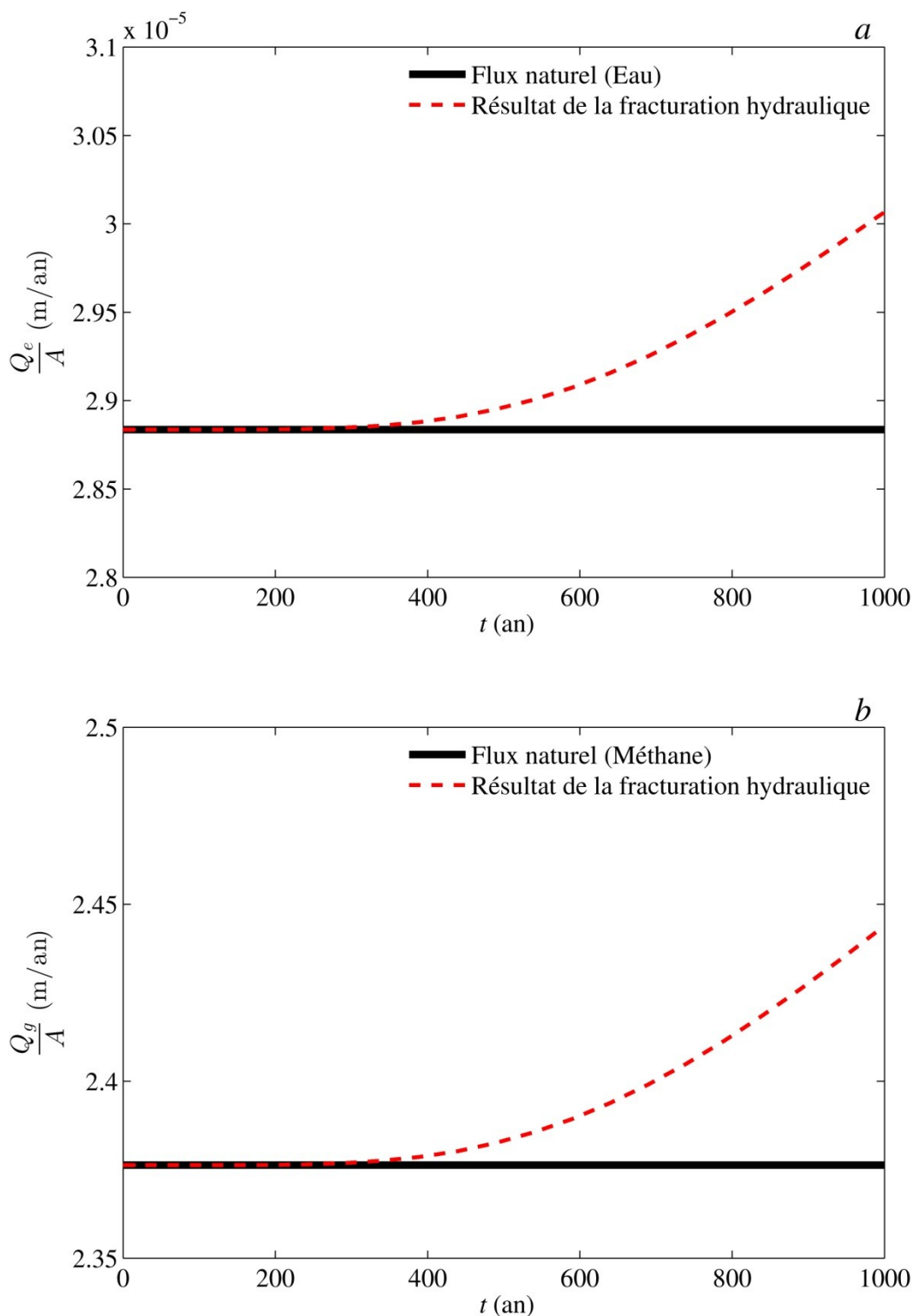
## 7.2 Scénario 2 - Migration du gaz et des fluides de formation le long des failles

Dans cette section, nous présentons les résultats obtenus pour ce scénario conceptuel. Les simulations sont effectuées pour une période de 1000 ans. Le système d'équations A.20 et A.21 est résolu pour la pression  $p$  et la fraction massique  $X$  et la saturation  $S$  du méthane. A partir de ces variables, les flux (débits spécifiques) verticaux  $Q/A$  (m/an) de saumure et du méthane traversant différentes sections transversales de la faille sont ensuite calculés. Les flux calculés comprennent l'advection et la diffusion des constituants de chaque phase. Dans le cadre de ce rapport, nous présentons uniquement les flux verticaux dans la faille à la base des dépôts de meubles ( $Z = -50$  m par rapport à la surface des dépôts meubles).

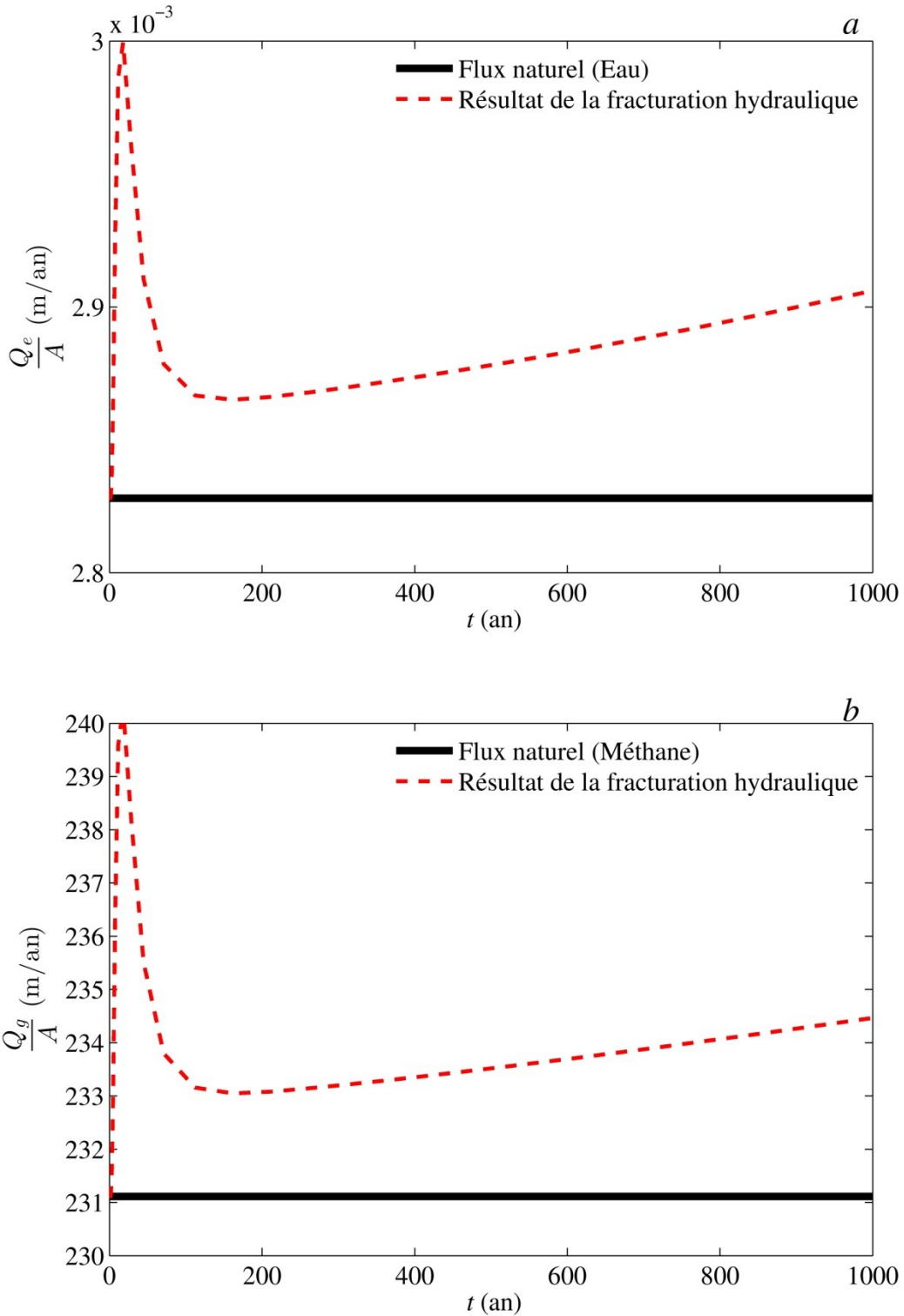
Les résultats obtenus pour le flux volumique en fonction du temps pour deux perméabilités de la faille sont présentés sur les Figures 24 et 25 et au Tableau 9. Le temps représenté correspond au temps écoulé depuis le début des activités de fracturation hydraulique. Les courbes noires représentent le flux naturel de la saumure et du gaz tandis que les courbes rouges représentent les flux calculés à partir du début de la fracturation hydraulique. Les résultats indiquent l'influence de la fracturation hydraulique et des propriétés de la faille sur la migration des fluides vers la surface.

Pour les deux cas étudiés, les résultats de simulations montrent une modification du flux naturel de gaz naturel et de saumure après la fracturation. Cependant, la magnitude et l'échelle du temps des résultats dépendent fortement de la valeur de la perméabilité considérée pour la faille. Cette modification se manifeste après 300 ans pour une perméabilité de la faille de  $10^{-3}$  mDarcy et après uniquement un an pour une perméabilité de  $10^{-1}$  mDarcy. Pour les deux cas étudiés, le flux du gaz est plus important que le flux de la saumure.

Dans le cas d'une perméabilité réaliste de la faille ( $k = 10^{-3}$  mD), les fuites simulées de saumure et de méthane vers les aquifères superficiels augmentent de 4.51% et 2.95% par rapport au flux naturel ( $3.01 \times 10^{-5}$  m/an pour la saumure et 2.37 m/an pour le méthane) après une période de 1000 ans suivant la fracturation hydraulique. Dans le cas d'une perméabilité plus grande de la faille ( $k = 10^{-1}$  mD), les fuites simulées de saumure et de méthane vers les aquifères superficiels augmentent respectivement de 6.01% et 3.97% de leur flux naturel ( $2.83 \times 10^{-3}$  m/an pour la saumure et 231.11 m/an pour le méthane) après une période de 18 ans et de 2.82% et 1.46% de leur flux naturel après une période de 1000 ans suivant la fracturation hydraulique.



**Figure 24.** La migration a) de la saumure et b) du méthane à travers une faille vers la surface. La section horizontale du puits croise la base de la faille. La perméabilité de la faille est de  $k_f = 10^{-3}$  mDarcy. D'autres paramètres utilisés pour ces calculs sont listés dans le Tableau 7.



**Figure 25.** La migration a) de la saumure et b) du méthane à travers une faille vers la surface. La section horizontale du puits croise le pied de la faille. La perméabilité de la faille est de  $k_f = 10^{-1}$  mDarcy. D'autres paramètres utilisés pour ces calculs sont listés dans le Tableau 7.

**Tableau 9.** Le flux du gaz et du fluide de formation en fonction du temps.

	Flux Q/A (m/an) Naturel	Flux Q/A (m/an) après la fracturation				
		20 ans	50 ans	100 ans	500 ans	1000 ans
Faille ( $\varepsilon = 10\%$ et $k = 10^{-3}$ mD)						
Saumure	$2.88 \times 10^{-5}$	$2.88 \times 10^{-5}$	$2.88 \times 10^{-5}$	$2.88 \times 10^{-5}$	$2.89 \times 10^{-5}$	$3.01 \times 10^{-5}$
Gaz	2.37	2.37	2.37	2.37	2.38	2.44
Faille ( $\varepsilon = 10\%$ et $k = 10^{-1}$ mD)						
Saumure	$2.83 \times 10^{-3}$	$3.00 \times 10^{-3}$	$2.91 \times 10^{-3}$	$2.87 \times 10^{-3}$	$2.88 \times 10^{-3}$	$2.91 \times 10^{-3}$
Gaz	231.11	240.29	235.50	233.16	233.55	234.47

## CONCLUSIONS

Cette étude constitue l'étude E3-10 du plan de réalisation l'étude environnementale stratégique sur les gaz de schiste et concerne la modélisation, à partir de simulation numérique, de la migration des eaux de fracturation, de formation et du méthane, en utilisant les variables physiques (géologiques, physicochimiques et hydrogéologiques) propres à la province géologique des Basses Terres du Saint-Laurent et de ses bassins versants.

L'objectif de cette étude était d'identifier et d'évaluer les problématiques environnementales reliées à la migration du méthane et des fluides de fracturation en relation avec les activités de fracturation hydraulique dans les Basses-Terres du Saint-Laurent. Plus particulièrement, cette étude visait à identifier et analyser les mécanismes de migration de ces fluides vers les aquifères superficiels d'eau douce potentiellement utilisés comme source d'approvisionnement en eau potable.

Dans un premier temps, une synthèse et une analyse des problématiques environnementales rapportées dans la littérature ont été présentées. De façon générale, les problématiques environnementales peuvent être attribuées à la conception du puits ainsi qu'aux activités de fracturation hydraulique. Il apparaît que les fuites de gaz attribuables aux problématiques de cimentation des puits constituent un problème reconnu par l'industrie pétrolière et gazière qui n'est pas spécifique à l'exploitation des gaz de schiste. Bien que les fuites de gaz reliées à la cimentation des puits puissent survenir rapidement dans le cas de mauvaises pratiques de cimentation, la dégradation à long terme du ciment peut également mener à des fuites de gaz considérables. L'état de dégradation du ciment peut être évalué de façon indirecte à l'aide de méthodes géophysiques ou de façon directe à l'aide d'essais d'interférence verticaux. Pour ce qui est des problématiques reliées à la fracturation hydraulique, les données publiées pour l'instant sont peu nombreuses et permettent difficilement d'en évaluer l'importance.

Dans un deuxième temps, les problématiques reliées à la cimentation des puits ainsi qu'à la fracturation hydraulique ont été simulées, par modélisation numérique, en utilisant les variables physiques propres à la province géologique des Basses-Terres du Saint-Laurent. Le modèle retenu est DuMux, un simulateur d'écoulement multiphase multi-constituant non-isotherme et de transport en milieu poreux basé sur la méthode des éléments finis et des volumes de contrôle. Afin de rendre le modèle applicable à cette étude, le système de fluide utilisé par DuMux a dû être modifié afin d'inclure les propriétés du méthane, de la saumure ainsi que du mélange entre ces fluides.

Bien que les simulations numériques sont basées sur des modèles conceptuels réalistes, plusieurs simplifications et suppositions sont considérées : 1) l'effet des fractures et failles discrètes n'est pas pris en compte, i.e. nous avons supposé un milieu



poreux équivalent, 2) les propriétés homogènes et isotropes sont supposés pour les unités géologiques, 3) la dissolution du méthane dans les liquides était rapide (à l'équilibre). 4) l'effet de dispersion et dégradation du méthane et des contaminants dans les aquifères peu profonds, ce qui peut diminuer les fractions massiques, est négligé.

Le premier scénario simulé visait à étudier le comportement d'un puits d'exploitation de gaz de shale abandonné afin d'évaluer s'il pose un problème environnemental à long terme pour les aquifères superficiels. Dans ce scénario, un puits vertical de 1000 m de profondeur recoupe une séquence géologique composée du Shale d'Utica (200 m), du Groupe de Lorraine (750 m) et des dépôts meubles qui constituent un aquifère superficiel à nappe libre. Les résultats de simulation suggèrent que la présence d'un ciment frais de bonne qualité et bien installé dans la section annulaire du puits compris entre la formation géologique et le coffrage ne pose pas de problématique de fuites du gaz à long terme. Dans le meilleur des cas, les fuites simulées de méthane vers les aquifères superficiels sont de l'ordre de  $1.97 \times 10^{-4} \text{ m}^3/\text{an}$  après une période de 250 ans suivant la fermeture du puits. Toutefois, une mauvaise mise en place du ciment ou bien sa dégradation à long terme pourrait donner lieu à des fuites notables de méthane dans les aquifères superficiels. Dans le pire des cas simulés, les fuites de méthane vers les aquifères superficiels sont de l'ordre de  $900 \text{ m}^3/\text{an}$  seulement 10 ans après l'abandon du puits. Les résultats de simulation montrent que selon la qualité de l'endommagement du ciment, des fuites notables de gaz pourraient survenir dans une période comprise entre quelques années à près de 200 ans. C'est donc dire que certaines fuites pourraient être détectées seulement plusieurs années suivant à la fermeture du puits.

Une analyse de sensibilité a également été réalisée afin d'évaluer l'importance de l'augmentation de la perméabilité du Shale d'Utica suite aux activités de fracturation hydraulique sur la vitesse et de migration du méthane vers la surface et le volume des fuites. Il apparaît que la fracturation hydraulique favorise une augmentation de la vitesse de migration et le volume des fuites, mais de façon marginale par rapport à la qualité de la cimentation des puits.

Les flux maximums du méthane calculés à l'aide des simulations numériques ( $3 \text{ m}^3/\text{jour}$  pour le cas 5 et  $13 \text{ m}^3/\text{jour}$  pour le cas 10) restent inférieurs à la valeur de  $300 \text{ m}^3/\text{jour}$  mesurée à l'évent spécifiée dans le règlement de l'Alberta comme étant une fuite du gaz dangereuse qui nécessite une intervention immédiate. Il faut noter que dans le cadre de ce projet, nous avons uniquement considéré des perméabilités équivalentes inférieures à  $10^2 \text{ mDarcy}$  pour le ciment. Une perméabilité équivalente supérieure à cette limite peut se produire si les zones poreuses derrière le coffrage ne sont pas complètement cimentées. Dans ce cas, le flux du gaz augmentera et pourra éventuellement atteindre ou dépasser la valeur de  $300 \text{ m}^3/\text{jour}$ . La simulation de ces scénarios est en cours et les résultats seront présentés dans les futures communications.

Le deuxième scénario simulé vise à étudier l'influence de la fracturation hydraulique sur la migration du gaz et des fluides de formation le long d'une faille afin d'évaluer s'il pose un problème environnemental à long terme pour les aquifères superficiels. Dans ce scénario, un puits vertical de 900 m de profondeur recoupe une séquence géologique composée du Shale d'Utica (100 m), du Groupe de Lorraine (750 m) et de dépôts meubles (50 m) perméables à la surface. Les résultats préliminaires de modélisation laissent supposer que la fracturation hydraulique ne pourrait pas causer une migration significative de fluides de formation et de méthane vers les aquifères superficiels dans un horizon de 1000 ans. Même en considérant une perméabilité plus grande pour la faille, aucune migration significative de fluides de formation et de méthane vers les aquifères superficiels n'est prévue dans un horizon de 1000 ans. Dans le cas d'une perméabilité réaliste de la faille ( $k = 10^{-3}$  mD), les fuites simulées de saumure et de méthane vers les aquifères superficiels augmentent de 4.51% et 2.95% par rapport au flux naturel ( $3.01 \times 10^{-5}$  m/an pour la saumure et 2.37 m/an pour le méthane) après une période de 1000 ans suivant la fracturation hydraulique. Dans le cas d'une perméabilité plus grande de la faille ( $k = 10^{-1}$  mD), les fuites simulées de saumure et de méthane vers les aquifères superficiels augmentent respectivement de 6.01% et 3.97% de leur flux naturel ( $2.83 \times 10^{-3}$  m/an pour la saumure et 231.11 m/an pour le méthane) après une période de 18 ans et de 2.82% et 1.46% de leur flux naturel après une période de 1000 ans suivant la fracturation hydraulique. Si on considère que les flux naturels de méthane et de saumure ne causent généralement pas de problématique environnementale, la migration du méthane et de la saumure suivant un épisode de fracturation hydraulique ne devrait pas non plus en causer.



## REMERCIEMENTS

Le travail présenté dans ce rapport a été effectué par Ali Nowamooz, chercheur post-doctoral au Département de géologie et de génie géologie de l'Université Laval sous la direction de Jean-Michel Lemieux, Professeur adjoint et Dr. René Therrien, Professeur titulaire.

Nous aimerions remercier John Molson, Professeur agrégé et titulaire de la Chaire de recherche du Canada sur l'hydrogéologie des milieux poreux fracturés et membre du Comité de l'ÉES sur les gaz de schiste pour avoir veillé à l'avancement du projet et avoir promulgué de précieux conseils concernant la réalisation de cette étude.

Nous tenons à remercier Michel Malo, également membre du comité de l'ÉES sur les gaz de schiste ainsi que les membres de la Chaire sur la séquestration géologique du CO<sub>2</sub> de l'Institut national de la recherche scientifique (INRS-ETE) pour leur collaboration et pour avoir rendu leurs données disponibles. Nous tenons à remercier particulièrement Dr. Elena Konstantinovskaya, associée de recherche à l'INRS-ETE, pour sa disponibilité et ses bons conseils. Nous tenons également à remercier les membres du comité ÉES pour leurs commentaires et suggestions.

Nous remercions Pierre Therrien, du département de géologie et de génie géologie de l'Université Laval, pour son aide et sa disponibilité pour l'installation du code informatique utilisé dans ce projet.

Enfin, nous exprimons toute notre reconnaissance au personnel de la carothèque du Ministère des Ressources naturelles pour leur collaboration pendant notre passage et à Charles Lamontagne du MDDEFP pour son aide à la réalisation de cette étude.



## RÉFÉRENCES

Adams, J.J., Bachu, S., (2002). Equations of state for basin geofluids: algorithm review and intercomparison for brines. *Geofluids* 2, 257–271 Erratum: *Geofluids*, 4, 250.

Amann-Hildenbrand, A., Ghanizadeh, A., Krooss, B.M., (2012), Transport properties of unconventional gas systems. *Marine and Petroleum Geology*, Volume 31, Issue 1, March 2012, Pages 90-99.

Arthur, J.D., Bohm, B., and Layne, M., (2008a), Hydraulic fracturing considerations for natural gas wells of the Marcellus Shale: presented at the Ground Water Protection Council 2008 annual forum, September 21–24, Cincinnati, OH, 16.

Arthur, J.D., Bohm, B., Coughlin, B.J., and Layne, M., (2008b). Evaluating the environmental implications of hydraulic fracturing in shale gas reservoirs: ALL Consulting, 21 p.

Bachu, S., Bennion, D.B., (2009). Experimental assessment of brine and/or CO<sub>2</sub> leakage through well cements at reservoir conditions. *International Journal of Greenhouse Gas Control* 3 (4), 494–501.

BAPE (Bureau Audience Publique sur Environnement), (2010). Comparaison des shales d'Utica et de Lorraine avec des shales en exploitation. Association petroliere et gaziere du Quebec, Documentation deposee, No DB25, 7 octobre 2010, 2 pages.

Bair, E.S., Freeman, D.C., and Senko, J.M., (2010). Subsurface gas invasion, Bainbridge Township, Geauga County, Ohio. Expert Panel Technical Report. Submitted to Ohio Dept. of Natural Resources, accessed on 12 May 2011. <http://www.dnr.state.oh.us/bainbridge/tabid/20484/Default.aspx>.

Bastian, P., (1999). Numerical Computation of Multiphase Flows in Porous Media. Habilitation, Christian-Albrechts-Universitat Kiel.

Bastian, P. and Helmig, R., (1999). Efficient fully-coupled solution techniques for two phase flow in porous Media. Parallel multigrid solution and large scale computations. *Adv. Water Resour.*, 23:199–216.

Batzle, M., Wang, Z., (1992). Seismic properties of pore fluids. *Geophysics*, 57, 1396–1408.

Bear, J., (1972). *Dynamics of Fluids in Porous Media*. Elsevier, New York.

Beebe, R.R. and Rauch, H.W., (1979). Lineaments and Ground-Water Chemistry as Exploration Tools for Devonian Shale Gas in the Midway-Extra Field of West Virginia, in

H. Barlow (ed.), Proceedings of the Third Eastern Gas Shales Symposium, US Department of Energy, Morgantown West Virginia, pp. 278-289.

Bédard, K., Duchaine, Y., Malo, M., (2010). Nouvelle analyse des données de puits gaziers et pétroliers dans la région de Sorel-Bécancour. Rapport préliminaire INRSCO2. V1. 1, Institut national de la recherche scientifique – Eau, Terre, Environnement, 73p.

Béland-Otis C. (2009). Géochimie des gaz rares des saumures et gaz naturel du réservoir de Bécancour, Québec, Canada. Mémoire présenté comme exigence partielle de la maîtrise en sciences de la terre. Université du Québec à Montréal.

Belinski, A., (2007). Numerical Simulation of CO<sub>2</sub> Sequestration in Geological Formations. PhD thesis, Institut für Wasserbau, Universität Stuttgart.

Bexte, D.C., Willis, M., De Bruijn, G.G., Eitzen, B., Fouillard, E., (2008). Improved cementing practice prevents gas migration. World Oil 229(6): 73-75.

Bol, G., Grant H., Keller S., Marcassa F. and De Rozières J., (1991). Putting a stop to gas channeling. Oilfield Review 3, no. 2 : 35-43.

Bonett, A., and Pafitis D., (1996). Getting to the root of gas migration, Oilfield review, 8(1), 36-49.

Boyd, D., Al-Kubti, S., Khedr, O.H., Khan, N., Al-Nayadi, K., Degouy, D., Elkadi, A., and Al Kindi, Z., (2006). Reliability of cement bond log interpretations compared to physical communication tests between formations, Society of Petroleum Engineers SPE 101420.

Breen, J., K. Revesz, F. Baldassare and S. McAuley. (2007). Natural gases in ground water near Tioga Junction, Tioga County, North-Central Pennsylvania - Occurrence and use of isotopes to determine origins. USGS Scientific Investigations Report -5085. p. 65.

Broderick, J., Anderson, K., Wood, R., Gilbert, P., Sharima, M., Footitt, A., Glynn, S., Nicholls, F., (2011). Shale gas: an updated assessment of the environmental and climate change impacts. A report commissioned by the Co-operative and undertaken by researchers at the Tyndall Centre, University of Manchester.

Brooks, A. N., Corey, A. T. (1964). Hydraulic Properties of Porous Media. In Hydrol.Pap. Fort Collins, Colorado State University.

Breysse D., Gérard B., (1997). Modelling of permeability in cement-based materials: Part 1- Uncracked medium. Cement and Concrete Research 27(5), 761-775.

Buckwalter, T. F. and M. E. Moore. (2007). Ground-Water resources and the hydrologic effects of petroleum occurrence and development, Warren County, Northwestern Pennsylvania, USGS Scientific Investigations Report 2006-5263, p. 86.

Calgary Herald, (2012). Regulators say hydraulic fracturing may have caused oil spill on farm near Innisfail, January, 17.

Caré, S., (2008). Effect of temperature on porosity and chloride diffusion in cement pastes, *Construction and Building Materials* 22 (7), 1560–1573.

Carlier, J.Ph., Burlion, N. (2011). Experimental and numerical assessment of the hydrodynamical properties of cementitious materials. *Transp. Porous Med.* 86, p.87–102.

Carman, P. C., (1937). Fluid Flow through a granular beds. *Trans. Inst. Chem. Eng.*, 15,150-166.

Castonguay, S., Dietrich, J., Shinduke, R., Laliberté, J.-Y., (2006). Nouveau regard sur l'architecture de la Plateforme du Saint-Laurent et des Appalaches du sud du Québec par le retraitement des profils de sismique réflexion M-2001, M-2002 et M-2003. Commission géologique du Canada; dossier public 5328, 19 pages, 2 feuillets.

Celia, M., Binning, P. A., (1992). Mass conservative numerical solution for two-phase flow in porous media with application to unsaturated flow. *Water Resources Research*, 28:2819–2828.

Celia, M.A., Nordbotten, J.M., Bachu, S., Dobossy, M., Court, B. (2009). Risk of leakage versus depth of injection in geological storage. *Energy Procedia* 1, 2573–2580.

Chafin, D.T., (1994). Sources and migration pathways of natural gas in near-surface ground water beneath the Animas River Valley, Colorado and New Mexico. *Water Resources Investigation Report 94-4006*. US Geological Survey, Denver, Colorado.

Chapoy, A., Coquelet, C., Richon, D., (2005). Corrigendum to Revised solubility data and modeling of water in the gas phase of the methane/water binary system at temperatures from 283.08 to 318.12 K and pressures up to 34.5 MPa. *Fluid Phase Equilib.* 230, 210–214.

Chung T.H., Ajlan, M., Lee, L.L. and Starling K.E., (1988). Generalized multiparameter correlation for nonpolar and polar fluid transport properties. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 27, 671-679.

Cluff, R. M., Byrnes, A. P., (2010). Relative permeability in tight gas sandstone reservoirs: The “Permeability Jail” model. Paper presented at the SPWLA 51st Annual Logging Symposium, Perth, Australia, 19-23 June.

Comeau, F.-A., Bédard, K. et M. Malo (2013). Lithostratigraphie standardisée du bassin des Basses-Terres du Saint-Laurent basée sur l'étude des diagraphies. Rapport INRSCO2-2013-V1.4, INRS-ÉTÉ, Québec, Canada.



Cooke, Jr., C.E., Kluck, M.P., and Medrano, R., (1983). Field measurements and annular pressure and temperature during primary cementing. SPE 11206, J. Petroleum Technology 1429-1438.

Crow, W., Carey, J.W., Gasda, S., Williams, D.B., Celia, M., (2010). Wellbore integrity analysis of a natural CO<sub>2</sub> producer. International Journal of Greenhouse Gas Control 4 (2), 186–197.

Davies, R. J., Mathias, S. A., Noss, J., Hustof, S., Newport, L., (2012). Hydraulic fractures: How far can they go?, Marine and Petrol. Geol., 37, 1-6.

Darcy, H., (1854). Les fontaines publiques de la ville de Dijon, Dalmont, Paris.

DEP (Pennsylvania Department of Environmental Protection) (2009). Notice of Violation to Cabot Oil and Gas, February 27.

Duan, Z., Mao, S., (2006). A thermodynamic model for calculating methane solubility, density and gas phase composition of methane-bearing aqueous fluids from 273 to 523 K and from 1 to 2000 bar. Geochimica et Cosmochimica Acta 70, 3369–3386.

Duan, Z., Moller, N., Weare, J.H., (1992). An equation of state for the CH<sub>4</sub>–CO<sub>2</sub> H<sub>2</sub>O system: I. Pure systems from 0 to 1000°C and 0 to 8000 bar. Geochim. Cosmochim. Acta 56, 2605–2617.

Duan, Z., Sun, R., (2003). An improved model calculating CO<sub>2</sub> solubility in pure water and aqueous NaCl solutions from 273 to 533 K and from 0 to 2000 bar. Chemical Geology 193, 257–271.

Duchaine, Y., Tourigny, Y., Beaudoin, G., Depuis, C., (2013). Potentiel en gaz naturel dans le Groupe d’Utica, Québec. rapport présenté pour le Ministère du Développement Durable, de l’Environnement et des Parcs (MDDEP) dans le cadre de l’Evaluation environnementale stratégique des gaz de schistes .

Duffy J. R., Smith N. O. and Nagy B. (1961). Solubility of natural gases in aqueous salt solutions. 1. Liquidus surfaces in the system CH<sub>4</sub>–H<sub>2</sub>O–NaCl–CaCl<sub>2</sub> at room temperatures and at pressures below 1000 psia. Geochim. Cosmochim. Acta 24, 23–31.

Dusseault, M. B., M. N. Gray, and P. A. Nawrocki (2000). Why oilwells leak: Cement behavior and long-term consequences. Paper presented at SPE International Oil and Gas Conference and Exhibition in China, SPE Beijing, China, 7-10 November.

Flemish, B. Darcis, M., Ebertseder, K., Faigle, B., Lauser, A., Mosthaf, K., Müthing, S., Nuske, P., Tatomir, A., Wolff, M., Helmig, R., (2011). DuMux: Dune for multi-{phase, component, scale, physics, ...} flow and transport in porous media. Advances in Water Resources, 34 (9), 1102 -1112.

Fountain, J.C., Jacobi, R.D., (2000). Detection of buried faults and fractures using soil gas analysis. *Environmental & Engineering Geoscience* 6(3): 201-208.

Fuller, E. N., Schettler, P. D., Giddings, J. C., (1966). A new method for prediction of binary gas- phase diffusion coefficients., *Ind. Eng. Chem.*, 58 (9), 19-27.

Gasda, S. E., Celia, M.A., Wang, J.Z., Duguid, A., (2013). Wellbore permeability estimates from vertical interference testing of existing wells. *Energy Procedia* 00 - 000 - 000.

Gassiat, C., Gleeson, T., Lefebvre, R., McKenzie, J., (2013). Hydraulic fracturing in faulted sedimentary basins: numerical simulation of potential long term contamination of shallow aquifers. *Sous-presse au Water Resources Research*.

Giddings, J.G., Kao, J.T.F., Kobayashi, R., (1966). Development of a High Pressure Capillary Tube Viscometer and Its application to Methane, Propane, and their mixtures in the gaseous and liquid regions. *J. Chem. Phys.* 45, 578.

Girard, P. (1993) *Projet de fermeture sécuritaire des puits, la région des Basses-Terres du Saint-Laurent - Phase 1*. Ministère de l'Énergie et des Ressources, Québec, 1993TA000-01. 122 pages.

Ghabezloo S., Sulem J., Guedon S., Martineau F., Saint-Marc J., (2008). Poromechanical behaviour of hardened cement paste under isotropic loading. *Cement and Concrete Research* 38(12), 1424 - 1437.

Gough, W.R., Waite, B.A., (1990). Oil and gas exploration and water quality considerations, chapter 29 in: *water resources in Pennsylvania: availability, quality and management*. Edited by S. K. Majumdar, E. W. Miller and R. R. Parizek. The Pennsylvania Academy of Science. pp. 384-398.

Gregory, K.B., Vidic, R.D., Dzombak, D.A., (2011). Water management challenges associated with the production of shale gas by hydraulic fracturing. *Elements*. 7 : 181-186.

Gurevich, A., Endres, B., Robertsonjr, J., Chilingar, G., (1993). Gas migration from oil and gas fields and associated hazards. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, vol. 9, no 3, p. 223 - 238.

Hanley, H.J.M., Haynes, W.,M., McCarty, R.D., (1977). The viscosity and Thermal conductivity coefficient for dense gaseous and Liquid Methane. *Journal of Physical and Chemical Reference*, 6, 597-609.

Hardy, F., Lamothe, M., (1997). Quaternary basin analysis using infrared simulated luminescence on borehole cores and cuttings. *Quaternary Science Reviews*, vol. 16, p. 417 - 426.

Harrison, S.S., (1983). Evaluating system for ground-water contamination hazards due to gaswell drilling on the glaciated Appalachian Plateau. *Ground Water*, vol. 21, no 6, p. 689 - 700.

Haynes, W.M., (1973). *Physica Amsterdam* 67 ,440.

Helmig, R., (1997). *Multiphase flow and transport processes in the subsurface*. Springer.

Hill, D.G., Lombardi, T.E. and Martin, J.P., (2004). Fractured shale gas potential in New York: *Northeastern Geology and Environmental Sciences*. v. 26, 49.

Howarth, R.W., Santoro, R., Ingraffea A., (2011). Methane and the greenhouse gas footprint of natural gas from shale formations. *Climatic Chang Lett*. Vol. 106 (4) , pp 679-690.

Jackson, R.E., Gorody, A.W., Mayer, B., Roy, J.W., Ryan, M.C., Van Stempvoort, D.R., (2013). Groundwater protection and unconventional gas extraction: the critical need for field-based hydrogeological research. *Ground Water* 51(4):488-510.

Jacobs, F., Wittmann, F.H., (1992). Long term behavior of concrete in nuclear waste repositories. *Nucl. Eng. Design* 138, 157 - 164.

Jiang, M., Griffin, M. W., Hendrickson, C., Jaramillo, P., Van Briesen, J., Venkatesh, A., (2011). Lifecycle greenhouse gas emissions of Marcellus shale gas. *Environmental Resource Letters*. 6, 034014.

Jurin, J., (1718). An account of some experiments shown before the Royal Society; with an enquiry into the cause of the ascent and suspension of water in capillary tubes. *Philos. Trans. R. Soc. Lond.* 30, 739-747.

Kemp, N.P., Thomas, D.C., Atkinson, G., Atkinson, B.L., (1989). Density modeling for brines as a function of composition, temperature and pressure. *SPE Production Engineering*, 4, 394–400.

Kozeny, J. (1927). *Über Kapillare Leitung Des Wassers in Boden*. *Sitzungsber Akad. Wiss.Wien Math.Naturwiss.Kl., Abt.2a*, 136,271-306.

Konstantinovskaya, E., Malo, M., Castillo, D. A., (2012). Present-day stress analysis of the St. Lawrence Lowlands sedimentary basin and implications for caprock integrity during CO<sub>2</sub> injection operation. *Tectonophysics*, 518–521, 119–137.

Konstantinovskaya, E., Rutqvist, J., Malo, M. (soumis). Fault stability and CO<sub>2</sub> storage in the Early Paleozoic sedimentary basin of the St. Lawrence Lowlands (Québec, Canada): insight from coupled reservoir-geomechanical modeling. *International Journal of Greenhouse Gas Control*.

Kresse, T.M, Warner, N.R., Hays, Ph.D., Down, A., Vengosh, A., Jackson, R.B., (2011). Shallow Groundwater Quality and Geochemistry in the Fayetteville Shale Gas-Production Area, North-Central Arkansas. Prepared in cooperation with the Arkansas Natural Resources Commission, Arkansas Oil and Gas Commission, Duke University, Faulkner County, Shirley Community Development Corporation, and the University of Arkansas at Fayetteville, and the U.S. Geological Survey Groundwater Resources Program

Lacombe, S., (1995). Influence of leaky boreholes on cross-formational groundwater flow and contaminant transport. *Water Resources Research*, vol. 31, no 8, p. 1871 - 1882.

Lavoie, J.Y., Marcil, J.S., Dorrins, P.K., Lavoie, J., Aguilera, R., (2011). Natural-Gas potential in the St.Lawrence Lowlands of Quebec: A Case Study. SPE 137593-PA, Canadian Unconventional Resources and International Petroleum Conference, 19-21 October 2010, Calgary, Alberta, Canada, 12 p.

Lee , D., Herman, J. D., Elsworth, D., Kim, H., Lee, H. (2011). A Critical Evaluation of Unconventional Gas Recovery from the Marcellus Shale, Northeastern United States. *KSCE Journal of Civil Engineering*, 15(4), 679-687.

Liteanu, E., Spiers, C.J., (2010). Fracture healing and transport properties of wellbore cement in the presence of supercritical CO<sub>2</sub>. *Chemical Geology* 281, 195–210.

Lyverse, M.A., Unthank, M.D., (1988). Assessment of Ground-Water Contamination in the Alluvial Aquifer near West Point, Kentucky. *Water-Resources Investigation Report 88-4166*, US Geological Survey, Louisville, Kentucky.

Magalhaes, A.L., Lito, P.F., Da Silva, F.A., Silva, C.M., (2013). Simple and accurate correlations for diffusion coefficients of solutes in liquids and supercritical fluids over wide ranges of temperature and density. *J. of Supercritical Fluids* 76, 94–114.

Majorowicz, J., Minea, V., (2012). Geothermal energy potential in the St-Lawrence River area, Quebec. *Geothermics*, 43, 25-36.

Maharajh, D., (1975). Solubility and Diffusion of Gases in Water, Ph.D. Thesis, Department of Chemistry, Simon Fraser University, British Columbia.

- Mehta, P.K. and Manmohan, D. (1980). Pore Size distribution and permeability of hardened cement pastes. Proceedings of the 7th International Conference on Chemistry of Cements, Paris, v. 3.
- Millington, R., and Quirk, J., (1961). Permeability of Porous Solids. Trans. Faraday Soc., 57:1200–1207.
- MIT, (2011). The Future of Natural Gas: An Interdisciplinary MIT Study. MIT Energy Institute, [web.mit.edu/mitei/research/studies/natural-gas-2011.shtml](http://web.mit.edu/mitei/research/studies/natural-gas-2011.shtml)
- Molofsky, L.J., Connor, J.A., Farhat, S.K., Wylie, A.S., Wagner, T., (2011). Methane in Pennsylvania water wells unrelated to Marcellus shale fracturing. Oil & Gas Journal 109(49): 54-93.
- Monlouis-Bonnaire, J. P., Verdier, J., Perrin, B., (2004). Prediction of the relative permeability to gas flow of cement-based materials, Cement and Concrete Research, 34, 737–744.
- Mutoru, J.W., Leahy-Dios, A., Firoozabadi, A., (2011). Modeling infinite dilution and Fickian diffusion coefficients of carbon dioxide in water, AIChE Journal 57, 1617–1627.
- Myers, T., (2012). Potential contaminant pathways from hydraulically fractured shale to aquifers, Ground Water, 50 (6): 872-882.
- Nelson, P.H., (2009). Pore-throat sizes in sandstones, tight sandstones, and shales. AAPG Bulletin 93, 329–340.
- Osborn, S.G., Vengosh, A., Warner, N.R., Jackson, R.B., (2011). Methane contamination of drinking water accompanying gas-well drilling and hydraulic fracturing. PNAS. 108: 8172-8176.
- Palliser, C., McKibbin, R., (1998a). A model for deep geothermal brines, I: T–P–X state-space description. Transport in Porous Media, 33, 65–80.
- Palliser, C., McKibbin, R., (1998b). A model for deep geothermal brines, II: Thermodynamic properties – density. Transport in Porous Media, 33, 129–54.
- Phillips S.L., Igbene A., Fair J.A., Ozbek H., Tavana M. (1981). A Technical Databook for Geothermal Energy Utilization. Lawrence Berkeley Laboratory Report 12810.
- Pittsburgh Geological Society. (2009). Natural Gas Migration Problems in Western Pennsylvania. <http://www.pittsburghgeologicalsociety.org/naturalgas.pdf>
- Poling, B.E., Prausnitz, J.M., O'Connell, J.P., (2001). The Properties of Gases and Liquids, 5th ed.; McGraw-Hill: New York.

Poyet, S., Charles, S., Honoré, N., L'hostis, V., (2011). Assessment of the unsaturated water transport properties of an old concrete: determination of the pore-interaction factor, *Cem. Concr. Res.* 41 (10) 1015 – 1023.

Rauch, H.W., (1983). An Investigation of ground-water chemistry as an exploration tool for natural gas in Martin County, Kentucky. In *Proceedings of the Appalachian Basin Industrial Associates*, Syracuse University, volume 5, pp. 127-139.

Reichenberg, D., (1979). Symp. Transp. Prop. Fluids and Fluid Mixtures, Natl. Eng. Lab., East Kilbride, Glasgow, Scotland.

Reinhardt, H.W., Gaber, K., (1990). From pore size distribution to an equivalent pore size of cement mortar, *Mater. Struct.* 23, 3–15.

Rogers, P.S.Z., Pitzer, K.S., (1982). Volumetric properties of aqueous sodium chloride solutions. *J. Phys. Chem. Ref. Data* 11 (1), 15–77.

Séjourné, S., Malet, X., Lefebvre, R., (2012). Synthèse hydrogéologique du Shale d'Utica et des unités sus-jacentes. Rapport soumis à Denis Lavoie, Commission Géologique du Canada, et à Charles Lamontagne, Ministère du Développement durable, de l'Environnement, de la Faune et des Parcs.

Setzmann U., Wagner, W., (1991). A new equation of state and tables of thermodynamic properties for methane covering the range from the melting line to 625 K at pressures up to 100 MPa. *J. Phys. Chem. Ref. Data* 20, 1061.

Sigal, R.F., (-). Mercury Capillary Pressure Measurements on Barnett Core. <http://shale.ou.edu/Content/Member%20Area/Papers/CapillaryPressure.pdf>

Soeder, D.J., (1988). Porosity and permeability of eastern Devonian gas shale: SPE Formation Evaluation, March, p. 116–124.

Spivey, J.P., McCain, W.D., North, R., (2004). Estimating density, formation volume factor, compressibility, methane solubility, and viscosity for oilfield brines at temperatures from 0 to 275°C, pressures to 200 MPa, and salinities to 5.7 mole/kg. *J. Can. Petrol. Technol.* 43 (7), 52–60.

Spycher, N., Pruess, K., Ennis-King, J., (2003). CO<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O mixtures in the geological sequestration of CO<sub>2</sub>. I. Assessment and calculation of mutual solubilities from 12 to 100°C and up to 600 bar. *Geochimica Cosmochimica Acta*, 67, 3015–3031.

Spycher, N., Pruess, K., (2005). CO<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O Mixtures in the geological sequestration of CO<sub>2</sub>. II. Partitioning in chloride brines at 12–100°C and up to 600 bar, *Geochim. Cosmochim. Acta*, Vol. 69, No. 13, pp. 3309–3320.

Stein, D., Griffin Jr., T.J., Dusterhoft, D., (2003). Cement pulsation reduces remedial cementing costs. *GasTIPS* 9(1) : 22-24.

Stephenson, T, Valle, J. E., Riera-Palou X., (2011). Modelling the relative GHG emissions of conventional and shale gas production. *Environ. Sci. Tech.* 45: 10757–10764.

Tarek, A., (2006). *Reservoir Engineering Handbook*. 3rd ed., Elsevier.

Taylor H.F.W., (1997). *Cement chemistry*, Thomas Telford, London.

Theriault, R., (2008). Caractérisation géochimique et minéralogique des shales de l'Utica et du Lorraine, Basses-Terres du Saint-Laurent – Base de données. Ministère des Ressources naturelles du Québec, SIGEOM, rapport 2008-EG-01, 185 p.

Theriault, R., (2012a). Caractérisation du Shale d'Utica et du Groupe de Lorraine, Basses-Terres du Saint-Laurent - Partie 1 : Compilation des données. Ministère des Ressources naturelles, SIGEOM, DV 2012-03.

Theriault, R., (2012b). Caractérisation du Shale d'Utica et du Groupe de Lorraine, Basses-Terres du Saint-Laurent - Partie 2 : Interprétation géologique. Ministère des Ressources naturelles, SIGEOM, DV 2012-04.

Tien-Dung, T. N., Konstantinovskaya, E., Lefebvre, R., Malo, M., (2012). Caractérisation hydrogéologique et pétrophysique des aquifères salins profonds de la région de Bécancour pour leur potentiel de séquestration géologique du CO<sub>2</sub>. Soumis au Ministère du Développement durable, de l'Environnement, de la Faune et des Parcs – Québec R-1318.

Tominaga, T., Matsumoto, S., (1990). Diffusion of polar and nonpolar molecules in water and ethanol, *Bulletin of the Chemical Society of Japan* 63, 533–537.

Van-Genuchten, M. (1980). A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 44:892–898.

Van Stempvoort, D., Maathuis, H., Jaworski, E., Mayer, B., Rich, K., (2005). Oxidation of fugitive methane in ground water linked to bacterial sulfate reduction. *Ground Water* 43(2): 187-199.

Vidic, R.D., Brantley, S.L., Wandenbossche, J.M., Yoxtheimer D., Abad, J.D., (2013). Impact of shale gas development on regional water quality, *Science* 17 May, vol. 340.

Wagner W., Kretzschmar H.J. (1997). *International Steam Tables Properties of Water and Steam Based on the Industrial Formulation IAPWS-IF97*.

Watson, T.L., Bachu, S. (2009). Evaluation of the potential for gas and CO<sub>2</sub> leakage along wellbores, SPE Drilling & Completion, vol. 24, no. 1, pp. 115-126.

Willard, R., (2012). Bob Willard (Senior Advisor in ERCB's operations division) said there have been five or six instances of interborehole communication due to fracking in Alberta at a talk entitled "Technical Briefing on the Alberta Fracking Regulations" given to the Alberta Environmental Network in Calgary.

Witherspoon, P.A., Bonoli, L., (1969). Correlation of diffusion coefficients for paraffin, aromatic, and cycloparaffin hydrocarbons in water, Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals 8 589–591.

Yang Y.L., Aplin A.C., (2010). A permeability-porosity relationship for mudstones. Mar. Petrol. Geol. 27:1692-1697.

Zirrahi, M., Azin, R., Hassanzadeh, H., Moshfeghian, M., (2012). Mutual solubility of CH<sub>4</sub>, CO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>S, and their mixtures in brine under subsurface disposal conditions. Fluid Phase Equilibria 324, 80–93.





## **ANNEXE A : MODÈLE MATHÉMATIQUE**

Cette annexe sert d'introduction à la modélisation mathématique des écoulements diphasiques bi-composants en milieux poreux. Dans un premier temps, nous expliquons brièvement la nature complexe des écoulements diphasiques en milieux poreux. Ensuite, nous présentons les équations mathématiques permettant d'étudier ces écoulements.

### ***Écoulement diphasique***

Les bases des écoulements diphasiques en milieu poreux sont développées dans cette section. Les notations utilisées ici seront les mêmes que celles utilisées pour les formulations diphasiques bi-composants. Les définitions et les explications plus approfondies sont présentées par [Bear \(1972\)](#), [Helmig \(1997\)](#) et [Bastien et Helmig \(1999\)](#).

### ***Définition d'une phase***

Une phase est définie comme une portion de composition chimique homogène où il n'y a pas de discontinuité dans les propriétés du matériau. ([Bastien, 1999](#)). La modélisation des écoulements entre deux phases nécessite la connaissance de certaines caractéristiques intrinsèques à chaque phase comme la viscosité dynamique  $\mu$  (Pa.s) et la masse volumique  $\rho$  (kg/m<sup>3</sup>). Dans le cadre de notre étude, nous travaillons essentiellement avec deux phases : une phase aqueuse riche en solides dissous (saumure) et une phase gazeuse composée de méthane.

### ***Notion de porosité***

La porosité est la fraction de vide contenu dans un matériau. Elle est définie comme le rapport du volume des vides  $V_p$  (volume des pores) sur le volume total  $V_t$  du matériau, et généralement est exprimée en pourcentage  $\varepsilon$  :

$$\varepsilon = \frac{V_p}{V_t} \times 100 \quad (\text{A.1})$$

Dans le cas des roches, les pores peuvent être connectés ou isolés.

### ***Notion de saturation***

Considérons un volume de milieu poreux occupé par plusieurs phases. La saturation  $S$  de la phase  $j$  peut être exprimée comme le ratio volumique de la phase  $j$  dans le volume des vides (volume des pores) :

$$S_j = \frac{V_j}{V_v} \quad (\text{A.2})$$

Ainsi que :

$$0 \leq S_j \leq 1 \text{ et } \sum S_j = 1 \quad (\text{A.3})$$

### *Saturation résiduelle*

Dans la mesure où la phase  $j$  ne peut pas être entièrement mobilisée dans le déplacement multiphasique au sein du milieu poreux (Helmig, 1997), une saturation résiduelle de la phase  $j$  notée  $S_{rj}$  est introduite. Elle exprime la saturation minimale de la phase  $j$  qui est retenue dans le milieu poreux due aux forces capillaires et à la tension interfaciale entre les phases. Néanmoins, la saturation résiduelle peut être réduite en diminuant la tension de surface (i.e. médication de  $S_{rj}$  par des substances chimiques comme des surfactants) ou par changement de phase (vaporisation). Seul les cas dont la saturation résiduelle reste constante seront considérés ici. Ainsi, nous pouvons écrire que :

$$S_{rj} \leq S_j \leq 1 - \sum_{\beta \neq j} S_{r\beta} \quad (\text{A.4})$$

### **Conservation de la masse**

Le principe de conservation de la masse stipule que la variation de la masse dans un volume de control  $V$  pendant un intervalle de temps  $dt$  est égale à la quantité de masse entrante moins la quantité de masse sortante. Ce principe se traduit mathématiquement par l'équation différentielle suivante (Bear, 1979) :

$$\frac{\partial(\varepsilon\rho)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho u) = \rho Q \quad (\text{A.5})$$

où  $u$  est la vitesse de Darcy (voir section suivante),  $\rho$  est la masse volumique du fluide et  $Q$  représente un terme source par unité de volume. Pour un écoulement diphasique de deux fluides immiscibles, l'équation de conservation de la masse s'écrit pour chacune des phases  $j$  comme :

$$\frac{\partial(\varepsilon\rho S_j)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_j u_j) = \rho Q_j \quad (\text{A.6})$$

Cette expression du théorème de continuité traduit le fait que la saturation réduit l'espace poral d'une quantité  $\varepsilon V_t$  à un volume  $\varepsilon S_j V_t$  occupé par la phase  $j$ .

### **Loi de Darcy généralisée**

L'écoulement monophasique en milieux poreux est généralement décrit par la loi de Darcy (1856). Pour un fluide visqueux et incompressible en régime permanent, dans un échantillon de milieu poreux, cette loi s'écrit :

$$u = -\frac{k}{\mu} \cdot (\nabla p - \rho g) \quad (\text{A.7})$$

où  $u$  est la vitesse de Darcy,  $\nabla p$  désigne le gradient de pression,  $\mu$  est la viscosité dynamique,  $k$  est la perméabilité intrinsèque du milieu et  $g$  représente l'accélération gravitaire.

La perméabilité intrinsèque a la dimension d'une longueur au carré ( $\text{m}^2$ ) et dépend essentiellement de la structure géométrique du milieu poreux. Elle peut être corrélée à la porosité,  $\varepsilon$  et au diamètre moyen des particules,  $d$ , par la relation de Kozeny-Carman (Kozeny, 1927 ; Carman, 1937) :

$$k = \frac{d^2 \varepsilon^2}{B(1-\varepsilon)^2} \quad (\text{A.8})$$

où  $B$  est une constante qui dépend de la forme de la section d'écoulement dans le milieu poreux. Pour des particules sphériques, par exemple, la valeur de  $B$  est de l'ordre de 150. La constante  $B$  doit généralement être déterminée expérimentalement.

Pour les écoulements diphasiques, comme dans les écoulements monophasiques, on peut montrer que la vitesse de la phase  $j$  à l'échelle macroscopique notée  $u_j$  peut s'exprimer sous la forme de la loi de Darcy généralisée (Bear, 1979) :

$$u_j = -\frac{kr_j k}{\mu_j} \cdot (\nabla p_j - \rho_j g) \quad (\text{A.9})$$

où  $kr_j$  est appelé la perméabilité relative de la phase  $j$  et dépend de la saturation de la phase mouillante (dans le cadre de ce travail, l'eau est la phase mouillante et le gaz (méthane) est la phase non-mouillante). La mouillabilité est la tendance relative d'un fluide à s'étendre ou adhérer à une surface en présence d'un autre fluide.

Le concept de perméabilité relative permet de décrire l'écoulement d'un fluide en présence d'un autre fluide. La perméabilité relative permet de tenir compte de l'interaction entre les deux fluides et le milieu poreux. Elle indique le fait que chaque fluide influence l'écoulement de l'autre à travers la réduction de la section de passage et donc la diminution de la perméabilité relative d'un fluide due à la présence de l'autre fluide.

Dans le cadre d'écoulements diphasiques, les expressions mathématiques de  $kr_w$  et  $kr_{nw}$  sont généralement obtenues à partir des modèles de pression capillaire décrits dans les prochains paragraphes (Helmig, 1997).

### *Pression capillaire*

Les écoulements monophasiques sont gouvernés par des forces issues des gradients de pression au sein de l'espace poral et d'une force extérieure, la gravité. L'évolution de

l'interface entre les différentes phases fluides génère une force capillaire. Cette force est construite à partir de la tension de surface  $\sigma$  (N/m) de chaque phase à leurs interfaces et qui est causée à la fois par un effet d'adhésion à la phase solide et par l'existence de forces cohésives à l'échelle moléculaire au sein de chaque phase. Dans ce cas, l'interface entre deux phases est maintenue par une discontinuité dans le champ de pression (ou un saut de pression) entre les deux phases. La grandeur permettant de définir cette discontinuité est appelée la pression capillaire et définie comme :

$$p_c = p_{nw} - p_w \quad (\text{A.10})$$

La pression capillaire est toujours positive car la pression de la phase non-mouillante  $p_{nw}$  (méthane dans le cadre de ce travail) est plus grande que celle de la phase mouillante  $p_w$  (eau dans le cadre de ce travail). Elle est également tributaire de la saturation des différentes phases. Du point de vue hydrogéologique, il existe deux modèles mathématiques non linéaires couramment utilisés qui permettent de construire une courbe de pression capillaire  $p_c$  en fonction de la saturation, soit les modèles de Brooks et Corey et celui de Van-Genuchten. Chacun d'eux est basé sur des observations expérimentales et tiennent compte des effets liés à la saturation de la phase mouillante  $S_w$ .

Brooks et Corey ont développé un modèle mathématique (Brooks et Corey, 1964) permettant de d'écrire  $p_c$  tel que :

$$p_c = p_d (S_e)^{-1/\lambda} \quad (\text{A.11})$$

$$S_e = \frac{S_w - S_{rw}}{1 - S_{rw} - S_{rnw}} \quad (\text{A.12})$$

où  $S_r$  est la saturation résiduelle et  $S_e$  est appelée la saturation effective. Le paramètre  $\lambda$  décrit la distribution des grains dans le milieu poreux. Des valeurs faibles de  $\lambda$  indiquent un matériel poreux composé d'un seul type de grain (uniforme), alors que des valeurs grandes de  $\lambda$  indiquent la grande non-uniformité du matériel poreux (Helmig, 1997). La pression d'entrée  $P_e$  (Pa) est considérée comme la valeur minimale de pression capillaire pour déplacer la phase mouillante (à la saturation effective maximale, pour le pore le plus grand).

Van-Genuchten, a également défini un modèle de pression capillaire (Van Genuchten, 1980) :

$$p_c = \frac{1}{\alpha} \left( S_e^{-1/m} - 1 \right)^{1/n} \quad (\text{A.13})$$

Les paramètres  $m$  et  $n$  sont reliés par la relation  $m = 1 - 1/n$  et caractérisent la structure du milieu poreux. Le dernier paramètre  $\alpha$  est donné en ( $\text{Pa}^{-1}$ ). A l'inverse du modèle de

Brooks-Corey, le modèle de Van-Genuchten ne permet pas de simuler l'effet de seuil car la pression capillaire est toujours égale à zéro pour la saturation effective maximale, i.e.;  $p_c(S_e = 1) = 0$ .

### *Expressions de la perméabilité relative*

En utilisant les relations de la pression capillaire énoncées plus haut, on peut obtenir deux expressions mathématiques de  $kr$  :

Modèle de perméabilité relative de Burdine-Brooks-Corey :

$$kr_w = S_e^{3+2/\lambda} \quad (\text{A.14})$$

$$kr_{nw} = (1 - S_e)^2 \left(1 - S_e^{1+2/\lambda}\right) \quad (\text{A.15})$$

Modèle capillaire de Mualem-Van Genuchten :

$$kr_w = S_e^{1/2} \left(1 - \left(1 - S_e^{1/m}\right)^m\right)^2 \quad (\text{A.16})$$

$$kr_{nw} = (1 - S_e)^{1/2} \left(1 - S_e^{1/m}\right)^{2m} \quad (\text{A.17})$$

### **Formulation des écoulements diphasiques**

Il existe différentes formulations de modèles diphasiques en fonction du choix des variables primaires retenues, i.e.; pression-pression, pression saturation, pression moyenne - saturation et pression globale - saturation (Celia et Binning, 1992; Helmig, 1997; Bastian, 1999). Nous présentons ici, la formulation en pression-saturation utilisée également dans le code DuMux.

La formulation en pression-saturation est obtenue simplement en insérant la loi de Darcy généralisée (Équation A.7) dans l'équation de conservation de la masse (Équation A.6) pour chacune des phases :

$$\varepsilon \frac{\partial(\rho_w S_w)}{\partial t} - \nabla \cdot \left( \frac{kr_w}{\mu_w} \rho_w k \cdot (\nabla p_w - \rho_w g) \right) = \rho_w Q_w \quad (\text{A.18})$$

$$\varepsilon \frac{\partial(\rho_{nw} S_{nw})}{\partial t} - \nabla \cdot \left( \frac{kr_{nw}}{\mu_{nw}} \rho_{nw} k \cdot (\nabla p_{nw} - \rho_{nw} g) \right) = \rho_{nw} Q_{nw} \quad (\text{A.19})$$

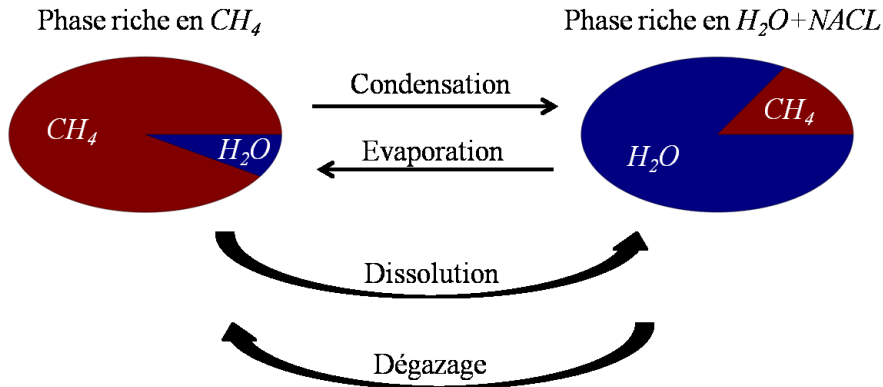
Chacune des équations A.18 et A.19 comporte trois termes : un terme d'accumulation qui représente la variation de la masse dans le temps, un terme d'écoulement relié au gradient de pression, la gravité qui représente le mouvement des phases selon leur

densité et un terme source qui représente la présence d'une source ou d'une perte de la masse par unité de volume (p. ex., présence d'un puits de pompage ou d'injection).

Les équations A.18 et A.19 sont couplées et non linéaires. Pour résoudre ce système d'équations, l'expression de la pression capillaire  $p_c = p_{nw} - p_w$  (Équation A.10) et  $\sum_{\alpha} S_{\alpha} = 1$  (Équation A.3) permettent de réduire les nombres d'inconnus à 2 ( $p_w$  et  $S_{nw}$  ou  $p_{nw}$  et  $S_w$ ).

### Écoulement diphasique bi-constituant

Dans un système multiphasique multi-constituant (ou multi-composant), chaque phase pourrait contenir un ou plusieurs composants chimiques (les phases sont partiellement miscibles). Le concept du système de fluides choisi pour ce travail est représenté sur la Figure A.1. Les principaux constituants considérés sont du méthane et de l'eau de formation. On distingue une phase riche en méthane (indice  $CH_4$  dans les équations ci-dessous) et une phase riche en solides dissous (saumure ; indice  $H_2O+NaCl$  dans les équations ci-dessous). Elles pourraient contenir chacune des composants du méthane (exposant  $CH_4$  dans les équations ci-dessous) et de l'eau (exposant  $H_2O$  dans les équations ci-dessous) qui sont transférés entre les phases, i.e. la phase riche en solide dissous est constituée de l'eau, des solides dissous et du méthane dissout tandis que la phase riche en méthane contient du méthane et une relativement petite quantité de la vapeur d'eau.



**Figure A.1.** Le concept du système de fluides : la phase riche en solides dissous (saumure) est constituée d'eau et de méthane dissout et la phase riche en méthane contient de méthane et une relativement petite quantité de vapeur d'eau.

Pour étudier un tel système de fluides, le transport de chacun des constituants est cette fois-ci décrit par une équation de bilan de masse :

$$\begin{aligned} \varepsilon \frac{\partial(\sum_{\alpha} \rho_{\alpha} X_{\alpha}^{\text{H}_2\text{O}} S_{\alpha})}{\partial t} - \sum_{\alpha} \nabla \cdot \left( \frac{kr_{\alpha}}{\mu_{\alpha}} \rho_{\alpha} X_{\alpha}^{\text{H}_2\text{O}} k \cdot (\nabla p_{\alpha} - \rho_{\alpha} g) \right) - \sum_{\alpha} \nabla \cdot (D_{\alpha,pm}^{\text{H}_2\text{O}} \rho_{\alpha} \nabla X_{\alpha}^{\text{H}_2\text{O}}) \\ = \sum_{\alpha} \rho_{\alpha} Q_{\alpha}^{\text{H}_2\text{O}} \end{aligned} \quad (\text{A.20})$$

$$\begin{aligned} \varepsilon \frac{\partial(\sum_{\alpha} \rho_{\alpha} X_{\alpha}^{\text{CH}_4} S_{\alpha})}{\partial t} - \sum_{\alpha} \nabla \cdot \left( \frac{kr_{\alpha}}{\mu_{\alpha}} \rho_{\alpha} X_{\alpha}^{\text{CH}_4} k \cdot (\nabla p_{\alpha} - \rho_{\alpha} g) \right) - \sum_{\alpha} \nabla \cdot (D_{\alpha,pm}^{\text{CH}_4} \rho_{\alpha} \nabla X_{\alpha}^{\text{CH}_4}) \\ = \sum_{\alpha} \rho_{\alpha} Q_{\alpha}^{\text{CH}_4} \end{aligned} \quad (\text{A.21})$$

$\alpha \in (\text{H}_2\text{O}+\text{NaCl} \text{ et } \text{CH}_4)$

où  $X_{\alpha}^C = \frac{M_{\alpha}^C}{\sum_C M_{\alpha}^C}$  est la fraction massique du constituant C dans la phase  $\alpha$  et  $D_{\alpha,pm}^C$  est le coefficient de diffusion du constituant C dans le milieu poreux, défini par (*Millington et Quirk, 1961*) :

$$D_{\alpha,pm}^C = \frac{(\varepsilon S_{\alpha})^{7/3}}{\varepsilon^2} \varepsilon S_{\alpha} D_{\alpha}^C \quad (\text{A.22})$$

où  $D_{\alpha}^C$  est le coefficient de diffusion binaire du constituant C dans la phase  $\alpha$  (voir l'Annexe B pour plus de détails).

En plus des trois termes des équations A.18 et A.19, les équations A.20 et A.21 comportent également un terme diffusif,  $D_{\alpha,pm}^C \rho_{\alpha} \nabla X_{\alpha}^C$ , qui représente la diffusion moléculaire de chaque constituant dans chaque phase.

Comme le cas d'écoulement diphasique (Équations A.18 et A.19), les équations A.20 et A.21 sont couplées et non linéaires. En utilisant l'expression de la pression capillaire (Équation A.10) et le fait que  $\sum_{\alpha} S_{\alpha} = 1$  (Équation A.3) et  $\sum_C X_{\alpha}^C = 1$ , le nombre d'inconnus dans ces équations peuvent être réduit à 2. Selon la présence des différentes phases, deux scénarios d'écoulement sont envisageables :

- une seule phase est présente. Dans ce cas, les saturations sont connues et le système d'équations est résolu pour la pression  $p$  et la fraction massique  $X$ .
- les deux phases sont présentes. Dans ce cas, les fractions massiques sont calculées par une routine auxiliaire et le système d'équations est résolu pour la pression  $p$  et la saturation  $S$ .



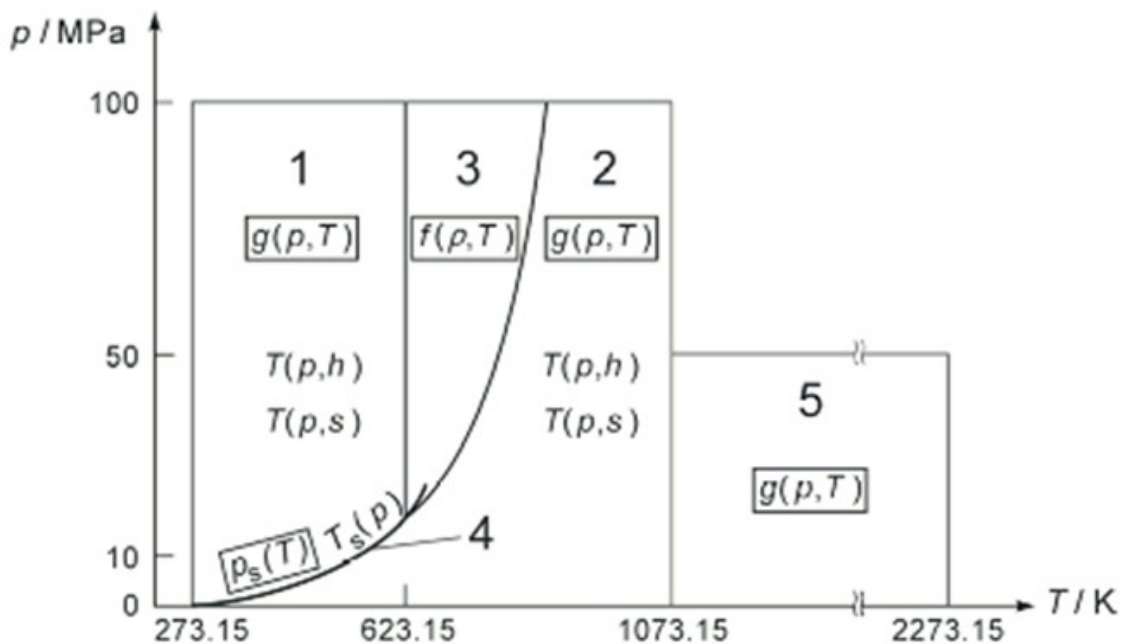


## ANNEXE B : PROPRIÉTÉS DES FLUIDES

Cette annexe présente le système de fluides développé dans le cadre de cette étude ainsi que son intégration dans le code DuMux.

### Eau et Saumure

En 1997, l'association internationale pour les propriétés de l'eau et de la vapeur (IAPWS) a adopté des nouvelles formulations pour les propriétés thermodynamiques de l'eau et de la vapeur pour l'usage industriel (*Wagner et Kretzschmar, 1997*). Dans la plupart des codes et des logiciels de simulation, y compris DuMux, les propriétés thermodynamiques de l'eau sont déterminées par ces formulations qui consistent en une série d'équations pour cinq régions qui couvrent les plages de validité de  $273.15 < T < 1073.15$  K,  $0 < p < 100$  MPa et de  $1073.15 < T < 2273.15$  K et  $0 < p < 50$  MPa. La Figure B.1 montre les cinq régions pour lesquelles le champ de validité des IAPWS est divisé :



**Figure B.1.** Cinq régions de la formulation industrielle IAPWS pour l'eau (*Wagner et Kretzschmar, 1997*).

Chaque région est représentée par un polynôme basé sur les équations fondamentales permettant de déterminer l'énergie spécifique libre de Helmholtz ou l'enthalpie libre spécifique de Gibbs  $g(p, T)$ . La masse volumique, l'enthalpie et l'énergie interne sont obtenues à partir de ces deux formules. Etant donné qu'aucun effet thermique n'ait été

pris en compte dans ce travail, nous avons uniquement besoin des valeurs de la masse volumique en fonction de la pression et de la température. De plus, dans la gamme des températures rencontrées dans les simulations numériques (280 - 350 K), l'eau se trouve toujours dans son état liquide. Par conséquent, uniquement la relation permettant de déterminer la masse volumique  $\rho$  (kg/m<sup>3</sup>) pour la région 1 est présentée par la suite.

Dans la région 1, l'équation de base est une équation fondamentale pour l'enthalpie libre spécifique de Gibbs  $g(p, T)$  exprimée en forme adimensionnelle est:

$$\frac{g(p, T)}{R_s T} = \gamma(\pi, \tau) = \sum_{i=1}^{34} n_i (7.1 - \pi)^{l_i} (\tau - 1.222)^{J_i} \quad (\text{B.1})$$

où  $\pi^* = p/p^*$  avec  $p^* = 16.53$  MPa,  $\tau^* = T^*/T$  avec  $T^* = 1386$  K,  $R_s = R/M = 0.461 \times 10^3$  J/(kgK) est la constante spécifique des gaz,  $R = 8.314472$  J/(Kmol) est la constante universelle des gaz et  $M = 18.015 \times 10^{-3}$  kg/mol est la masse molaire de la vapeur d'eau. Les coefficients  $n_i$  et les exposants  $l_i$  et  $J_i$  sont donnés dans le Tableau B.1. En utilisant cette relation, l'équation permettant de déterminer la masse volumique  $\rho$  de l'eau s'écrit comme :

$$\frac{1}{\rho_{\text{eau}}(\pi, \tau)} \frac{p \times 10^6}{R_s T} = \pi \gamma_{\pi} = \pi \left[ \frac{\partial \gamma}{\partial \pi} \right]_{\tau} = \sum_{i=1}^{34} -n_i l_i (7.1 - \pi)^{l_i - 1} (\tau - 1.222)^{J_i} \quad (\text{B.2})$$

L'autre propriété importante de l'eau est sa viscosité dynamique  $\mu$  (Pa.s). La relation proposée par l'IAPWS (IAPWS Formulation 2008 for the Viscosity of Ordinary Water Substance) est :

$$\mu_{\text{eau}}(\pi', \tau') = \left( \frac{100 \times \sqrt{\tau'}}{\sum_{i=1}^4 \frac{H_i}{\tau'^{i-1}}} + \exp \left( \delta' \sum_{i=1}^6 \left( \frac{1}{\tau'} - 1 \right)^{i-1} \sum_{j=1}^7 H_{ij} (\delta' - 1)^{j-1} \right) \right) \times 10^{-6} \quad (\text{B.3})$$

où  $\pi' = p/p_c$  avec la pression critique  $p_c = 22.064$  MPa,  $\tau' = T/T_c$  avec la température critique  $T_c = 647.096$  K et  $\delta' = \rho/\rho_c$  avec la masse volumique critique  $\rho_c = 322.0$  kg/m<sup>3</sup>. Les coefficients  $H_i$  et  $H_{ij}$  sont donnés dans le Tableau B.2.

Les courbes de la masse volumique et de la viscosité dynamique de l'eau pour la gamme des pressions et des températures considérées dans ce travail sont présentées sur les Figures B.2a et b. On observe que la viscosité de l'eau varie notablement avec la température mais elle est peu sensible aux différences de pression.

La masse volumique et la viscosité d'une saumure dépendent fortement de la salinité  $S$  (kg/kg, 1kg/kg = 1000 g/l). Il existe plusieurs algorithmes empiriques permettant de définir les propriétés de la saumure (e.g., [Philippe et al., 1981](#); [Kemp et al., 1989](#); [Batzle](#)

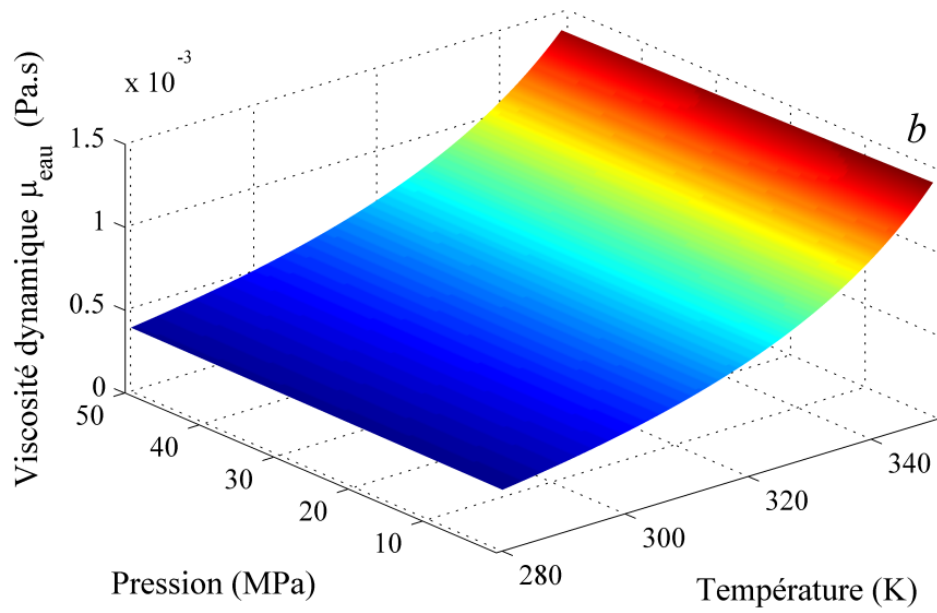
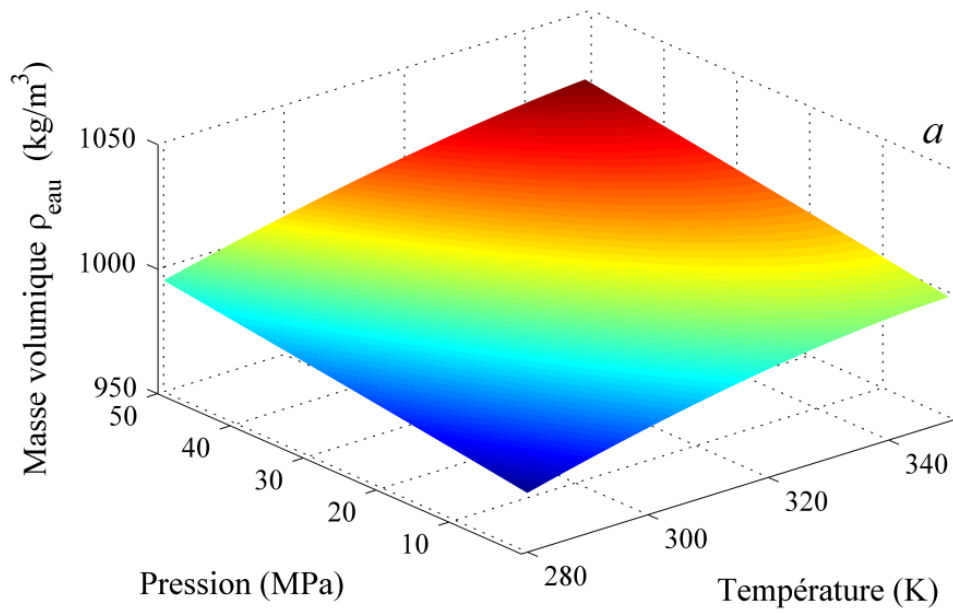
et Wang, 1992; Palliser et McKibbin, 1998). Adams et Bachu (2002) ont appliqué les relations proposées par ces auteurs aux propriétés de l'eau dans la bassin d'Alberta ( $10 \text{ g/l} < S < 350 \text{ g/l}$ ) et ont conclu que les relations proposées par Batzle et Wang, (1992) sont les plus adéquates afin d'être utilisées dans des modèles numériques :

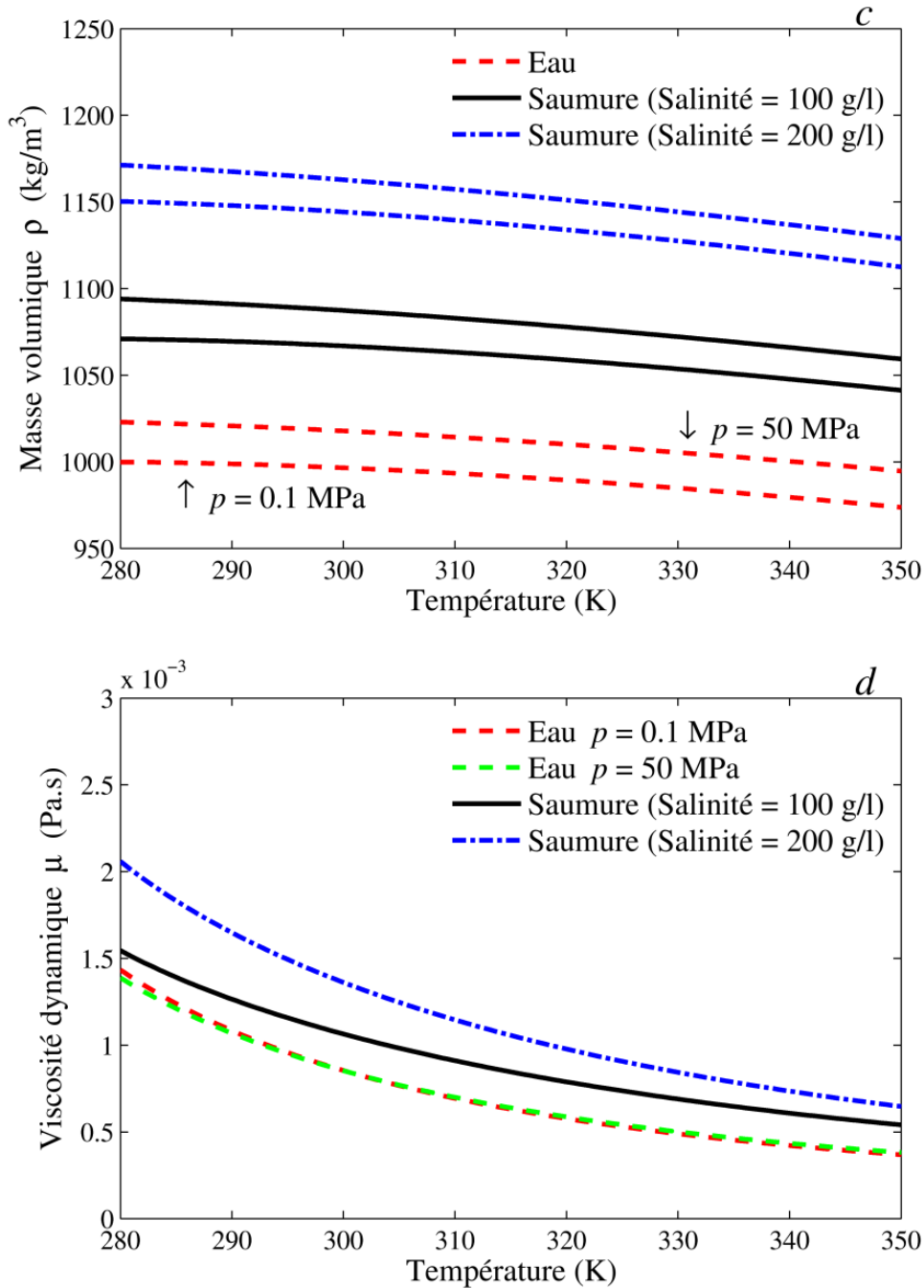
$$\begin{aligned} \rho_{\text{saumure}}(p, T) = & \rho_{\text{eau}}(p, T) \\ & + 1000 S (0.668 + 0.44 S \\ & + (300 p - 2400 p S \\ & + (T - 273.15)(80 - 3 (T - 273.15) - 3300 S - 13 p + 47 p S)) \times 10^{-6}) \end{aligned} \quad (\text{B.4})$$

$$\begin{aligned} \mu_{\text{saumure}}(T) = & 0.1 + 0.333 S \\ & + (1.65 + 91.9 S^3) \exp(-(0.42 (S^{0.8} - 0.17)^2 + 0.045)(T - 273.15)^{0.8}) \end{aligned} \quad (\text{B.5})$$

Les résultats obtenus par ces relations sont présentés sur les Figures B.2c et d. Ces résultats sont également comparés avec les valeurs obtenues pour l'eau fraîche. Comme nous pouvons le constater, la masse volumique de la saumure varie avec la pression et la température alors que sa viscosité ne dépend que de la température.

En ce qui concerne la salinité de la saumure dans les Basses-Terres du Saint-Laurent, des salinités de l'ordre de 3 à 8 fois celles de l'eau de mer (35 g/l) sont suggérées par Béland-Otis, (2009). Dans une étude récente, Tran-Ngoc et al., (2012) ont étudié les propriétés de la saumure dans les différentes unités (Trenton, Black River, Chazy, Beauharnois, Theresa, Cairnside et Covey Hill) de la région de Bécancour et ont obtenu des salinités de l'ordre de 3 à 7 fois ( $100 < S < 250 \text{ g/l}$ ) celles de l'eau de mer pour cette région. Aucune information n'est trouvée pour les shales Utica et Lorraine. Par conséquence, la valeur moyenne de la salinité ( $S = 150 \text{ g/l}$ ) obtenue par Tran-Ngoc et al. (2012) pour le Groupe de Trenton - la formation géologique la plus proche du shale d'Utica - est utilisée.





**Figure B.2.** Propriétés de l'eau et de la saumure. a) Masse volumique de l'eau en fonction de la pression et la température, b) Viscosité dynamique de l'eau en fonction de la pression et la température, c) Masse volumique de la saumure en fonction de la température pour deux pressions  $p$  et salinités  $S$  différentes, d) Viscosité dynamique de la saumure en fonction de la température pour deux salinités  $S$  différentes (Équation B.5 ne dépend que de la température).

**Tableau B.1.** Coefficients  $n_i$  et les exposants  $l_i$  et  $J_i$  des équations B.1 et B.2.

$i$	$n$	$l$	$J$	$i$	$n$	$l$	$J$	$i$	$n$	$l$	$J$	$i$	$n$	$l$	$J$
1	0.14632971213167	0	-2	10	$-0.60706301565874 \times 10^{-3}$	1	-7	19	$-0.72694996297594 \times 10^{-15}$	2	17	28	$-0.17424871230634 \times 10^{-9}$	8	-6
2	-0.84548187169114	0	-1	11	$-0.18990068218419 \times 10^{-1}$	1	-1	20	$-0.31679644845054 \times 10^{-4}$	3	-4	29	$-0.68762131295531 \times 10^{-18}$	21	-29
3	$-0.37563603672040 \times 10^1$	0	0	12	$-0.32529748770505 \times 10^{-1}$	1	0	21	$-0.28270797985312 \times 10^{-5}$	3	0	30	$0.14478307828521 \times 10^{-19}$	23	-31
4	$0.33855169168385 \times 10^1$	0	1	13	$-0.21841717175414 \times 10^{-1}$	1	1	22	$-0.85205128120103 \times 10^{-9}$	3	6	31	$0.26335781662795 \times 10^{-22}$	29	-38
5	-0.95791963387872	0	2	14	$-0.52838357969930 \times 10^{-4}$	1	3	23	$-0.22425281908000 \times 10^{-5}$	4	-5	32	$-0.11947622640071 \times 10^{-22}$	30	-39
6	0.15772038513228	0	3	15	$-0.47184321073267 \times 10^{-3}$	2	-3	24	$-0.65171222895601 \times 10^{-6}$	4	-2	33	$0.18228094581404 \times 10^{-23}$	31	-40
7	$-0.16616417199501 \times 10^{-1}$	0	4	16	$-0.30001780793026 \times 10^{-3}$	2	0	25	$-0.14341729937924 \times 10^{-12}$	4	10	34	$-0.93537087292458 \times 10^{-25}$	32	-41
8	$0.81214629983568 \times 10^{-3}$	0	5	17	$0.47661393906987 \times 10^{-4}$	2	1	26	$-0.40516996860117 \times 10^{-6}$	5	-8				
9	$0.28319080123804 \times 10^{-3}$	1	-9	18	$-0.44141845330846 \times 10^{-5}$	2	3	27	$-0.12734301741641 \times 10^{-8}$	8	-11				

**Tableau B.2.** Coefficients  $H_i$  et  $H_{ij}$  de l'équation B.3.

	$H_i$	$H_{ij}$						
		1	2	3	4	5	6	7
1	1.67752	$5.20094 \times 10^{-1}$	$2.22531 \times 10^{-1}$	$-2.81378 \times 10^{-1}$	$1.61913 \times 10^{-1}$	$-3.25372 \times 10^{-2}$	0	0
2	2.20462	$8.50895 \times 10^{-2}$	$9.99115 \times 10^{-1}$	$-9.06851 \times 10^{-1}$	$2.57399 \times 10^{-1}$	0	0	0
3	0.6366564	-1.08374	1.88797	$-7.72479 \times 10^{-1}$	0	0	0	0
4	-0.241605	$-2.89555 \times 10^{-1}$	1.26613	$-4.89837 \times 10^{-1}$	0	$6.98452 \times 10^{-2}$	0	$-4.35673 \times 10^{-3}$
5	-	0	0	$-2.57040 \times 10^{-1}$	0	0	$8.72102 \times 10^{-3}$	0
6	-	0	$1.20573 \times 10^{-1}$	0	0	0	0	$-5.93264 \times 10^{-4}$

## Méthane

Les propriétés thermodynamiques des gaz sont généralement déterminées par la loi des gaz parfaits. Cependant, cette loi n'est valable qu'à très haute température (où l'interaction moléculaire est négligeable) ou à très basse densité (où la taille moléculaire est négligeable). Afin de déterminer précisément les propriétés thermodynamiques (e.g., la masse volumique) du méthane CH<sub>4</sub>, nous avons utilisé une équation d'état ([Setzmann et Wagner, 1991](#)) basée sur l'énergie spécifique libre de Helmholtz  $f(\rho, T)$  :

$$\begin{aligned} \frac{f(\rho, T)}{R_s T} &= \varphi(\delta, \tau) \\ &= \ln(\delta) + a_1 + a_2 \tau + a_3 \ln(\tau) + \sum_{i=4}^8 a_i \ln(1 - \exp(-\theta_i^c \tau)) + \sum_{i=1}^{13} n_i \delta^{d_i} \tau^{t_i} \\ &+ \sum_{i=14}^{36} n_i \delta^{d_i} \tau^{t_i} \exp(-\delta^{c_i}) + \sum_{i=37}^{40} n_i \delta^{d_i} \tau^{t_i} \exp(-\alpha_i (\delta - \Delta_i)^2 - \beta_i (\tau - \gamma_i)^2) \end{aligned} \quad (\text{B.6})$$

où  $\delta' = \rho/\rho_c$  avec  $\rho_c = 162.66 \text{ kg/m}^3$ ,  $\tau' = T_c/T$  avec  $T_c = 190.564 \text{ K}$ ,  $R_s = R/M = 0.518 \times 10^3 \text{ J/(kgK)}$  est la constante spécifique des gaz et  $M = 16.043 \times 10^{-3} \text{ kg/mol}$  est la masse molaire du méthane. Les coefficients  $a_i$ ,  $\theta_i^c$ ,  $n_i$ ,  $\alpha_i$ ,  $\beta_i$ ,  $\Delta_i$ ,  $\gamma_i$  et les exposants  $d_i$  et  $t_i$  sont donnés dans le Tableau B.3. La masse volumique du méthane peut être dérivée à partir de cette équation fondamentale et s'écrit comme :

$$\begin{aligned} \frac{1}{\rho_{\text{CH}_4}(\delta, \tau)} \frac{p \times 10^6}{R_s T} &= \delta \varphi_\delta = \delta \left[ \frac{\partial \varphi}{\partial \delta} \right]_\tau \\ &= 1 \\ &+ \delta \left( \sum_{i=1}^{13} n_i d_i \delta^{d_i-1} \tau^{t_i} + \sum_{i=14}^{36} \left( n_i \delta^{d_i-1} \tau^{t_i} (d_i - c_i \delta^{c_i}) \right) \exp(-\delta^{c_i}) \right. \\ &\left. + \sum_{i=37}^{40} n_i \delta^{d_i} \tau^{t_i} \exp(-\alpha_i (\delta - \Delta_i)^2 - \beta_i (\tau - \gamma_i)^2) \left( \frac{d_i}{\delta} - 2\alpha_i (\delta - \Delta_i) \right) \right) \end{aligned} \quad (\text{B.7})$$

La relation B.7 permet de déterminer la masse volumique pour  $90.70 < T < 625 \text{ K}$  et  $0.01 < p < 1000 \text{ MPa}$  avec une erreur de 0.03% pour  $p < 100 \text{ MPa}$  et 0.15% pour  $p > 100 \text{ MPa}$ .

Comme pour l'eau, l'autre propriété importante du méthane est sa viscosité dynamique  $\mu$  (Pa.s). Plusieurs relations sont présentées dans la littérature (e.g., [Hanley, 1977](#); [Reichenberg, 1979](#); [Chung, 1988](#)). Afin de choisir la relation la plus précise, nous avons testé ces relations sur les résultats expérimentaux obtenus par [Gidding et al., \(1966\)](#) et



*Haynes, (1973)*. Les résultats obtenus montrent que la relation proposée par *Hanley, (1977)* conduit aux meilleurs résultats, avec une erreur relative moyenne de 4% :

$$\begin{aligned} \mu_{CH_4}(\rho, T) = & \left( a_1 T^{-1} + a_2 T^{-2/3} + a_3 T^{-1/3} + a_4 + a_5 T^{1/3} + a_6 T^{2/3} + a_7 T + a_8 T^{4/3} + a_9 T^{5/3} \right. \\ & + \frac{\rho}{10^3} \left( A + B \left( C - \ln \left( \frac{T}{D} \right) \right)^2 \right) \\ & + E \left( \exp \left( j_1 + \frac{j_4}{T} \right) \exp \left( \left( \frac{\rho}{10^3} \right)^{0.1} \left( j_2 + \frac{j_3}{T^{3/2}} \right) \right. \right. \\ & \left. \left. + \left( \frac{\rho}{10^3} \right)^{0.5} \frac{\rho - \rho_c}{\rho_c} \left( j_5 + \frac{j_6}{T} + \frac{j_6}{T^2} \right) \right) - 1 \right) \times 10^{-7} \end{aligned} \quad (B.8)$$

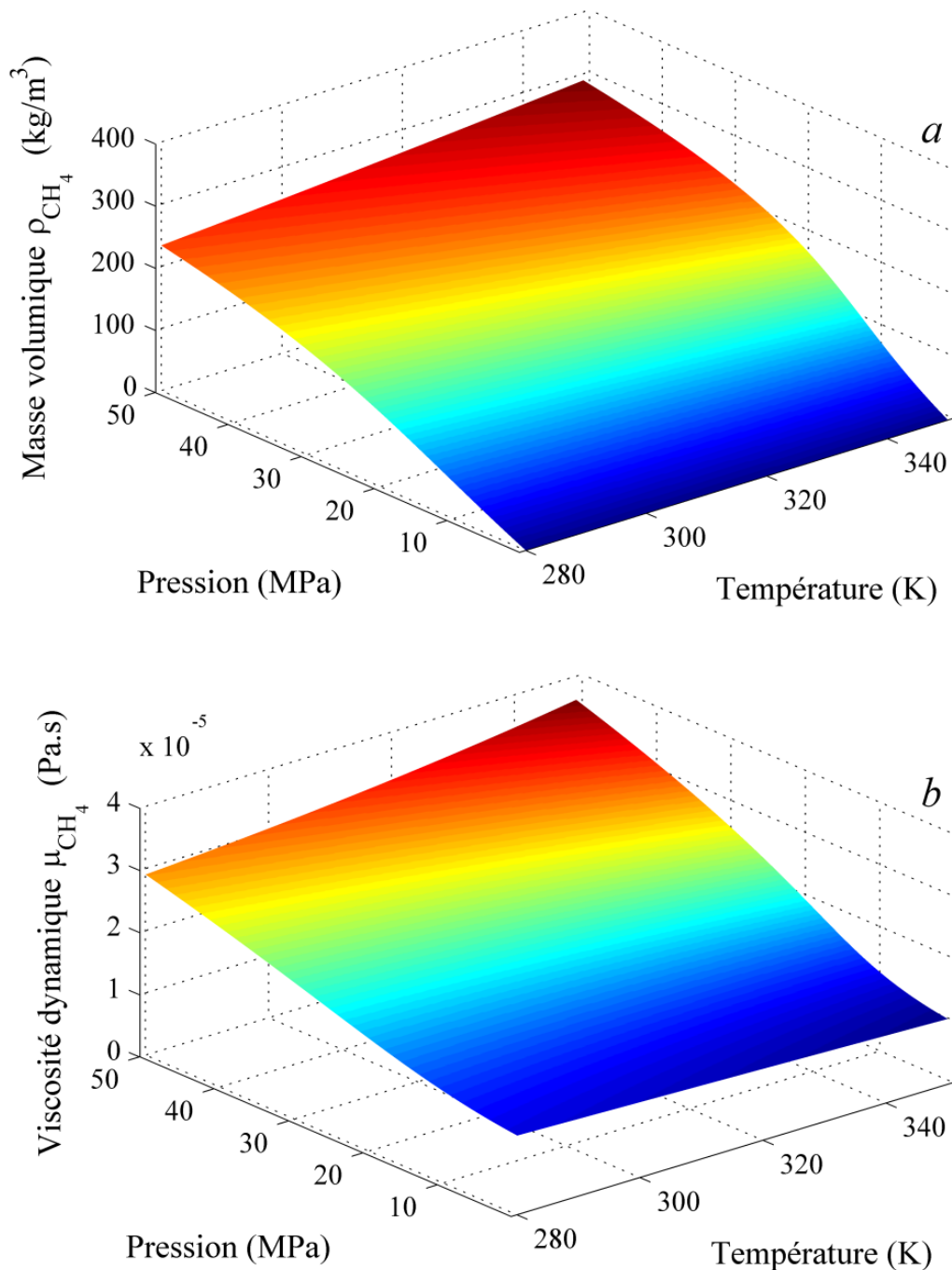
Les valeurs des coefficients  $a_i$ ,  $A$ ,  $B$ ,  $C$ ,  $D$ ,  $E$  et  $j_i$  sont présentées dans le Tableau B.4. Les résultats obtenus pour la masse volumique et la viscosité dynamique du méthane pour la gamme des pressions et températures considérées dans ce travail sont présentées sur les Figures B.3a et b. On observe que les propriétés du méthane varient notablement avec la température et la pression.

**Tableau B.3.** Les coefficients  $a_i$ ,  $\theta_i^c$ ,  $n_i$ ,  $\alpha_i$ ,  $\beta_i$ ,  $\Delta_i$ ,  $\gamma_i$  et les exposants  $d_i$  et  $t_i$  des équations B.6 et B.7.

$i$	$a$	$\theta_i^c$	$n$	$c$	$d$	$t$	$i$	$n$	$c$	$d$	$t$	$i$	$n$	$c$	$d$	$t$
1	9.9124397	-	$0.4367901028 \times 10^{-1}$	0	1	-0.5	13	$0.2947056156 \times 10^{-6}$	0	10	3.0	25	$-0.6150555662 \times 10^{-1}$	2	4	4.0
2	-6.332700	-	0.6709236199	0	1	0.5	14	0.1830487909	1	1	0	26	$-0.4291792423 \times 10^{-1}$	3	3	12.0
3	3.0016	-	$-0.1765577859 \times 10^1$	0	1	1.0	15	0.1511883679	1	1	1.0	27	$-0.1813207290 \times 10^{-1}$	3	5	8.0
4	0.008449	3.40043240	0.8582330241	0	2	0.5	16	-0.4289363877	1	1	2.0	28	$0.3445904760 \times 10^{-1}$	3	5	10.0
5	4.6942	10.26951575	$-0.1206513052 \times 10^1$	0	2	1.0	17	$0.6894002446 \times 10^{-1}$	1	2	0	29	$-0.2385919450 \times 10^{-2}$	3	8	10.0
6	3.4865	20.43932747	0.5120467220	0	2	1.5	18	$-0.1408313996 \times 10^{-1}$	1	4	0	30	$-0.1159094939 \times 10^{-1}$	4	2	10.0
7	1.6572	29.93744884	$-0.4000010791 \times 10^{-2}$	0	2	4.5	19	$-0.3063054830 \times 10^{-1}$	1	5	2.0	31	$0.6641693602 \times 10^{-1}$	4	3	14.0
8	1.4115	79.13351945	$-0.1247842423 \times 10^{-1}$	0	3	0	20	$-0.2969906708 \times 10^{-1}$	1	6	2.0	32	$-0.2371549590 \times 10^{-1}$	4	4	12.0
9	-	-	$0.3100269701 \times 10^{-1}$	0	4	1.0	21	$-0.1932040831 \times 10^{-1}$	2	1	5.0	33	$-0.3961624905 \times 10^{-1}$	4	4	18.0
10	-	-	$0.1754748522 \times 10^{-2}$	0	4	3.0	22	-0.1105739959	2	2	5.0	34	$-0.1387292044 \times 10^{-1}$	4	4	22.0
11	-	-	$-0.3171921605 \times 10^{-5}$	0	8	1.0	23	$0.9952548995 \times 10^{-1}$	2	3	5.0	35	$0.3389489599 \times 10^{-1}$	4	5	18.0
12	-	-	$-0.2240346840 \times 10^{-5}$	0	9	3.0	24	$0.8548437825 \times 10^{-2}$	2	4	2.0	36	$-0.2927378753 \times 10^{-2}$	4	6	14.0
$i$	$n$	$d$	$t$	$\alpha$	$\beta$	$\gamma$	$\Delta$									
37	$0.9324799946 \times 10^{-4}$	2	2.0	20	200	1.07	1									
38	$-0.6287171518 \times 10^1$	0	0.0	40	250	1.11	1									
39	$0.1271069467 \times 10^2$	0	1.0	40	250	1.11	1									
40	$-0.6423953466 \times 10^1$	0	2.0	40	250	1.11	1									

**Tableau B.4.** Les coefficients  $a_i$ ,  $A$ ,  $B$ ,  $C$ ,  $D$ ,  $E$  et  $j_i$  de l'équation B.8.

	1	2	3	4	5	6	7	8	9
$a_i$	$-2.090975 \times 10^5$	$2.647269 \times 10^5$	$-1.472818 \times 10^5$	$4.716740 \times 10^4$	$-9.491872 \times 10^3$	$1.219979 \times 10^3$	$-9.627993 \times 10^1$	4.274152	$-8.141531 \times 10^{-2}$
$j_i$	$-1.03506058 \times 10^1$	$1.7571599671 \times 10^1$	$-3.01939186 \times 10^3$	$1.8873011594 \times 10^2$	$4.2903609488 \times 10^{-2}$	$1.4529023444 \times 10^2$	$6.1276818706 \times 10^3$	-	-
$A$	$B$	$C$	$D$	$E$					
1.696985927	-0.133372346	1.4	168	1					



**Figure B.3.** Propriétés du méthane. a) Masse volumique du méthane en fonction de la pression et de la température, b) Viscosité dynamique du méthane en fonction de la pression et de la température.

## Mélange eau/méthane

Dans cette section, nous expliquerons brièvement le modèle développé pour calculer la composition des phases, soit la phase aqueuse formée de saumure (H<sub>2</sub>O + NaCl) et la phase gazeuse formée de méthane (CH<sub>4</sub>). Ce modèle repose principalement sur les travaux de *Spycher et al. (2003)*, *Spycher et Pruess (2005)* et *Zirrahi et al. (2012)*.

### Composition des phases

La solubilité du CH<sub>4</sub> dans l'eau pure salée, sur un large domaine de température et de pression, est étudiée par de nombreux auteurs (e.g., *Duffy et al., 1961*; *Duan et al., 1992*; *Duan et Mao, 2006*; *Zirrahi et al., 2012*) et plusieurs modèles sont présentés. L'hypothèse de base dans tous ces modèles est que le mélange eau/CH<sub>4</sub> est à l'équilibre thermodynamique. Dans un système diphasique, l'équilibre thermodynamique est atteint lorsque la fugacité  $f$  d'un constituant  $i$  est la même dans les deux phases:

$$f_i^g = f_i^{aq}. \quad (\text{B.9})$$

La fugacité traduit la tendance d'un constituant à fuir la phase dans laquelle il se trouve. La fugacité des constituants dans la phase gazeuse peut être obtenue par :

$$f_i^g = p\varphi_i y_i \quad (\text{B.10})$$

où  $p$  est la pression de la phase gazeuse en bar (1 bar = 10<sup>5</sup> Pa),  $\varphi_i$  est le coefficient de fugacité du constituant  $i$  dans la phase gazeuse et  $y_i$  est la fraction molaire du constituant  $i$  dans la phase gazeuse.

Grâce à la faible solubilité du CH<sub>4</sub> dans l'eau (très faible ionisation du méthane dans la phase aqueuse), la loi de Henry peut être adoptée pour définir la fugacité des constituants dans la phase aqueuse :

$$f_i^{aq} = x_i \gamma_i H_i \quad (\text{B.11})$$

Dans cette loi,  $x_i$  est la fraction molaire du constituant  $i$  dans la phase aqueuse,  $\gamma_i$  est le coefficient d'activité du constituant  $i$  dans l'eau salée ( $\gamma_i = 1$  pour l'eau pure) et  $H_i$  est le coefficient de Henry, définie par :

$$H_i(p, T) = H_i(1, T) \exp\left(\frac{v_i^\infty (p-1)}{RT}\right) \quad (\text{B.12})$$

où  $R = 83.14472$  bar cm<sup>3</sup>/(K mol) est la constante universelle des gaz et  $v_i^\infty$  cm<sup>3</sup>/mol est le volume partiel de constituant  $i$ . En utilisant les équations B9 - 12, la fraction molaire de constituant  $i$  dans la phase aqueuse peut être calculée par :

$$x_i = \frac{\varphi_i y_i p}{\gamma_i H_i(1, T)} \exp\left(-\frac{v_i^\infty (p-1)}{RT}\right) \quad (\text{B.13})$$

Considérant  $i = \text{CH}_4$ , l'équation précédente s'écrit comme :

$$x_{\text{CH}_4} = \frac{\varphi_{\text{CH}_4} y_{\text{CH}_4} p}{\gamma_{\text{CH}_4} H_{\text{CH}_4}(1, T)} \exp\left(-\frac{v_{\text{CH}_4}^\infty (p-1)}{RT}\right) = \frac{\varphi_{\text{CH}_4} (1 - y_{\text{H}_2\text{O}}) p}{\gamma_{\text{CH}_4} H_{\text{CH}_4}(1, T)} \exp\left(-\frac{v_{\text{CH}_4}^\infty (p-1)}{RT}\right) \quad (\text{B.14})$$

Les relations permettant de déterminer  $\varphi_{\text{CH}_4}$ ,  $H_{\text{CH}_4}$ ,  $\gamma_{\text{CH}_4}$  et  $v_{\text{CH}_4}^\infty$  sont présentées dans le Tableau B.5. La résolution complète de l'équation B.14 nécessite la détermination de l'une des fractions molaires  $y_{\text{CH}_4}$  ou  $y_{\text{H}_2\text{O}}$  ( $\sum_i y_i = 1$ ). Nous avons utilisé la relation proposée par [Spycher et al., \(2003\)](#) pour définir la fraction molaire de vapeur d'eau  $y_{\text{H}_2\text{O}}$  dans la phase gazeuse :

$$y_{\text{H}_2\text{O}} = \frac{K_{\text{H}_2\text{O}}^0 x_{\text{H}_2\text{O}}}{\varphi_{\text{H}_2\text{O}} p} \exp\left(\frac{v_{\text{H}_2\text{O}}^\infty (p-1)}{RT}\right) = \frac{K_{\text{H}_2\text{O}}^0 (1 - x_{\text{CH}_4} - x_{\text{NaCl}})}{\varphi_{\text{H}_2\text{O}} p} \exp\left(\frac{v_{\text{H}_2\text{O}}^\infty (p-1)}{RT}\right) \quad (\text{B.15})$$

où  $K_{\text{H}_2\text{O}}^0$  est la constante d'équilibre de l'eau à la pression atmosphérique,  $v_{\text{H}_2\text{O}}^\infty = 18.18 \text{ cm}^3/\text{mol}$  est le volume partiel de l'eau et  $x_{\text{NaCl}}$  est la fraction molaire du sel (NaCl) dans l'eau :

$$x_{\text{NaCl}} = \frac{M_{\text{H}_2\text{O}} S}{M_{\text{NaCl}} - (M_{\text{NaCl}} - M_{\text{H}_2\text{O}}) S} \quad (\text{B.16})$$

où  $S$  est la salinité ou la fraction massique (kg/kg) du sel dans l'eau et  $M = 58.8 \times 10^{-3} \text{ kg/mol}$  est la masse molaire de NaCl. Les relations permettant de déterminer les autres paramètres de l'équation B.15 ( $\varphi_{\text{H}_2\text{O}}$ , et  $K_{\text{H}_2\text{O}}^0$ ) sont également présentées dans le Tableau B.5.

Les équations B.14 et B.15 forment un système de deux équations et de deux inconnus et peuvent être résolues pour  $x_{\text{CH}_4}$  et  $y_{\text{H}_2\text{O}}$  de façon directe. Les résultats obtenus par ces équations pour le domaine des pressions et des températures considérées dans ce travail sont présentés à la Figure B.4. Afin de valider le modèle développé, nous avons également comparé les résultats de ce modèle avec les résultats expérimentaux de [Duan et Mao \(2006\)](#) et [Chapoy et al. \(2005\)](#). Ce modèle nous permet de calculer les fractions molaires avec une erreur relative moyenne de 4.5%. Comme nous pouvons le constater, plus la teneur en sel augmente, plus la solubilité du méthane diminue.

### **Masse volumique des phases**

La masse du méthane dissous dans la saumure peut réduire légèrement la masse volumique de la phase aqueuse. Trois relations permettant de décrire la masse volumique de la solution  $\text{CH}_4\text{-H}_2\text{O-NaCl}$  sont présentées dans la littérature ([Rogers et Pitzer, 1982](#); [Duan et al., 1992](#); [Spivey et al., 2004](#)). [Duan et Mao \(2006\)](#) ont comparé

la performance de ces relations et ont obtenu des résultats très proches par ces trois modèles (un écart maximum de 1% entre les modèles). Dans le cadre de ce travail, nous avons utilisé la relation de *Duan et al. (1992)* :

$$\rho_{aq} = \frac{10^3(1+m_{NAACL}M_{NAACL}+m_{CH_4}M_{CH_4})}{\frac{10^6(1+m_{NAACL}M_{NAACL})}{\rho_{H_2O-NAACL}}+m_{CH_4}v_{CH_4}^\infty} \quad (B.17)$$

Pour la phase gazeuse, la masse volumique est calculée à partir de la relation présentée par *Poling et al., (2001)* :

$$\rho_g = \rho_{CH_4}(T, p \times y_{CH_4}) + \rho_{H_2O}(T, p \times y_{H_2O}) \quad (B.18)$$

où  $\rho_{H_2O}$  est à la masse volumique de la vapeur d'eau et est calculée par les relations de *IAPWS (Wagner et Kretzschmar, 1997)* pour la région II. L'influence de la composition des phases sur la masse volumique est présentée sur la Figure B.5a et b. Comme nous pouvons le constater, le constituant dissous dans chaque phase a une très faible influence sur la masse volumique de la phase concernée. Suite à ces résultats, on peut conclure que la masse volumique de la phase aqueuse est contrôlée par l'eau et la salinité alors que la masse volumique de la phase gazeuse est uniquement contrôlée par le méthane.

### **Diffusion binaire des constituants**

Tel qu'indiqué dans l'Annexe A, la résolution des équations du transport A.20 et A.21 nécessite la détermination des coefficients de diffusion binaire  $D_{aq}^{CH_4}$  et  $D_g^{H_2O}$ .

La diffusion du méthane dans l'eau est étudiée par plusieurs auteurs (e.g., *Witherspoon et Bonoli, 1969; Maharajh, 1975; Tominaga et Matsumoto, 1990; Mutoru et Leahy-Dios, 2011*). *Magalhaes et al., (2013)* ont interprété les résultats de ces travaux par plusieurs modèles théoriques et empiriques du coefficient de diffusion et ont recommandé l'utilisation de la relation empirique suivante :

$$D_{aq}^{CH_4} = \exp\left(0.90843 \ln\left(\frac{T}{\mu_{H_2O} \times 10^3}\right) - 16.22160\right) \times 10^{-4} \quad (B.19)$$

Comme nous le constatons, le coefficient de diffusion du méthane dépend de la température et de la viscosité du solvant c.-à-d. l'eau. Les résultats précédents ont démontré une très faible dépendance de la viscosité d'eau à la pression. Donc, nous pouvons conclure que le coefficient de diffusion du méthane ne dépend que de la température. Les résultats présentés sur la Figure B.5.c confirme cette hypothèse.

Pour la diffusion de la vapeur d'eau dans la phase gazeuse, la méthode de *Fuller et al. (1966)* est généralement utilisée :

$$D_g^{H_2O} = \frac{0.00143 T^{1.75}}{PM_{H_2O-CH_4}^{0.5} (\Sigma_{H_2O}^{1/3} + \Sigma_{CH_4}^{1/3})^2} \times 10^{-4} \quad (B.20)$$

$$M_{H_2O-CH_4} = 2 \left( 10^{-3} \left( \frac{1}{M_{H_2O}} + \frac{1}{M_{CH_4}} \right) \right)^{-1} \quad (B.21)$$

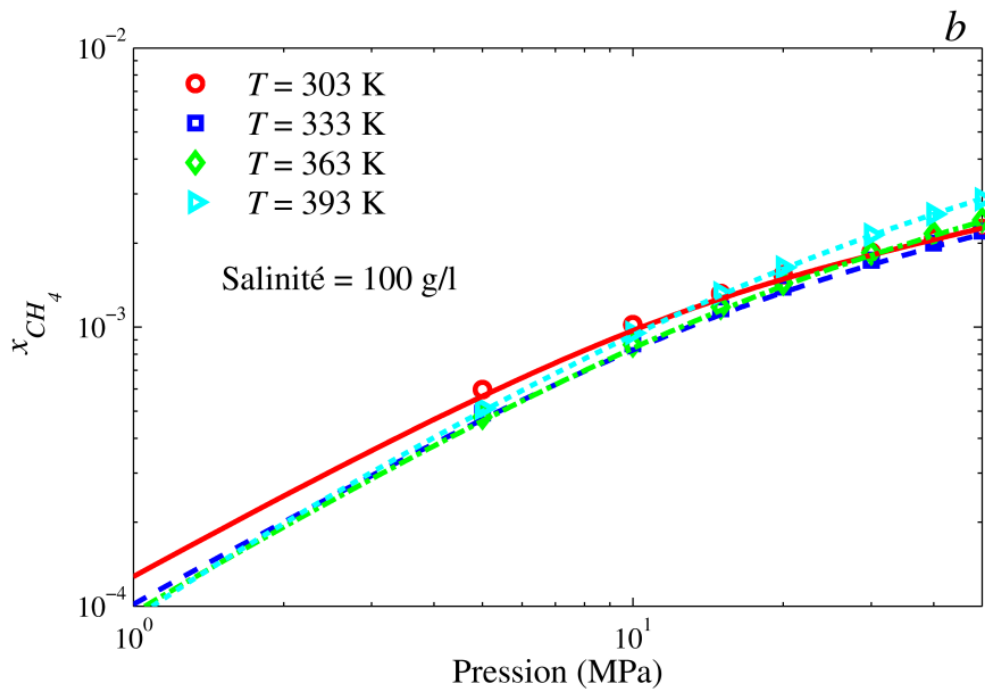
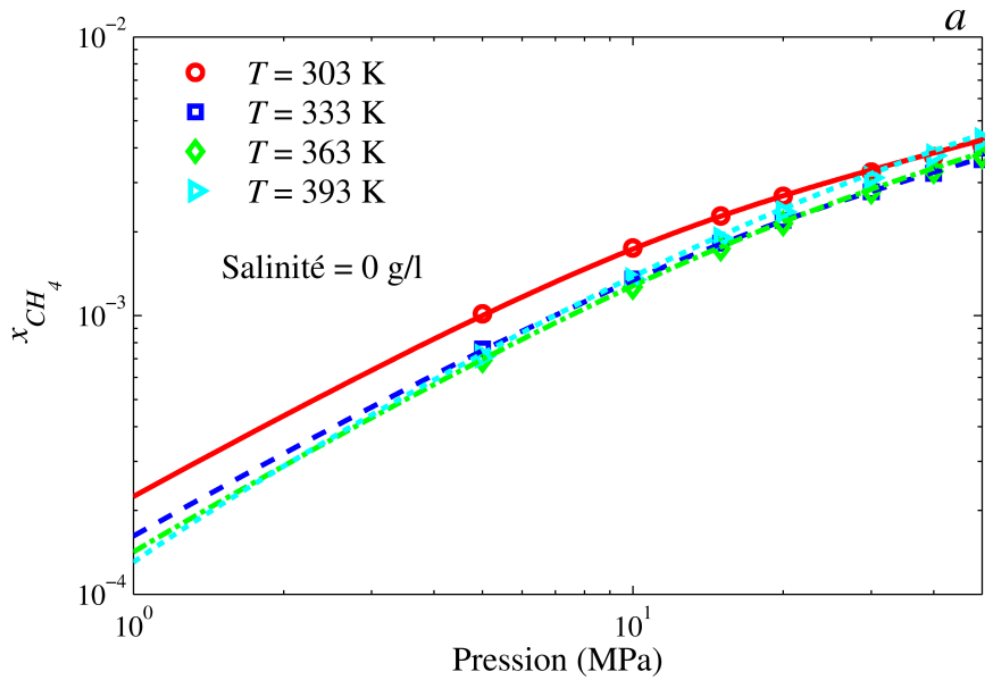
où  $\Sigma_{H_2O}^{1/3} = 10.73$  et  $\Sigma_{CH_4}^{1/3} = 25.15$  sont la somme des diffusions volumiques des atomes (Atomic Diffusion Volumes) de chaque constituant.

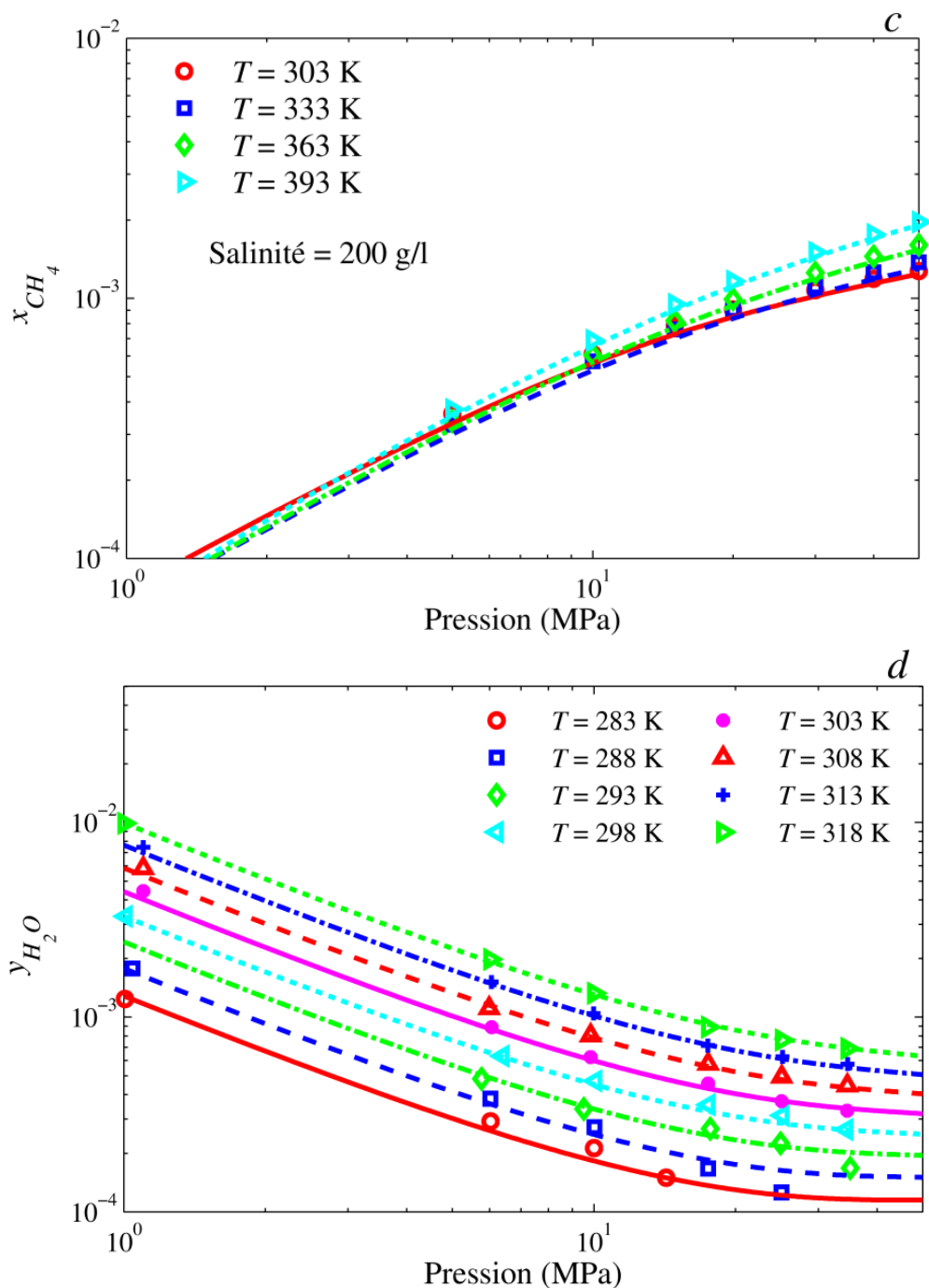
D'après *Poling et al., (2001)*, la méthode de Fuller n'est valable que pour les pressions modérées. Cependant, ils n'ont pas défini la plage de la validité de cette méthode. Aucune information n'est donnée à ce sujet dans les autres références. Nous sommes actuellement à la recherche d'autres méthode ou relations permettant de déterminer précisément le coefficient de diffusion des gaz à forte pression. En l'absence de ces données, nous avons utilisé cette méthode pour déterminer le coefficient de diffusion de la vapeur d'eau dans la phase gazeuse. Les résultats obtenus par cette méthode sont présentés sur la Figure B.5d. Les résultats montrent une forte variation du coefficient de la diffusion avec la pression.



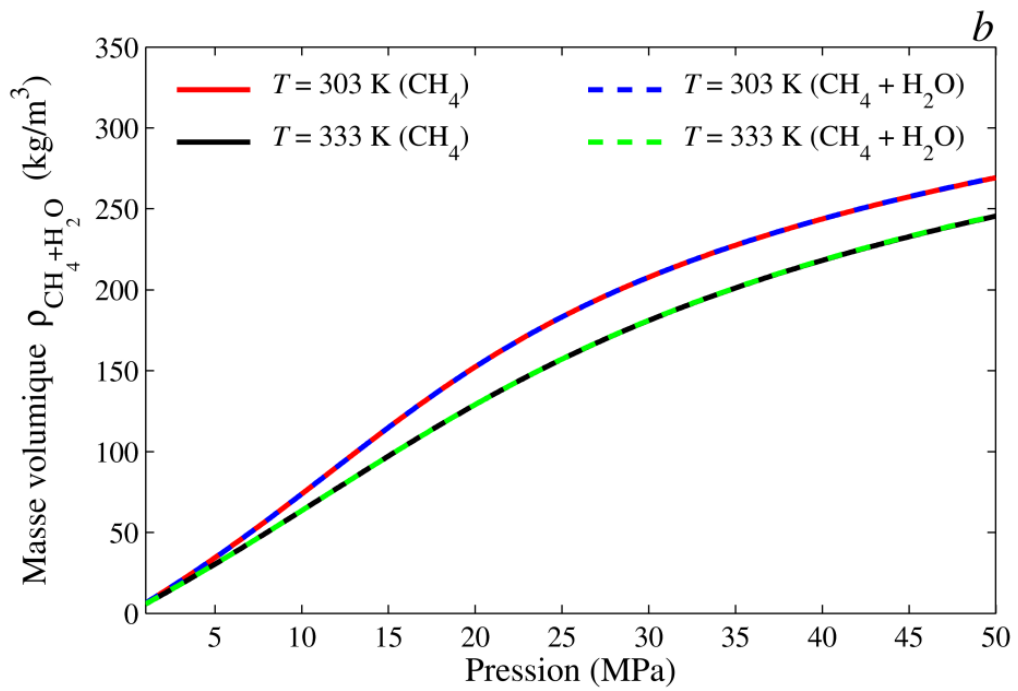
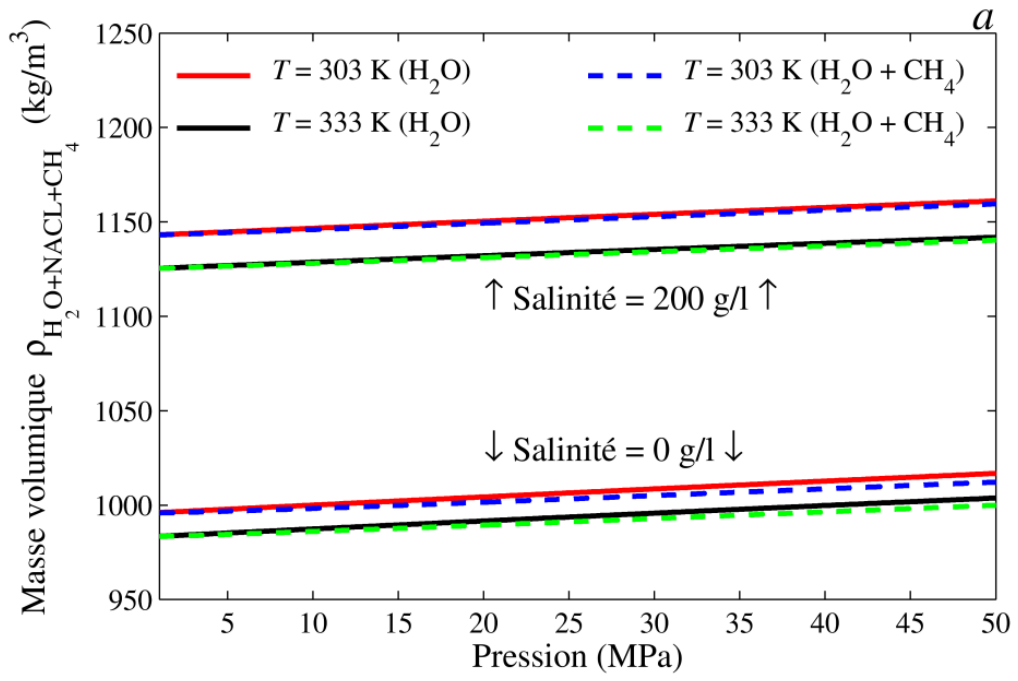


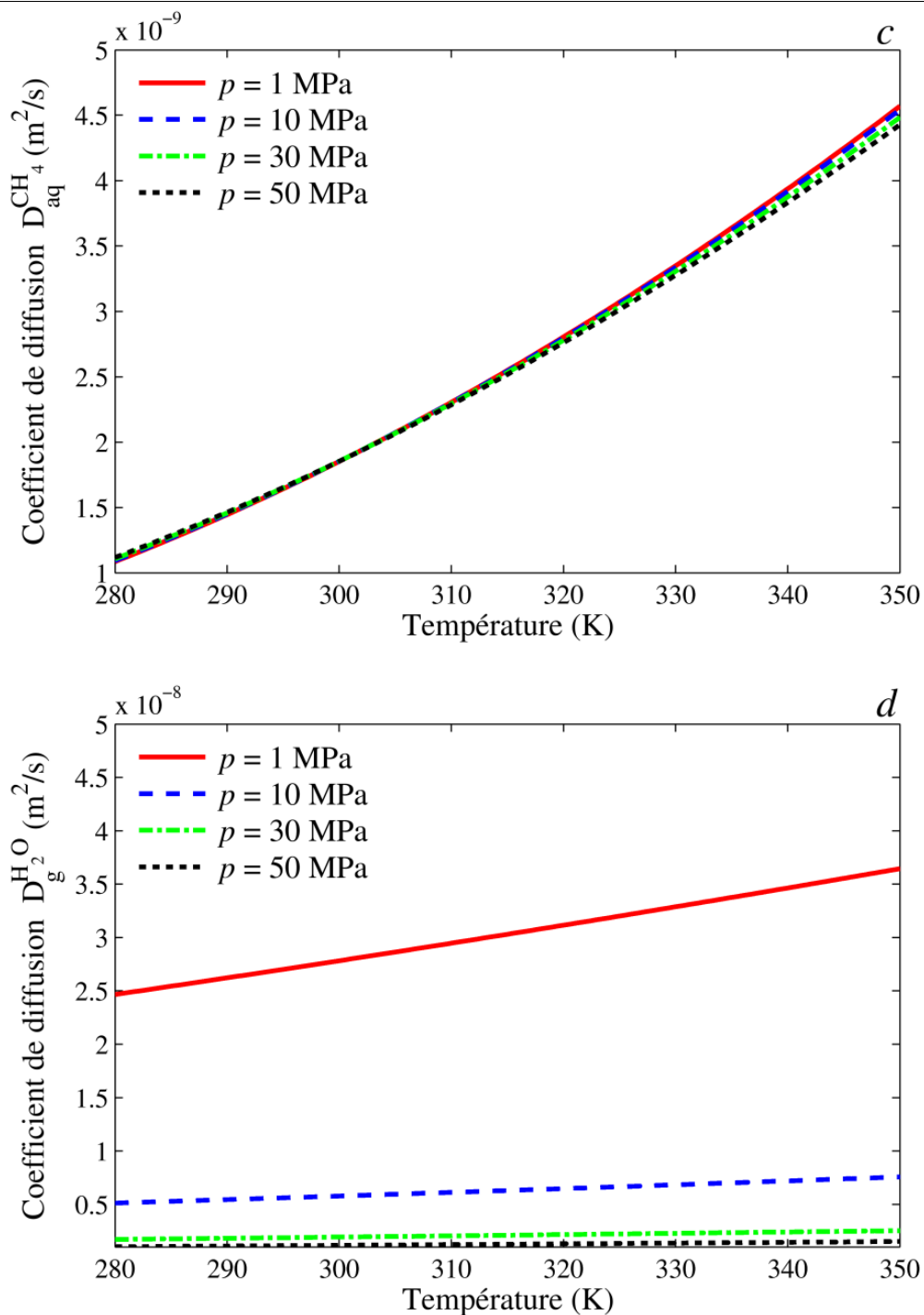
$2.01682801 \times 10^{-5}$	$-1.65606189 \times 10^{-5}$	$1.19614546 \times 10^{-4}$	$-1.08087289 \times 10^{-4}$	$4.48262295 \times 10^{-2}$	$7.53970000 \times 10^{-1}$	$7.71670000 \times 10^{-2}$
<b>Coefficient de Henry <math>H_{CH_4}(1, T)</math> (Rettich et al., 1981)</b>						
$\ln(H_{CH_4}(1, T)) = d_1 + \frac{d_2}{0.01T} + d_3 \ln(0.01T) + 0.01d_4T$						
$d_1$	$d_2$	$d_3$	$d_4$			
127.173804	-155.575631	-65.2552591	6.16975729			
<b>Volume partiel <math>v_{CH_4}^\infty</math> (Rettich et al., 1981)</b>						
$\ln(v_{CH_4}^\infty) = e_1 + e_2T$						
$e_1$	$e_2$					
3.541	$1.23 \times 10^{-3}$					
<b>Coefficient d'activité <math>\gamma_{CH_4}</math> (Pitzer et al., 1984)</b>						
$\ln(\gamma_{CH_4}) = 2 \left( f_1 + f_2T + \frac{f_3}{T} + f_4p + f_5p^2T \right) m_{NaCl} + f_6m_{NaCl}^2$						
$m_{NaCl} = \frac{x_{NaCl}}{M_{H_2O}(1 - x_{NaCl})}$						
$f_1$	$f_2$	$f_3$	$f_4$	$f_5$	$f_6$	
$-0.81222036 \times 10^0$	$0.10635172 \times 10^{-2}$	$0.18894036 \times 10^3$	$0.44105635 \times 10^{-4}$	$-0.46797718 \times 10^{-10}$	$-0.29903571 \times 10^{-2}$	





**Figure B.4.** La composition des phases (eau et méthane) en fonction de la pression, température et la salinité. a) Dissolution du méthane dans l'eau pure, b) Dissolution du méthane dans la saumure avec une salinité de 100 g/l, c) Dissolution du méthane dans la saumure avec une salinité de 200 g/l, d) Dissolution de la vapeur d'eau dans la phase gazeuse. Les points et les lignes représentent les résultats expérimentaux et les résultats du modèle, respectivement.





**Figure B.5.** a et b) L'influence de la composition des phases sur la masse volumique. c et d) Le coefficient de diffusion en fonction de la température et la pression.