



Tous les numéros Sur - - - -

Problèmes d'actualité

Q Chercher

≡ Menu

.

Accueil > Tous les numéros > Volume 191 (2020) > BSGF - Earth Sci. Bull., 191 (2020) 13 > HTML complet

Manuscrits acceptés

Accès libre	
Problème	BSGF - Earth Sci. Taureau. Volume 191, 2020
Numéro de l'article	13
Nombre de pages)	13
EST CE QUE JE	https://doi.org/10.1051/bsgf/2020010
Publié en ligne	05 juin 2020

BSGF - Bulletin des sciences de la Terre 2020, 191, 13

L' espace et la distribution du temps de subsurface H $_2$

concentration en dits « cercles de fées »: Aperçu d'un modèle de transport 2-D conceptuel

Variabilité dans le temps et l'espace dans le sol des structures émettrices dits «ronds de sorcières»: apport d'un modèle conceptuel de transport 2D

Andrey Myagkiy , Isabelle Moretti et Fabrice Brunet

¹ Univ. Grenoble Alpes, Univ. Savoie Mont Blanc, CNRS, IRD, IFSTTAR, ISTerre, Grenoble, France

² Engie SA, Courbevoie, France

Storengy, Bois-Colombes, France

E2S UPPA, Pau, France

Auteur correspondant: isabelle.moretti@univ-pau.fr

Reçu: 7 décembre 2019 Accepté: 15 avril 2020

Abstrait

Les émissions naturelles de H $_{2}$ du sol ont maintenant été mesurées dans de nombreux endroits dans le

monde. Ces émissions peuvent être localisées sur des failles ou être plus diffuses dans certains bassins sédimentaires, généralement d'âge protérozoïque. Dans un tel cas, les zones d'émanations sont souvent visibles sur les images aériennes ou sur les cartes topographiques à haute résolution puisqu'elles correspondent à de légères dépressions de forme circulaire à elliptique. De plus, les dépressions arrondies sont couvertes d'une végétation broussailleuse qui contraste souvent avec la végétation environnante. Bien que la structure d'émission présente une forme très régulière, la distribution de H ₂la concentration dans le premier mètre de sol dans une telle structure montre une tendance claire. Par exemple, la concentration maximale n'est presque jamais mesurée au centre de la structure et les quelques données résolues dans le

temps montrent que la concentration de H $_2$ _{dans} le sol est variable avec le temps. Ici, l'évolution dans le temps et l'espace de la concentration de H $_2$ est simulée à l'aide d'un modèle 2-D advectif-diffusif du transport de H $_2$ dans des milieux poreux. Plusieurs paramètres ont été testés comme la profondeur et la périodicité de la source ponctuelle de H $_2$ (pulsée), la consommation bactérienne de H $_2$ et les hétérogénéités de perméabilité du sol. Le rayon de la structure est lié au temps passé par le H $_2$ dans le sol qui dépend de la

perméabilité du sol, de la profondeur du point de fuite de gaz et de la pression de la bulle. Pour rendre compte des observations de terrain, le cas d'une hétérogénéité schisteuse, moins perméable, au centre des

Table des matières
Article
Abstrait (HTML complet)
PDF (2,814 Mo) (ePUB (2,469 Mo))
Les références

Métrique

Afficher les statistiques de l'article

Prestations de service

Mêmes auteurs

- Google Scholar

- Base de données EDP Sciences
- PubMed

Recommander cet article

Envoyer sur mon Kindle Télécharger la citation

Articles Liés

L'hydrogène naturel, le carburant du 21e siècle E3S Web of Conferences 98, 03006 (2019)

Vaux-en-Bugey (Ain, France): le premier gisement de gaz produit en France, offrant des enseignements pour l'hydrogène naturel en sous-sol? BSGF - Bulletin Sciences de la Terre 2020, 191. 7

Prédire le comportement de phase de l'hydrogène dans les saumures NaCl par simulation moléculaire pour des applications géologiques BSGF - Earth Sciences Bulletin 2019, 190, 7

Plus Bookmarking f ♥ in ♂ M Services aux lecteurs Alerte email

Haut

structures a été modélisé. Il en résulte une augmentation de la concentration vers le bord de la structure et un signal proche de zéro en son centre. Si le signal profond est périodique avec une fréquence inférieure à quelques heures, la concentration de H $_2$ dans le sol est presque constante; dans d'autres cas, l'onde de

concentration proche de la surface reflète la périodicité de concentration de la source avec un retard (de l'ordre de 12 h pour 30 m de sol) et donc les valeurs de concentration de H $_2$ près de la surface dépendront fortement du moment auquel la mesure est effectuée. H $_2$ surveillance à travers un réseau de capteurs est

donc obligatoire pour caractériser la dynamique H $_2$ dans le sol des cercles de fées.

Reprendre

Des émissions de H ₂ du sol ont maintenant été notées à de nombreux endroits, elles peuvent être localisées

sur des failles ou plus diffuses dans certains bassins sédimentaires, généralement Protérozoïques. Dans ce dernier cas, les émanations sont souvent visibles à partir d'images satellites ou de cartes topographiques à haute résolution puisqu'elles correspondent à de légères dépressions; la végétation est affectée, souvent détruite et la forme de la structure est circulaire ou elliptique. Les mesures de la concentration de H₂ dans le

sol, lorsque le dihydrogène s'échappe des bassins sédimentaires, les aléatoires. Le maximum n'est presque jamais localisé au centre de la structure, les quelques données continuent en temps que la concentration en H_2 du sol y est variable. Sur la base d'une modélisation du transport de H_2 dans le sol, nous proposons une

explication à ces données, les caractéristiques de cette concentration qui pourrait paraître aléatoire sont principalement dues à l'émission non constante de H $_2$, la consommation de H $_2$ dans le sol et aux

hétérogénéités du sol. La taille de la structure émettrice est liée au temps passé par l'hydrogène dans le sol, qui est influencé à la fois par la perméabilité du sol, par la profondeur de la fuite initiale de gaz et par la pression de la bulle. L'hétérogénéité des perméabilités des sols y entraîne une distribution non homogène de la concentration d'H $_{2}$. Les parties particulièrement moins perméables situées au centre des structures

entraînent une augmentation de la concentration vers les limites de la structure et un signal proche de zéro au centre, comme l'utilisation sur le terrain. Si le signal source est régulier avec une fréquence horaire inférieure à quelques heures, un signal quasi constant peut être atteint. Dans les autres cas, le signal proche de la surface évolue le signal source en profondeur avec un retard (environ 12 h pour 30 m de sol) et les valeurs proches de la surface dépendent donc beaucoup de l'heure des mesures. Une surveillance permanente, de même que la connaissance de la perméabilité du sol, sont indispensables pour interpréter les données proches de la surface en termes de débit.

Mots clés: émission naturelle de H $_2$ / H $_2$ / micro-suintements du sol / perméabilité hétérogène du sol Mots clés: hydrogène natif / concentration d'H $_2$ dans les sols / émanations d'H $_2$ / hétérogénéité des sols

© A. Myagkiy et al. , Edité par EDP Sciences 2020

0 _ 33

Il s'agit d'un article en libre accès distribué sous les termes de la licence d'attribution Creative Commons (https://creativecommons.org/licenses/by/4.0), qui permet une utilisation, une distribution et une reproduction sans restriction sur tout support, à condition que l'œuvre originale soit correctement cité.

1. Introduction

1.1 Transfert de H 2 dans le sous-sol

Subsurface H $_2$ concentrations de gaz présent au dessus du niveau atmosphérique et H subséquente $_{deux}$ flux vers la surface ont été rapportés dans un nombre croissant de publications. Des concentrations de gaz H $_2$ à environ 1 m sous la surface ont été mesurées en Russie et aux États-Unis, entre autres (Larin *et coll.*, 2014; Zgonnik *et coll.*, 2015) et même suivis au Brésil (Prinzhofer *et coll.*, 2019) sur une base résolue dans le temps. La source de cet hydrogène est encore discutée depuis différents H $_2$ réactions formant du processus et sont susceptibles de produire H $_2$ dans le sous - sol (Guélard *et coll.*, 2017). L'oxydation hydrothermale par l'eau de mer de roches ultramafiques exhumés le long des dorsales océaniques est l' un des plus connus processus d'oxydo - réduction qui produit H $_2$ dans des conditions abiotiques (*par exemple*, Brunet, 2019 et références). Des flux de H $_2$ liés à ce phénomène, appelé serpentinisation, ont été observés le long de la dorsale médio-atlantiqueCharlou *et coll.* (2002, 2010) ou celle du Pacifique (Welhan et Craig, 1979) où elle a lieu à des températures élevées dans des conditions hydrothermales. Des émissions de H $_2$ sont également

Abstrait

1. Introduction 2 Transport de H _{2 à} travers un sol

- 3. Résultats et discussion
- 4. Conclusions
- Reconnaissance

Annexe A Les références

Liste des tableaux

Liste des figures

observées dans la zone de convergence où la lithosphère océanique affleure à terre comme à Oman, aux Philippines ou en Nouvelle-Calédonie (Neal et Stanger, 1983 ;Abrajano *et coll.*, 1988 ;Sano *et coll.*, 1993 ;Monnin *et coll.*, 2014 ;Deville et Prinzhofer, 2016 ;Vacquand *et coll.*, 2018). Le même type de processus basé sur l'interaction entre les roches ultramafiques et l'eau peut se produire à une température plus basse et le fluide pourrait être de l'eau météorique (*par exemple*,Mayhew *et coll.*, 2013 ;Miller *et coll.*, 2017).

Des réactions similaires d'oxydation / hydratation peut également avoir lieu dans les milieux continentaux si, par exemple, Fe^{de}roches riches sont présents, comme il a été suggéré comme source pour le H continental ² accumulations au Mali (Prinzhofer *et coll.*, 2018). Radiolytique H₂ production dans la croûte continentale précambrienne, qui représente 72% des continents, est une autre possibilité (Sherwood *et coll.*, 2014) avec une contribution qui, pour ces derniers auteurs, pourrait être comparable à celle des domaines océaniques, autour de 10¹¹ moles par an. De plus, H₂ peut provenir du dégazage du manteau (Larin *et coll.*, 2010) puisque H₂ est le composant initial et majeur du système solaire. Mechanoradical H₂ génération le long de plans de défauts quand ils se glissent, ou actifs, ont également été observées (Klein *et coll.*, 2020); d'après ces auteurs, il peut se produire partout où il y a broyage de roches silicatées. Un procédé de frottement a été proposé pour expliquer l'évolution du rapport H₂ / CH₄ dans un champ de gaz de la ceinture avant du Jura (Deronzier et Giouse, 2020), mais son rôle global pour la production de H₂ à grande échelle reste inconnu. L'activité bactérienne est également susceptible de produire du H₂ dans des environnements spécifiques (Conrad et Seiler, 1980), mais cette alternative n'a pas encore été quantifiée à l'échelle mondiale.

Sans chercher à discriminer entre ces sources possibles, le présent travail se concentre sur le transfert de H

dans des milieux continentaux caractérisés par une couverture de sol et qui conduit à la formation de cercles de fées. En l'absence de couverture du sol, des émanations de H $_2$ sont généralement signalées le long des failles. Dans le ophiolite Oman, par exemple, H $_2$ gaz riche ont les mêmes points de sortie que les eaux de source alcalines, qui sont situés le long de zones de défaut et de cisaillement (Neal et Stanger, 1983). Dans un tel cas, l'eau et les gaz réagissent immédiatement avec l'atmosphère, ce qui entraîne des dépôts de carbonate comme à Oman (Noel *et coll.*, 2018) et en Nouvelle-Calédonie (Deville et Prinzhofer, 2016). En cas d'accumulation d'eau (rivière ou lac), H $_2$ étant peu soluble dans l'eau à basse pression (Lopez-Lazaro *et*

coll. , 2019 et référence), un dégazage continu peut être observé sous forme de bulles. Ils montrent un flux continu mais non permanent de H_2 .

Après une synthèse des caractéristiques des structures émettrices de H $_2$ en termes de forme et de concentrations de H $_2$ dans les sols, nous explorons, dans la présente étude, à travers une modélisation bidimensionnelle réaction-transport, la situation où la migration de H $_2$ vers la surface se termine par une couverture de sol. Notre modèle de distribution souterraine de H $_2$ vise à rendre compte des concentrations de H $_2$ décrites comme non constantes ni dans le temps ni dans l'espace rapportées dans le monde entier dans les structures de forme circulaire.

1.2 Forme des structures émettrices de H ₂ en présence d'une couche de sol

En raison de leur forme circulaire, les structures à partir desquelles H $_2$ s'échappe dans l'atmosphère sont souvent appelées «cercle de fées». Nous utiliserons cette formulation même si les structures ne sont pas parfaitement circulaires, et même parfois parfaitement elliptiques comme en Caroline du Sud (Zgonnik *et al.*, 2015). La figure 1 montre quelques exemples de ces structures.

Larin *et coll.* (2014) ont enquêté sur un grand nombre d'entre eux dans l'oblast de Voronej, à environ 600 km au sud-est de Moscou. La distribution de taille déduite des 562 cercles mesurés montre une variabilité de 3 km à 100 m (Fig. 2 dans Larin *et al.*, 2014). Les petites structures sont plus fréquentes et les auteurs ont remarqué qu'au-delà de 1,5 km, il n'y a plus de relation entre la taille et la fréquence. Les auteurs notent que si le centre des structures correspond parfois à une véritable dépression, jusqu'à 5 m de profondeur, souvent il n'y a pas de véritable dépression mais juste des changements dans la végétation. Lorsque le centre correspond à une dépression, des zones humides sont présentes. On note de petits lacs et des changements dans la chimie du sol, Larin *et al.*(2014) ont remarqué que les sols sont plus sablonneux au bord du cercle et plus schisteux au centre. De même, en Caroline du Sud (USA), des centaines de dépressions ont également été signalées, d'abord par des chercheurs travaillant sur les zones humides et la biodiversité (Semlitsch, 2000) puis par ceux qui étudient les émissions de H ₂ (Zgonnik *et al.*, 2015). Ils ont noté, comme en Russie, un

large spectre de tailles allant de 8 km jusqu'à 100 m pour le grand axe des dépressions qui, dans ce cas, sont des ellipses (Fig. 1D).

Larin *et coll.* (2014) ont rapporté un alignement structurel et suggéré que les cercles de fées sont situés audessus des failles d'où le H ₂ s'échappe. Le rôle crucial des défauts pour la migration fluide (liquide comme

gaz) est bien établi et ne sera pas discuté ici. L'opinion générale est que la circulation omniprésente des fluides dans le milieu géologique est importante lorsque la porosité et la perméabilité en vrac sont importantes - c'est le cas de tous les lits porteurs et aquifères - alors que dès que la perméabilité est faible (schiste, roche métamorphique, granite ...) Les fluides circulent principalement dans les fractures et les failles. La coupe transversale (Fig.3 dans Larin *et al.*, 2014) montre que, dans leur étude de cas, le socle précambrien est situé entre 0 et 500 m de profondeur. Le fait que H $_{2}$ s'échappe de et le long des fractures du sous-sol est

donc une possibilité, mais en atteignant la couverture de sol sus-jacente, le transport vers le haut se fera dans le milieu du sol qui a généralement une porosité et une perméabilité relativement «bonnes» qui sont au moins peu nombreuses des ordres de grandeur plus élevés que celui du sous-sol précambrien.

Lorsqu'il n'y a pas de couverture de sol, comme à Oman, en Nouvelle-Calédonie (Deville et Prinzhofer, 2016 ; Vacquand *et al.*, 2018) mais aussi en Turquie dans la zone de Chimeres ou aux Philippines, le gaz suinte principalement des fractures, ces paramètres ne seront pas discutés ici. Grosso modo, la forme de ces suintements est la forme du réseau de fractures et sort également du cadre de cette étude.

Fig. 1



Synthèse des caractéristiques d'émissions du cercle féerique. A. Un cercle de fées au Brésil montrant comment la végétation est affectée. B. Variabilité dans le temps sur 5 semaines pour un capteur donné dans la structure surveillée au Brésil. Voir Prinzhofer *et al.* (2019) etMyagkiy *et coll.* (2020) pour plus de détails sur cette affaire. C. Variations journalières pour 6 capteurs installés sur la structure surveillée au Brésil montrant la période de 24 h. D. Variabilité de taille, des structures émettrices aux USA (modifiée dePrinzhofer et Deville, 2015). E. Deux profils à travers une structure montrant la variabilité spatiale de la valeur de concentration de H₂ entre le centre et

le bord de la structure, lac Podowoye, Russie. Ces valeurs n'ont pas été prises en même temps mais sur 2 jours. Modifié de Larin *et al.* (2014) . F. Profil montrant un exemple de variation de concentration de [H $_2$] en fonction de la profondeur aux États-Unis (modifié d'après Zgonnik *et al.*, 2015).

1.3 Mesures de concentration de H , résolues dans le temps dans les cercles de fées

Jusqu'à présent, même si la liste des bassins où des émanations de H $_2$ ont été signalées s'allonge (Zgonnik, 2020), les mesures de distribution spatiale et temporelle de la concentration de H $_2$ dans les sols des cercles de fées sont encore rares. Cependant, les jeux de données citées dans la section précédente montrent tous que le sol H $_2$ -concentration est variable à travers la structure et que la concentration maximale est à peine, sinon jamais, dans le centre de la structure (Fig. 5 et 6, Larin *et al.*, 2014 ; Prinzhofer *et al.*, 2019).

Le seul suivi permanent publié d'une concentration de H $_2$ dans la porosité du sol d'une structure émettrice a été réalisé dans le bassin de São Francisco au Brésil (Prinzhofer *et al.*, 2019). Quelques autres exemples de données de surveillance permanentes publiées de H $_2$ sont soit liés au risque sismique et ont été réalisés à proximité de failles actives, comme à San Andreas (Sato *et coll.*, 1986) et au Japon ou pour le contrôle de la sécurité lors des opérations minières (péninsule de Kola, Russie,Firstov et Shirokov, 2005;Nivin *et coll.*, 2016).

Au Brésil, la structure circulaire surveillée est une dépression d'un diamètre proche de 500 m. L' ensemble de données publié sur la concentration de H $_2$ couvre plus ou moins un mois et demi d'enregistrement. Il montre une longueur d'onde quotidienne cohérente avec une source pulsée d'origine encore floue. Presque tous les capteurs qui sont à proximité de la jante de la structure et installés à 80 cm de profondeur, présentent un maximum aux environs de midi et enregistrent H $_2$ flux pendant environ 6 jours ha. Les concentrations de H $_2$ dans le sol sont mesurées chaque heure et étaient d'environ 150 ppm au cours de la semaine d'août 2019, comme indiqué dans Prinzhofer *et al.* (2019) . Un autre capteur a enregistré des valeurs plus élevées (jusqu'à 1200 ppm), il a également montré une période de 24 h mais H $_2$ la concentration maximale a été atteinte pendant la nuit. Un capteur installé au centre de la structure pendant quelques mois

n'a enregistré que quelques impulsions de concentration de H $_2$ mais la plupart du temps avait un signal

proche de 0 (communication personnelle de Prinzhofer et Engie's Team). La période de 24 h n'est pas encore entièrement comprise (Myagkiy *et al.*, 2020) ni l'écart, ou le délai, entre la zone fortement émettrice et les

autres. Cependant, le fait que la concentration de H $_2$ dans le sol, près de la surface, change avec le temps tout au long de la journée est indiqué par toutes les données.

L'effet, sur le transport diffusif de H₂, de l'activité bactérienne a déjà été étudié sur des sols de la même structure du bassin de São Francisco (Myagkiy *et al.*, 2020). La cinétique de consommation de H₂ par les bactéries présentes dans le sol, qui a été calibrée dans des expériences en laboratoire, s'est avérée très importante et peut réduire voire masquer complètement les flux plus profonds de H₂. Au fond, la consommation de H₂ par les bactéries augmente avec le temps de séjour de H₂ dans le sol quel que soit le mode de transport, advectif ou diffusif.

Il n'existe que peu de données publiées sur H 2 dans le sol à différentes profondeurs. À Oman, Zgonnik et al.

(2015) ont enregistré des concentrations à 3 profondeurs différentes de 30, 60 et 110 cm et ont trouvé des concentrations de 150, 375 et 3400 ppm respectivement (S54, f1, 2 et 3, Tab. A1 dans l'article cité). Cependant, dans le même article, ils rapportent également des données montrant un gradient inverse avec la concentration de H₂ qui diminue avec la profondeur (échantillon 51 f1 et f2). Ces données correspondent à

des mesures ponctuelles sans indication du temps d'échantillonnage donc même si ces variations de concentration avec la profondeur sont réelles, elles pourraient simplement être un instantané d'une situation qui peut évoluer avec le temps.

Le suivi effectué au Brésil a déjà montré que l'enregistrement des données en fonction du temps pendant au moins quelques jours est crucial non seulement pour calculer un débit, mais aussi simplement pour savoir si des émissions de H₂ ont lieu. Une seule valeur de concentration nulle de H₂ (que nous noterons [H₂] plus loin dans cet article) à un moment donné ne peut pas être interprétée comme un manque de flux de H₂ dans un système dynamique. Sur la base d'un modèle numérique de transmission de H₂ dans le sol, nous évaluerons ici quels sont les paramètres clés qui affectent le signal proche de la surface et peuvent expliquer (1) la taille de ces structures; (2) la présence d'un cycle avec H₂ plus élevéconcentration; (3) la variation dans le temps du signal proche de la surface. Nous discuterons donc des causes du caractère aléatoire apparent de la concentration en H₂ enregistrée près de la surface.

2 Transport de H

2.1 Équations et hypothèses régissant la physique

Un modèle numérique advectif-diffusif bidimensionnel du transport réactif des gaz dans les milieux poreux a été développé. Pour cela, le simulateur numérique COMSOL Multiphysics v 5.2 a été utilisé. Tous les détails concernant les équations et les paramètres utilisés dans nos calculs sont présentés dans l' annexe A.

L'activité bactérienne, qui s'est avérée jouer un rôle important dans la consommation ou la production de gaz dans la partie supérieure du sous-sol, a été incorporée dans les calculs par la loi cinétique de Michaelis-Menten de la consommation de H $_2$. Les paramètres, expérimentalement dérivées pour les sols du Brésil H $_2$

structure émettant pas , ont été utilisés dans les simulations. Deux types de calculs ont été effectués, à savoir avec et sans consommation bactérienne H $_{2}$, à titre de comparaison. Les détails de ses mesures peuvent être

trouvés dans Myagkiy *et al.* (2020). Le modèle suppose un gradient constant dans la distribution des bactéries; la valeur maximale de l'activité de consommation bactérienne est supposée apparaître à la surface et atteint zéro en bas du modèle.

Il convient de noter que le modèle numérique a été résolu dans la plage de [H ,] à laquelle la cinétique

microbiologique d'absorption a été mesurée, donc jusqu'à quelques millièmes de ppm. Par souci de simplicité, les concentrations modélisées de H $_{2}$ dans le sol ont été exprimées en pourcentage de la

concentration à la source. L'impact de la concentration à la source dans la plage d'applicabilité de la loi de consommation microbiologique s'est avéré négligeable par rapport aux autres paramètres. Le $[H_{2}]$ à la

surface a été mis à zéro dans le modèle car la teneur en dihydrogène dans l'atmosphère est négligeable par rapport à celles modélisées.

L'impact du degré de saturation en eau dans le sol n'est pas pris en compte dans cette étude mais peut avoir un impact important sur le temps de transport caractéristique de l'hydrogène dans les milieux poreux (voir *par exemple* Myagkiy *et al.*, 2020). La forte teneur en eau du sol réduit sa porosité effective et limite la diffusion et l'advection de H ₂dans le sol. Pour l'environnement souterrain peu profond jusqu'à 30 m de

profondeur, comme dans notre modèle, la pression et la température sont trop basses pour justifier une

dissolution importante de l'hydrogène dans l'eau. Le dihydrogène provenant d'une source profonde est le plus susceptible de dépasser la limite de sa solubilité dans l'eau dans ces conditions, ce qui peut conduire à la formation de bulles. Cela peut être l'un des moyens de transport du dihydrogène à travers un aquifère. Ce mode de transport peut être décrit par la formation d'amas de gaz (*par ex.* Li et Yortsos, 1995 ;Dominguez *et coll.*, 2000) et sort du cadre de cette étude, qui met en évidence le transport dans la zone vadose.

2.2 Conditions aux limites

Perméabilité du sol: la perméabilité moyenne utilisée dans la plupart des simulations rapportées ici est de 10

Da (ou m), appropriée pour un sol moyennement perméable (Auer *et coll.*, 1996 ;Lazik *et coll.*, 2016), l'influence de l'hétérogénéité dans cette anisotropie et surtout des perméabilités plus faibles en zone argileuse sera discutée.

<u>Fuite profonde ponctuelle</u> : le cas de modélisation implique une source H $_{2 d'}$ origine profonde ; le gaz est

donc censé s'échapper vers le haut dans les roches sus-jacentes et subir ensuite des interactions gaz-sol dans la couche de sol. La source est représentée par un point source au bas du domaine de modélisation, où le gaz s'injecte en raison d'une surpression et le dihydrogène pénètre dans la matrice de sol poreux. Cette impulsion de concentration périodique de H $_{2}$ est évidemment un cas idéal. Cependant, en l'absence de

contraintes sur la zone émettrice elle-même, un type d'émission plus complexe serait difficile à justifier. Les roches précambriennes ou ophiolitiques, qui sont la roche mère la plus probable pour H $_{2}$, étant toutes deux

peu perméables, nous considérerons que le H ₂l'émission se produit en un point donné du sous-sol qui

correspond à une fracture qui permet, lorsque la pression du fluide est suffisante, l'échappement du gaz. Comme un geyser périodique d'où s'échappent des gaz dans une zone géothermique. D'autres contextes géologiques peuvent conduire à ce type de fuite ponctuelle: le dégazage au sommet d'un aquifère puisque la solubilité de H $_2$ diminue fortement avec la pression; une fuite par fracturation hydraulique naturelle est

également possible, une telle microfissure peut s'ouvrir lorsque le tenseur de contrainte local change ou au sommet d'une accumulation si le joint n'est pas assez bon comme observé au-dessus de l'accumulation de gaz HC (Sibson, 2003 ;Petrie, 2014), la rupture du joint capillaire est une autre possibilité déjà proposée pour les fuites de méthane (Cartwright et Santamarina, 2015).

<u>Périodicité de la fuite profonde de H</u>₂: Puisque toutes les données de surveillance disponibles montrent que le flux de H₂ est périodique, nous utiliserons principalement cette hypothèse. Les données de surveillance H₂ du Brésil et de la péninsule de Kola suggèrent une période de près de 24 h et un débit de 6 h. Nous utiliserons ces valeurs dans notre modèle pour la source pulsée. De plus, des périodes d'impulsion plus

courtes et même des fuites continues de H $_{2}$ seront modélisées à des fins de comparaison.

<u>Quantité de H</u> qui fuit : on peut soupçonner que la taille de la dépression est liée à la quantité et / ou à la pression de dihydrogène qui dégaze au cours d'un cycle. Par conséquent, les différentes fractures ΔP seront testées et la taille de la zone influencée par le flux H $_2$ par rapport aux tailles assez cercles.

Perméabilité et porosité des sols : le transport du fluide dans le sol dépend fortement de ses caractéristiques hydrauliques. Dans le sol, comme dans la roche, les valeurs peuvent être très variables, d'au moins trois ordres de grandeur, de 10 Da (pour le gravier) à 0,01 Da (pour le sol schisteux). L'influence de ce paramètre et de sa distribution dans le sol d'une même structure sera testée.

<u>Activité bactérienne</u> : l'impact de ce paramètre a déjà été discuté dans un article précédent (<u>Myagkiy *et al.*</u>, 2020), nous allons donc incorporer cet effet dans la discussion mais l'impact de la variation de la quantité de bactéries et de la cinétique du H_{2 la} consommation ne sera pas discutée ici en détail.

3. Résultats et discussion

3.1 Flux permanent de H

La figure 2 montre la concentration dans le sol au-dessus d'une fuite permanente de H $_2$ située à 30 m. Au bout de quelques heures, H $_2$ atteint la surface et le profil de concentration horizontal a une forme de cloche avec un maximum situé juste au-dessus du point de fuite. Ensuite, le profil de concentration de H $_2$ se propage latéralement. Par conséquent, la taille de la zone affectée par le flux de H $_2$ augmente avec le temps. Alors qu'il mesure environ 200 m de large après environ 2 mois, il atteint 400 m après un peu plus d'un an.

On peut noter que:

- La concentration de H 2 dans le sol a une distribution en «cloche» avec son maximum situé au centre de la structure
- Le temps requis pour que l'H 2 atteigne la surface est d'environ 12 h (nombre qui dépend évidemment

de la profondeur de la fuite et de la pression de recharge du dihydrogène à partir du niveau le plus profond). Au-dessus du point de fuite après 2 jours, le $[H_2]$ reste constant en intensité dans le temps.

Au centre, toutes les valeurs sont donc les mêmes, le maximum qui pourrait être atteint, *c'est*-à- *dire* la même concentration qu'au point de fuite

 Progressivement, la concentration du sol augmente latéralement et la zone touchée, le cercle des fées, s'agrandit de plus en plus avec le temps. Le processus de croissance de la structure, ralentit mais se poursuit, la taille de la structure, son diamètre, est d'environ 50 m après 1 jour, 200 m après 50 jours et 400 m après 500 jours.

Il est clair qu'aucune des caractéristiques de ce signal H₂ ne correspond aux données observées décrites cidessus.

Une deuxième série d'essais a été effectuée en ajoutant l'effet de la consommation de H₂ dans le sol en raison de l'activité bactérienne. Les résultats sont présentés à la figure 3. Dans un tel cas, la cinétique de la consommation a lié la croissance du cercle de fées. La consommation de H₂ limite l'expansion radiale de la zone émettrice de H₂. Avec l'activité bactérienne, après quelques jours l'état permanent est atteint, il y a un équilibre entre l'émission et la consommation de H₂, et la taille de la structure a atteint son maximum qui est d'environ 100 m de diamètre pour cette source de 30 m de profondeur. La concentration le long du profil reste donc constante. L'équilibre entre le temps de transport de H₂ dans le sol pour atteindre la surface et la cinétique de la consommation de H₂ est liée aux caractéristiques du sol et à l'activité bactérienne; ce n'est absolument pas une relation individuelle.

En conclusion, aucun de ces résultats ne correspond aux données de la littérature, ils n'expliquent pas l'anneau des valeurs élevées de $[H_2]$ ni les variabilités du $[H_2]$ en fonction du temps. De plus, on peut noter que sans consommation de H_2 dans le sol la distribution de H_2 se poursuit et la croissance de la structure se poursuit au fil des années. Dans la littérature, la concentration de H_2 dans le sol est toujours variable mais personne n'a remarqué à ce jour de grands changements dans la taille de la structure au fil du temps. Quelle que soit son origine, bactérienne ou non, la consommation d' H_2 dans les sols semble obligatoire pour expliquer cette stabilité en cas d'écoulement continu.

Fig. 2



Fuite continue de H $_2$ avec la source à 30 m et sans bactéries actives dans le sol. La perméabilité aux gaz du sol est de 10 Da. A. Instantanés d'une propagation H $_2$. La couleur du bleu au rouge indique le [H $_2$] du gaz de propagation normalisé à la source [H $_2$]. B. Distribution [H $_2$] en fonction du temps à 80 cm de profondeur.

Fig. 3



Fuite continue de H $_2$ avec la source à 30 m, compte tenu des bactéries actives consommatrices de H $_2$ dans le sol. La perméabilité aux gaz du sol est de 10 Da. A. Instantanés d'une propagation H $_2$. B. Distribution [H $_2$] en fonction du temps à 80 cm de profondeur.

3.2 Source pulsée du cas de référence de transport H $_{\rm 2}$

Une troisième série d'essais a été réalisée en utilisant une source pulsée à une profondeur donnée de 30 m, avec une activité bactérienne, l'influence de la profondeur de la source sera discutée plus tard. L' impulsion H ₂ choisie comme condition aux limites au point de fuite est longue de 12 h et montre un maximum à t = 6

h. L'annexe A qui résume les équations et les hypothèses montre la concentration de H 2 au point source

pour les différents essais. La figure 4A montre la montée de l'hydrogène à partir de la source, comme précédemment la surface est atteinte au-dessus du point de fuite après 12 h. Ensuite, un anneau se développe définissant un haut [H₂] zone qui s'agrandit légèrement jusqu'à atteindre le diamètre maximum

de 100 m dans le cas d'un point de fuite situé à 30 m. La figure 4B montre les mêmes résultats mais met en évidence le profil en fonction de la profondeur à des moments différents. Fait intéressant, on peut observer que selon l'heure de la journée, le gradient de concentration en H₂, $\frac{d(t_1)}{dt}$ à la surface proche, peut être négatif

(t0 + 18 h) ou positif (6 h et 12 h) selon le temps de mesure.

La figure 4C présente les émanations proches de la surface à travers la structure à 4 délais différents, les valeurs sont données à 80 cm de profondeur au centre de la structure car c'est à peu près là où le suivi ou la mesure sont effectués dans la littérature. On peut observer l'augmentation de la concentration au centre de la structure jusqu'à 12 h. Ensuite, le pic se sépare. L'anneau se forme entre 12 et 18 h puis il grossit légèrement. Il est à noter qu'à 24 h (trait rouge pointillé), la bague (les deux pics dans le profil) est parfaitement formée, le [H $_{2}$] au centre est nul.

Les résultats de cette modélisation, même très simples, sont une clé pour comprendre les données de la littérature où des valeurs [H ₂] apparemment aléatoires sont rapportées à travers les structures résumées

dans la section d'introduction. Le fait que la source soit pulsée induit la formation d'anneau et l'inversion du maximum entre le centre de la structure et la jante. Le retard, *c'est-à - dire* le temps de parcours, entre le maximum d'impulsion au fond de la zone étudiée et le moment où il atteint la surface explique ces courbes de concentration en fonction du temps et de la profondeur en H₂. Le mode de transport, advectif et diffusif,

et les caractéristiques du sol, essentiellement sa perméabilité, ont une forte influence sur la vitesse de transport de l'hydrogène comme il sera discuté plus loin.

Fig. 4

Emission d'impulsions de H $_2$ depuis la source à 30 m de profondeur. A. Instantanés de la propagation d'une impulsion de gaz H $_2$ dans le temps. B. Distribution [H $_2$ %] le long d'une ligne verticale passant par le point source (voir ligne blanche sur l' instantané t = 0 de la figure 4A). Notez que le [H $_2$] mesuré à une profondeur donnée variera fortement au cours du cycle de propagation des impulsions. C. Distribution [H $_2$] à 80 cm de profondeur en fonction du temps. Cas de référence: pas de bactérie active, K = 10 Da, le surplus de pression du gaz à la source est de 2 bar, profondeur de la source = 30 m.

3.3 Taille des structures

Le premier essai avec un flux continu sans bactéries actives ou tout autre mécanisme de piégeage montre déjà que s'il n'y a pas de consommation de H $_2$ dans le sol, la surface portante de H $_2$ pourrait être très grande, quelques centaines de mètres même pour une fuite proche de la surface . Le piégeage du H $_2$ dans le sol (*par exemple* , par des bactéries) limitera la taille de la structure pour un flux et une profondeur de source ponctuelle donnés. La distance parcourue en H $_2$ qui peut augmenter continuellement en l'absence de consommation de H $_2$ devient limitée lorsque H $_2$ est consommé sur son chemin vers la surface. En conséquence, une source plus profonde entraînera des structures plus petites ou même aucune structure du tout si tout le H $_2$ émisest consommé sur son chemin vers la surface. Cependant, les données de la littérature en Russie (Larin *et al.*, 2014) comme aux USA (Zgonnik *et al.*, 2015) montrent que dans une même zone, la taille des structures peut être variable. Compte tenu du fait que l'épaisseur du sol ne change généralement pas trop rapidement, des explications alternatives doivent être recherchées pour expliquer la variabilité des diamètres de la structure. Nous avons donc testé la pression de la «bulle» H $_2$ qui a tendance à varier.

la bulle H $_2$ signifie également qu'une quantité plus élevée de H $_2$ est libéré dans le sol à partir du point de fuite.

La source étant pulsée, le signal $[H_2]$ mesuré à la surface dépend du temps. Cette dépendance temporelle a été décrite précédemment, nous allons donc concentrer notre analyse sur la taille de la structure. Ainsi, au lieu d'une succession d'instantanés, l'enveloppe de $[H_2]$ oscillante sera affichée (Fig. 5), qui correspond au maximum $[H_2]$ mesuré sur chaque point de la surface dans les 30 premières h (avec et sans activité bactérienne).

Avec la source à 30 m et sans bactéries, le cercle fait 100 m de large après 1 jour si la pression est basse, 2 bars, et peut atteindre un diamètre de 140 m si l'H $_{2}$ est en surpression (10 bars) en s'échappant du sous-sol.

Ces valeurs sont réduites à 80 m et 120 m (respectivement) dans le cas d'une activité bactérienne consommant de l'H $_2$ dans le sous-sol.

La relation numérique entre la taille de la structure et la profondeur du point de fuite dépend également de la perméabilité et de la porosité du sol qui seront discutées plus tard. Cependant, l'observation la plus marquante est le lien entre les caractéristiques de l'impulsion H_2 et la taille des structures. Dans un bassin

donné, pour des caractéristiques et une épaisseur de sol données, la taille des structures peut varier si l' impulsion H $_{2}$ est plus ou moins pressurisée, cela signifie également que la taille augmente si la quantité de H

 $_{\rm 2}$ libérée à chaque impulsion devient plus grande. Il semble particulièrement intéressant d'expliquer la

présence de petites structures dans les grandes structures comme observé dans la baie de Carolina.

Le fait que la consommation de H ₂ dans le sol ait un fort impact sur la taille de la structure en limitant sa

croissance a déjà été démontré avec les premiers passages à fuite permanente. La possibilité d'inverser le signal de surface pour en déduire la profondeur du point de fuite est donc illusoire, trop de caractéristiques inconnues, ou mal connues, impactent la taille de la zone émettrice. En plus de cela, nous modélisons uniquement la dernière étape du transport du gaz vers la surface, lorsque le gaz a envahi le milieu poreux non consolidé, comme en témoignent les données sismiques à haute résolution.La cheminée de gaz (le long de la faille ou non) peut permettre une migration ascendante efficace de gaz d'un niveau plus profond (Gay *et coll.*, 2006 ;Maia *et coll.*, 2016). La connaissance du schéma structurel et du réseau de failles et donc des données sismiques est obligatoire pour voir où les cheminées prennent racine.

Fig. 5



Enveloppe maximale $[H_2]$ à 80 cm de profondeur en fonction de la pression de la source (0,2, 0,5 et 1 MPa) pour une source de 30 mètres (A) sans bactéries actives et (B) avec des bactéries actives.

3.4 Hétérogénéité du sol

Jusqu'à présent, nous avons considéré un sol homogène de perméabilité et de porosité constantes dans notre modèle; ce n'est pratiquement jamais le cas. Le cercle correspondant à de légères dépressions, les particules fines sont transportées vers le centre par l'eau de pluie où elles s'accumulent pour former un dépôt schisteux. C'est ce qui a été observé en Russie (Larin *et al.*, 2010) comme au Brésil (Prinzhofer *et al.*, 2019). Les sols schisteux ont une perméabilité très différente de celle des sols limoneux, jusqu'à 3 ordres de grandeur (*par ex.* Terzaghi et Peck, 1968;Freeze et Cherry, 1979 dans Tab. 2.2, p. 29). Afin de tester l'influence de l' hétérogénéité de la perméabilité au sol H₂ concentration, nous avons ajouté à notre modèle

d' une couche argileuse à faible perméabilité au centre, au- dessus du point d' émission. Le calcul a été réalisé en considérant que la couche à faible perméabilité a une épaisseur de 3 m et une largeur de 50 m et une perméabilité de 0,01 Da, *soit* 3 ordres de grandeur inférieure au sol environnant, et deux fois plus petite en porosité. Dans cet essai, la consommation de H₂ par activité bactérienne est prise en compte.

La figure 6A montre un aperçu de la résultante H $_2$ flux. Dans ce cas, H $_2$ est tout d'abord déplace vers le haut et latéralement comme précédemment mais quand H $_2$ flux atteint la zone de faible perméabilité, il obtient tout autour en prenant le chemin le plus rapide à la surface. L'anneau de valeurs H $_2$ élevées déjà présentes du fait de l'effet temporel est maintenant renforcé à la limite de la zone la moins perméabilité. Cela peut être clairement vu sur la figure 6B qui représente l'enveloppe maximale de [H $_2$] près de la surface à 80 cm de profondeur, ce qui correspond au maximum [H $_2$] mesurée à chaque point de cette profondeur au cours des 30 premières heures.

Les amplitudes du signal en fonction du temps au centre de la structure et à la frontière de la couche shaly sont représentées sur la figure 7A , à la même profondeur que sur la figure 6B . Il met en évidence le fort impact de la perméabilité sur le temps de transport de H $_{2}$. Le maximum est atteint près de la surface sur la

frontière après presque 1 jour, soit 18 h après le pic de l'émission, lorsqu'il atteint le centre après 30 h donc 24 h après le pic de l'émission. Ces 6 h de «retard» se traduisent par une consommation de H _{2 plus} élevée

dans le sol et ainsi le signal au centre est proche de zéro.

Il est également intéressant de noter qu'avec l'activité bactérienne, 60% du H $_2$ est consommé avant qu'il

n'atteigne la surface mais que le «temps de trajet» n'est que légèrement affecté par les bactéries. La consommation de H_2 affecte le gradient H_2 , lorsqu'elle est fortement dépendante de la perméabilité. Dans ce cas, au bout de 2 jours le signal est stable, le flux profond de H_2 atteint la surface après quelques heures,

jusqu'à presque une journée et demie pour le centre ou loin de la partie shaly puis flux et consommation se neutralisent . Un état stable est atteint.

Fig. 6



A. Instantanés d'une propagation d'impulsions de gaz porteurs de H $_{2}$ comme sur la

figure 4 mais avec l'introduction d'une zone de faible perméabilité (0,01 Da) simulant une hétérogénéité de sol riche en argile au centre de la structure. Les bactéries actives sont considérées ici. B. Enveloppe [H₂] maximum à 80 cm de profondeur.

Fig. 7



Concentration au centre et en bordure de la structure en cas d'hétérogénéité au centre avec K = 0,01 Da et bactéries actives. A. Émission toutes les 24 h. B. Émission toutes les 6 h.

3.5 Fréquence de l'impulsion

Comme déjà mentionné, une périodicité de près de 24 h a été observée dans les quelques données de surveillance publiées, en Russie, dans les mines, ainsi qu'au Brésil dans un champ herbeux. L'explication de cette période est encore débattue mais la modélisation présentée ici montre qu'un flux continu n'est pas compatible avec les données de terrain. De plus, nous avons testé l'hypothèse d'une fréquence d'impulsions plus élevée avec 4 impulsions par jour au lieu d'une. Afin de comparer les résultats avec le cas précédent, tous les autres paramètres sont conservés les mêmes, le point de fuite est à 30 m de profondeur et il y a une couche de faible perméabilité, 50 m de large et 3 m d'épaisseur, au centre de la zone modélisée. La figure 7B montre le [H₂] dans le sol au milieu de la structure, donc dans la partie shaly, et au bord de cette partie

shaly. Comme dans le cas des fréquences de 24 heures, figure 7A , sur la figure 7B, le front H ₂ atteint d'abord

le rebord, après environ 36 h, puis les positions de maximum et de minimum sont remarquées mais elles sont mal marquées. Globalement, après 2 jours, il y a un signal presque constant. Il est encore plus prononcé au centre de la structure, le temps de parcours est plus grand car la perméabilité du sol est plus petite mais au bout de 3 jours le signal atteint une sorte d'état stationnaire et le signal est presque constant. La quantité de H ₂ dans le sol est globalement plus petite puisque la quantité de H ₂libéré à la source est globalement

plus petit. Nous ne connaissons pas la quantité exacte de H ₂ qui fuit dans les différents bassins donc nous

ne discuterons pas tant des concentrations finales. Cependant, il vaut la peine de se rendre compte que même si le sol n'a que 30 m d'épaisseur, une impulsion haute fréquence entraînera un signal presque permanent et l'oscillation ne sera pas détectée par la mesure à proximité de la surface. Au bout de 3 jours maximum, la concentration en H $_2$ est stable comme pour une source constante. Cependant, une constante

[H] à un endroit donné dans le temps et avec la profondeur ne correspond pas aux données observées.

3.6 Autres processus potentiels susceptibles d'influencer la concentration de H $_{2}$

dans le sol

Comme expliqué précédemment, nous avons modélisé le transport de H $_2$ près de la surface dans un sol sous-saturé à haute perméabilité. L'approche choisie a des limites et ne prend pas en compte tous les processus physiques qui peuvent exister dans le sous-sol, mais aussi dans l'atmosphère, et qui affectent l' écoulement de H $_2$.

Les suintements de gaz HC ont été principalement étudiés en mer et sont les marques de la présence de gaz dans le sous-sol; les pockmarks et / ou les volcans de boue associés sont très courants et assez faciles à imager avec la bathymétrie haute résolution et les données sismiques 3D maintenant disponibles (*par exemple* Maia *et al.*, 2016et référence à l'intérieur). Les images montrent clairement que le gaz s'échappe par des conduits étroits du réservoir, qui très souvent, au large, est la zone de gaz libre sous la couche d'hydrate. Ces conduits sont verticaux et peuvent dans certains cas correspondre à de petites failles même dans des sédiments jeunes et donc non compactés. Sauf à terre près de la surface au-dessus du niveau piézométrique,

tous les sédiments sont saturés d'eau, mais les données sismiques, car les expériences montrent que le gaz peut envahir les milieux poreux non consolidés dès que la surpression dépasse la contrainte effective (Fauria et Rempel, 2011). L'hydrogène sous forme de méthane est peu soluble dans l'eau à basse température et basse pression (Lopez-Lazaro *et al.*, 2019). Par conséquent, nous simplifions le modèle et considérons uniquement le gaz libre, pas le gaz dissous. Nous avons également considéré qu'il y avait suffisamment de gaz dans cette zone de fuite de gaz pour la modéliser comme une seule phase et non comme des bulles isolées dans une colonne d'eau. La simulation de bulles individuelles, de leur migration et de leur coalescence, pourrait être effectuée à l'échelle des pores (*par ex.* Mahabadi *et coll.*, 2018) mais à l'échelle du bassin, c'est évidemment plus difficile, et ce n'est pas le niveau de détail que nous ciblons dans cette étude. En terme de consommation de H ₂ dans le sol, notre modèle est également simple, nous ne prenons en

compte que l'activité bactérienne proche de la surface et la distribution des bactéries en fonction de la profondeur est une diminution exponentielle. La consommation de H₂ par des processus inorganiques n'est pas modélisée, par exemple l'adsorption de H₂ dans le sol shally au centre de la structure pourrait également amplifier le phénomène d'atténuation du signal H₂ au centre des structures mais n'est pas calculée ici.

Les causes externes de la variation du débit de H $_2$ sont également négligées, dans notre calcul, la pression de l'air est fixée constante sur la simulation. L'effet du pompage barométrique (Auer *et al.* , 1996) n'est pas pris en compte sur le transport advectif de H $_2$ dans le sol. La teneur en eau dans le sol, due par exemple à la saisonnalité des précipitations, peut également modifier les paramètres du sol et augmenter la complexité du signal.

Malgré toutes ces limites, dont nous sommes conscients, certaines conclusions peuvent être tirées.

4. Conclusions

Le modèle 2D actuel du transport de H $_2$ (advection et diffusion) dans une couche de sol d'un point de fuite périodique [H $_2$] à la surface offre un outil simple pour interpréter les caractéristiques rencontrées dans le domaine où les émissions actives de dihydrogène prend place. Plusieurs paramètres peuvent influencer la concentration finale et la dépendance du temps et de la profondeur de ce H $_2$. Le but de cet article n'est pas

d'ajuster un ensemble de paramètres pour s'adapter parfaitement aux données d'un cas donné, mais plutôt de comprendre ce qui contrôle la distribution 2D et l'amplitude de la concentration d'hydrogène.

- Formes observées: cercles de fées. Notre modélisation montre qu'une fuite d'hydrogène ponctuelle à une profondeur donnée se traduit par une structure circulaire en surface. Le fait que les structures émettrices actuellement détectées ne croissent pas et aient une forme quasi stable sur quelques années d'observations est incompatible avec un écoulement permanent sur des années et suggère également fortement la consommation de H₂ dans le sol.
- Une source pulsée permet d'expliquer la variabilité spatiale du [H 2] dans le sol observée au Brésil (

Prinzhofer *et al.*, 2019) entre autres localités. Le modèle présenté est 2D, mais on peut noter que le fait que les structures émettrices soient souvent alignées au-dessus des accidents comme en Russie (Larin *et al.*, 2010) est parfaitement compatible avec un modèle où le H ₂ se déplace dans les fractures du socle, s'échapper de la roche à faible perméabilité par une ouverture de fracture pompée le long des failles principales, puis être transporté par un autre mode discuté ici dans le sol.

 Variabilité temporelle des données: les mesures effectuées dans la même structure mais avec un décalage de quelques jours ou de quelques mois ont montré que la concentration en H , n'est pas

constante et les suivis effectués au Brésil ont montré que le signal varie sur tout le territoire journée. De plus, des gradients négatifs tels que la diminution du signal avec la profondeur et des gradients positifs où [H $_2$] augmente sont tous deux possibles, comme cela a été observé à Oman. La modélisation a

souligné le décalage entre le [H $_2$] et le signal proche de la surface même si le sol est parfaitement

homogène. Avec une hypothèse «régulière» pour la perméabilité du sol et la distance au point source jusqu'à quelques heures de retard peut être noté entre les maxima. Quelques heures entre le pouls et la concentration plus élevée près de la surface et quelques heures entre le centre du cercle de fées et le bord.

 La taille du cercle est principalement fonction du temps de transport entre la source localisée et la surface. Il n'y a donc pas de moyen simple et univoque de calculer la profondeur du point source à partir de la taille du cercle. Pour un ensemble donné de paramètres, le cercle sera plus grand lorsque la source est plus profonde et a une pression de recharge plus élevée, mais si la perméabilité du sol est plus faible pour une profondeur donnée, le cercle sera plus petit. Abaisser conduit de perméabilité à plus grande durée de contact avec H $_2$ bactéries consommant. De plus, s'il existe un ΔP , le diamètre de

la structure sera également plus grand.

 Des valeurs plus élevées sur la jante et proches de zéro au centre de la structure. Si le sol est inhomogène, le débit de H₂ sera plus élevé dans les zones à haute perméabilité. Le flux de H₂ est lent

dans la zone de faible perméabilité, par conséquent le gradient diminue et la consommation par activité bactérienne est plus élevée. Sur le terrain, des minéraux argileux remplissent généralement le centre d'une structure déprimée, une faible perméabilité peut se former et le flux de H₂ peut disparaître au

centre et augmenter autour de la couche à faible perméabilité. Donc impulsion et zone de faible perméabilité au centre expliquent à la fois le bord des valeurs élevées mais que l'hypothèse d'une faible perméabilité au centre qui permettent de comprendre pourquoi le [H _] reste faible au centre qui est

au-dessus du point source.

On peut également remarquer que les données publiées jusqu'ici ne sont pas compatibles avec une source pulsée haute fréquence qui conduit rapidement, après quelques dizaines de mètres de sol, à un signal constant près de la surface. A ce stade, on peut conclure que le l'inversion du signal proche de la surface [H₂]

] pour en déduire les caractéristiques de la source (profondeur, surpression, [H 2]) n'est réalisable que si de

nombreux paramètres souterrains sont connus; parmi eux, l'épaisseur du sol, la variation de la perméabilité et le potentiel de consommation de H $_{2}$ sont les plus importants. Une surveillance permanente à différentes

profondeurs serait également intéressante, pour nous même obligatoire, pour aller plus loin dans l'interprétation du signal proche de la surface.

Reconnaissance

Nous remercions ENGIE qui a soutenu cette étude et le post-doctorat Andrey Myagkiy. Un financement complémentaire du CNRS / INSU à travers le programme TelluS est également reconnu.

Annexe A Équations physiques gouvernantes

Les équations qui régissent le système hydrodynamique sont représentées par l'équation du transport de gaz (1) , l'équation de continuité (2) et l'équation d'écoulement de Darcy (3) . La loi de Darcy est combinée avec l'équation de continuité et l'équation du gaz parfait (4) devient l'équation (5) .

$$\frac{\partial(\varphi c_i)}{\partial t} + \nabla \cdot (uc_i) = \nabla \cdot (D^* \nabla c_i) + R^*,$$
(1)

$$\frac{\partial(\rho\varphi)}{\partial t} = -\nabla \cdot \left(\rho - \frac{k}{\mu} \nabla P\right),$$

$$u=-\frac{k}{\mu}(\nabla P-\rho g),$$

(3)

(4)

(5)

(6)

(7)

(2)

$$\rho = \frac{PM}{RT},$$

$$\frac{\partial(P\varphi)}{\partial t} = -\nabla \cdot \left(-\frac{k}{\mu}P\nabla P\right),$$

$$D_{por} = \varphi \tau D_{atm,}$$

$$au=arphi^{1/3},$$

$$D^* = D_{por} + \alpha |u|.$$

(8)

Pour les conditions tout-gaz comme discuté dans cet article, le facteur de tortuosité se réduit à la valeur du milieu poreux (équation (7)), selon la corrélation de tortuosité de Millington et Quirk (1961).

où, c_{j} est la concentration de H $_{2}$ dans une phase gazeuse dans un milieu poreux, R_{j} est un taux de consommation de H $_{2}$ par les bactéries, et *u* signifie la vitesse du gaz, ϕ désigne la porosité, τ est la tortuosité,

D est la somme du coefficient de diffusion effectif de l'hydrogène gazeux dans un milieu poreux et d'un terme de dispersion dépendant de la vitesse, appelé dispersion mécanique, et D_a est un coefficient de diffusion de H₂ dans l'air.

Le transport diffusif dans le gaz était traditionnellement décrit par diffusion moléculaire. Le flux diffusif a été modélisé en utilisant la loi de Fick qui a été optimisée pour les milieux poreux et prend en compte les facteurs de porosité et de tortuosité. On a supposé que le libre parcours moyen moléculaire des particules de gaz était bien plus grand que la dimension des pores et, par conséquent, aucune influence des parois des pores n'a été prise en compte. Les voies de transport préférentielles dans le sol, telles que la présence de fissures, de canaux de vers ou de canaux radiculaires pourris et vivants n'ont pas été prises en compte dans ce modèle.

Le cas de la modélisation implique une source H $_{2 d'}$ origine profonde ; le gaz est donc supposé s'échapper vers le haut dans les sédiments sus-jacents et subir ensuite les interactions gaz-sol dans l'horizon du sol. La source est représentée par un point source au bas du domaine de modélisation, où le gaz s'injecte en raison du surplus de pression et le dihydrogène pénètre dans la matrice poreuse du domaine, les conditions aux limites en fonction du temps sont présentées sur la figure A1.



Fig. A1

Signal au point de fuite de la source. A. Source permanente. B. Source périodique avec une émission par jour. C. Source périodique avec quatre émissions par jour.

Pour les calculs numériques rapportés ici, la perméabilité utilisée est de 10 Da (ou 10^{-11} m²), appropriée pour un sol moyennement perméable. Des perméabilités plus faibles devraient entraîner des effets moindres.

Les principaux paramètres physiques utilisés dans le modèle sont répertoriés dans le tableau A1 .

Tableau A1 Valeurs de paramètres utilisées dans le modèle.

Les références

- Abrajano TA, Sturchio NC, Bohlke JK, Lyon GL, Poreda RJ, Stevens CM. 1988. Suintements de méthanehydrogène, Ophiolite de Zambales, Philippines: origine profonde ou peu profonde? *Géologie chimique* 71 (1-3): 211–22. DOI: 10.1016 / 0009-2541 (88) 90116-7.
- Auer LH, Rosenberg ND, Birdsell KH, Whitney EM. 1996. Les effets du pompage barométrique sur le transport des contaminants. *Journal of Contaminant Hydrology* 24 (2): 145–166.
- Brunet F. 2019. Production hydrothermale de H 2 et de magnétite à partir de scories d'acier: une approche géo-inspirée basée sur la serpentinisation de l'olivine. *De face. Earth Sci.* 7. DOI: 10.3389 / Feart.2019.00017.
- Cartwright J, Santamarina C. 2015. Caractéristiques sismiques des tuyaux d'échappement de fluide dans les bassins sédimentaires: implications pour la genèse des tuyaux. *Mar. Petroleum Geol.* 65: 126e140.
- Charlou JL, Donval JP, Fouquet Y, Jean-Baptiste P, Holm N. 2002. Géochimie des fluides d'évent à haute teneur en H₂ et CH₄ issus de roches ultramafiques du champ hydrothermal Rainbow (36 ° 14'N, MAR). *Chemical Geology* 191 (4): 345–59.
- Charlou JL, Donval JP, Konn C, Ondreas H, Fouquet Y, Jean-Baptiste P, *et al*. 2010. Production et flux élevés de H₂ et CH₄ et preuve d'une synthèse d'hydrocarbures abiotiques par serpentinisation dans

des systèmes hydrothermaux ultramafiques sur la dorsale médio-atlantique. Série de monographies géophysiques 188. Washington DC: Union géophysique américaine.

 Conrad R, Seiler W. 1980. Contribution de la production d'hydrogène par fixation biologique de l'azote au bilan hydrogène global. *Journal of Geophysical Research Oceans* 85: 5493-5498.

- Deronzier JF, Giouse H. 2020. Vaux-en-Bugey (Ain, France): le premier champ de gaz produit en France, offrant des enseignements sur l'hydrogène naturel en sous-sol? *BSGF Earth Sci. Taureau.* 5: 191. DOI: 10.1051 / bsgf / 2020005.
- Deville E, Prinzhofer A. 2016. L'origine des suintements de gaz naturel riches en N $_2$ -H $_2$ -CH $_4$ dans un

contexte ophiolitique: Une étude majeure des gaz nobles sur les suintements de fluides en Nouvelle-Calédonie. *Chem. Geol.* 440: 139–47.

- Dominguez A, Bories S, Prat M. 2000. Croissance des grappes de gaz par diffusion de solutés dans des milieux poreux. Expériences et simulation d'automates sur réseau de pores. *Journal international de l'écoulement multiphase* 26 (12): 1951–1979.
- Fauria K, Rempel A. 2011. Invasion de gaz dans des milieux poreux non consolidés saturés d'eau: implication pour les réservoirs d'hydrates de gaz. EPSL 312: 188–193. DOI: 10.1016 / j.epsl.2011.09.042.
- Firstov PP, Shirokov VA. 2005. Dynamique de l'hydrogène moléculaire et sa relation avec les processus de déformation sur le site d'essai géodynamique de Petropavlovsk-Kamchatskii: preuves d'observations en 1999–2003. *Geochemistry International*. 43 (11): 1056-1064. [Traduit de *Geokhimiya* 2005 (11): 1151– 1160].
- Freeze RA, Cherry JA. 1979. Eaux souterraines. NJ: Prentice Hall, 604 p.
- Gay A, Lopez M, Cochonat P, Levaché D, Sermondadaz G, Seranne M. 2006. Evidences de migration de fluide précoce à tardive à partir d'un chenal turbiditique du Miocène supérieur révélées par sismique 3D couplée à un échantillonnage géochimique dans les poches des fonds marins, Basin Congo V 23 (3): 387–399. DOI: 10.1016 / j.marpetgeo.2006.02.004.
- Guélard J, Beaumont V, Rouchon V, Guyot F, Pillot D, et al. 2017. Natural H 2 au Kansas. Origine profonde ou peu profonde? *Geochem. Geophys. Geosyst.* 18 (5): 1841–65.
- Klein F, Tarnas J, Bach W. 2020. Sources abiotiques d'hydrogène moléculaire sur Terre. Éléments 16: 19– 24.
- Larin NV, Larin VN, Gorbatikov AV. 2010. Structures circulaires, causées par l'infiltration profonde d'hydrogène. Dégazage de la Terre: géotectonique, géodynamique, fluides profonds, pétrole et gaz, hydrocarbures et vie. Conférence russe avec participation internationale consacrée au 100e anniversaire de l'académicien PN Kropotkine, 282 p. (en russe)
- Larin N, Zgonnik V, Rodina S, Deville E, Prinzhofer A, Larin VN. 2014. Infiltration d'hydrogène moléculaire naturel associée à des dépressions superficielles arrondies sur le craton européen en Russie. *Recherche sur les ressources naturelles* 24 (3): 369–83.
- Lazik D, Ebert S, Neumann PP, Bartholmai M. 2016. Mesure de longueur caractéristique d'une anomalie de gaz souterraine - Approche de surveillance pour les distributions de chemin d'écoulement hétérogènes. *Journal international de contrôle des gaz à effet de serre* 47: 330–341.
- Li X, Yortsos YC. 1995. Théorie de la croissance de bulles multiples dans les milieux poreux par diffusion de soluté. Chemical Engineering Science 50 (8): 1247–1271.
- Lopez-Lazaro C, Bachau P, Moretti I, Ferrando N. 2019. Solubilité de l'hydrogène dans des solutions aqueuses de NaCl: de la simulation moléculaire à l'équation d'état. *BSGF*. DOI: 10.1051 / bsgf / 2019008
- Mahabadi N, Zheng X, Yun TS, van Paassen L, Jang J. 2018. Migration et piégeage de bulles de gaz dans des milieux poreux: simulation à l'échelle des pores. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth* 123: 1060–1071. DOI: 10.1002 / 2017JB015331.
- Maia A, Cartwright J, Andersen E. 2016. Système de plomberie peu profond déduit de l'analyse spatiale du tableau de pockmark. *Marine and Petroleum Geology* 77: 865–881. DOI: 10.1016 / j.marpetgeo.2016.07.029.
- Mayhew LE, Ellison ET, McCollom TM, Trainor TP, Templeton AS. 2013. Génération d'hydrogène à partir de réactions eau-roches à basse température. *Nature Geoscience* 6: 478–484. DOI: 10.1038 / ngeo1825.
- Miller HM, Mayhew LE, Ellison ET, Kelemen P, Kubo M, Templeton AS. 2017. Production d'hydrogène à basse température lors de l'hydratation expérimentale de la dunite partiellement serpentinisée. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 209: 161–183. DOI: 10.1016 / j.gca.2017.04.022.
- Millington RJ, Quirk JP. 1961. Perméabilité des solides poreux. Transactions de la société Faraday 57: 1200-1207.

- Monnin C, Chavagnac V, Boulart C, Ménez B, Gérard M, Gérard E, *et al*. 2014. Chimie des fluides du système hydrothermal hyperalcalin à basse température de Prony Bay (Nouvelle-Calédonie). *Biogeosciences* 11 (20): 5687-5706. DOI: 10.5194 / bg-11-5687-2014.
- Myagkiy A, Brunet F, Popov C, Krüger R, Guimarães H, Charlet L, *et al* . 2020. Dynamique de H ₂ dans le

sol d'une zone émettrice de H2 (Bassin de São Francisco, Brésil): quantification de l'absorption microbienne et modélisation du transport réactif. *Géochimie appliquée* 212. DOI: 10.1016 / j.apgeochem.2019.104474.

- Neal C, Stanger G. 1983. Génération d'hydrogène à partir des roches mères du manteau en Oman. Earth and Planetary Science Letters 66: 315–320.
- Nivin VA, Pukha VV, Lovchikov AV, Rakhimov RG. 2016. Modifications de la concentration d'hydrogène moléculaire dans une mine souterraine (gisement de métaux rares de Lovozero, péninsule de Kola). *Doklady Earth Sciences* 471 (2): 1261–1264.
- Noel J, Godard M, Oliot E, I Martinez. 2018. Preuve du piégeage polygénique du carbone dans l'ophiolite d'Oman: étude pétro-structurale, géochimique et isotopique du carbone et de l'oxygène des carbonates hébergés par la harzburgite Wadi Dima (massif de Wadi Tayin, Sultanat d'Oman). *Lithos* 323: 218-237.
- Petrie E. 2014. Résistance de la roche des lithologies du phoque caprock: preuve de la rupture du sceau par le passé, migration des fluides et analyse de l'interface du joint de réservoir dans l'affleurement et le sous-sol. Thèse de Dissertation, Utah State University, Logan, Utah, 208 p.
- Prinzhofer A, Deville E. 2015. Hydrogène naturel. La prochaine révolution énergétique? Paris: Belin.
- Prinzhofer A, Cisse CST, Diallo AB. 2018. Découverte d'une importante accumulation d'hydrogène naturel à Bourakebougou (Mali). Int. J. Hydrogen Energy 43: 19315–26.
- Prinzhofer A, Moretti I, Françolin J, Pacheco C, D'Agostino A, Werly J, *et al*. 2019. Émission continue d'hydrogène naturel des bassins sédimentaires: l'exemple d'une structure brésilienne émettrice de H2. *Journal international de l'énergie hydrogène* 44 (12): 5676-5685. DOI: 10.1016 / j.ijhydene.2019.01.119.
- Sano Y, Urabe A, Wakita H, Wushiki H. 1993. Origine des suintements d'hydrogène-azote gazeux, Oman. Géochimie appliquée 8: 1–8.
- Sato M, Sutton AJ, McGee KA, Russel-Robinson S. 1986. Surveillance de l'hydrogène le long des failles de San Andreas et Calaveras dans le centre de la Californie en 1980–1984. *Journal of Geophysical Research* 91 (B12): 12315–12326.
- Semlitsch RD. 2000. La taille importe: la valeur des petites zones humides isolées. Natl Wetl Newsl 22: 5– 6.
- Sherwood Lollar B, Onstott TC, Lacrampe-Couloume G, Ballentine CJ. 2014. La contribution de la lithosphère continentale précambrienne à la production de globa H 2 . Nature 516: 379-382. DOI: 10.1038 / nature14017 .
- Sibson RH. 2003. Contrôles des défauts fragiles sur la surpression maximale durable dans différents régimes tectoniques. *Bulletin AAPG* 87: 901–908. DOI: 10.1306 / 01290300181.
- Terzaghi K, Peck RB. 1968. Mécanique des sols dans la pratique de l'ingénierie. New York: John Wiley & Sons, 729 p.
- Vacquand C, Deville E, Beaumont V, Guyot F, Sissmann O, Pillot D, *et al*. 2018. Réduction des infiltrations de gaz dans les complexes ophiolitiques: preuves d'origines multiples des mélanges de gaz H₂ -CH₄ -N
 - 2. Geochimica Cosmochimica Acta 223: 437–461.
- Welhan JA, Craig H. 1979. Le méthane et l'hydrogène dans les fluides hydrothermaux du Pacifique Est augmentent. *Geophys. Res. Lett.* 6: 829–831.
- Zgonnik V. 2020. L'apparition et la géoscience de l'hydrogène naturel: un examen complet. Earth Science Review 203. DOI: 10.1016 / j.earscirev.2020.103140.
- Zgonnik V, Beaumont V, Deville E, Larin N, Pillot D, Farrell K. 2015. Preuves de suintements d'hydrogène naturel associés à des structures subsidentes arrondies: les baies de la Caroline (Caroline du Nord, États-Unis). *Programme. Planète Terre. Sci.* 2: 31. DOI: 10.1186 / s40645-015-0062-5.

Citez cet article comme suit: Myagkiy A, Moretti I, Brunet F. 2020. Distribution spatiale et temporelle de la concentration souterraine de H $_2$ dans les soi-disant «cercles de fées»: aperçu

Tous les tableaux

Tableau A1 Valeurs de paramètres utilisées dans le modèle.

↑ Dans le texte

Tous les chiffres

Fig. 1



Synthèse des caractéristiques d'émissions du cercle féerique. A. Un cercle de fées au Brésil montrant comment la végétation est affectée. B. Variabilité dans le temps sur 5 semaines pour un capteur donné dans la structure surveillée au Brésil. Voir Prinzhofer *et al.* (2019) etMyagkiy *et coll.* (2020) pour plus de détails sur cette affaire. C. Variations journalières pour 6 capteurs installés sur la structure surveillée au Brésil montrant la période de 24 h. D. Variabilité de taille, des structures émettrices aux USA (modifiée dePrinzhofer et Deville, 2015). E. Deux profils à travers une structure montrant la variabilité spatiale de la valeur de concentration de H₂ entre le centre et

le bord de la structure, lac Podowoye, Russie. Ces valeurs n'ont pas été prises en même temps mais sur 2 jours. Modifié de Larin *et al.* (2014) . F. Profil montrant un exemple de variation de concentration de [H $_2$] en fonction de la profondeur aux

États-Unis (modifié d'après Zgonnik et al. , 2015).

↑ Dans le texte

Fig. 2



Fuite continue de H $_2$ avec la source à 30 m et sans bactéries actives dans le sol. La perméabilité aux gaz du sol est de 10 Da. A. Instantanés d'une propagation H $_2$. La couleur du bleu au rouge indique le [H $_2$] du gaz de propagation normalisé à la source [H $_2$]. B. Distribution [H $_2$] en fonction du temps à 80 cm de profondeur.

↑ Dans le texte

Fig. 3



Fuite continue de H $_2$ avec la source à 30 m, compte tenu des bactéries actives consommatrices de H $_2$ dans le sol. La perméabilité aux gaz du sol est de 10 Da. A. Instantanés d'une propagation H $_2$. B. Distribution [H $_2$] en fonction du temps à 80 cm de profondeur.

Dans le texte

Fig. 4

Emission d'impulsions de H $_2$ depuis la source à 30 m de profondeur. A. Instantanés de la propagation d'une impulsion de gaz H $_2$ dans le temps. B. Distribution [H $_2$ %] le



long d'une ligne verticale passant par le point source (voir ligne blanche sur l' instantané t = 0 de la figure 4A). Notez que le [H $_{2}$] mesuré à une profondeur

donnée variera fortement au cours du cycle de propagation des impulsions. C. Distribution [H $_2$] à 80 cm de profondeur en fonction du temps. Cas de référence:

pas de bactérie active, K = 10 Da, le surplus de pression du gaz à la source est de 2 bar, profondeur de la source = 30 m.

Fig. 5



Enveloppe maximale [H $_2$] à 80 cm de profondeur en fonction de la pression de la

source (0,2, 0,5 et 1 MPa) pour une source de 30 mètres (A) sans bactéries actives et (B) avec des bactéries actives.

↑ Dans le texte

Fig. 6

A. Instantanés d'une propagation d'impulsions de gaz porteurs de H $_{\rm 2}$ comme sur la

figure 4 mais avec l'introduction d'une zone de faible perméabilité (0,01 Da) simulant une hétérogénéité de sol riche en argile au centre de la structure. Les bactéries actives sont considérées ici. B. Enveloppe [H $_{2}$] maximum à 80 cm de profondeur.

↑ Dans le texte

Fig. 7



Concentration au centre et en bordure de la structure en cas d'hétérogénéité au centre avec K = 0,01 Da et bactéries actives. A. Émission toutes les 24 h. B. Émission toutes les 6 h.

↑ Dans le texte



Fig. A1

Signal au point de fuite de la source. A. Source permanente. B. Source périodique avec une émission par jour. C. Source périodique avec quatre émissions par jour.

🛧 Dans le texte

BSGF - Bulletin des sciences de la Terre

Rédacteur en chef: Laurent JOLIVET - Comité de rédaction ISSN: 0037-9409 - eISSN: 1777-5817 © SGF (Société Géologique de France)



Mentions légales Contacts