



UNIVERSITAT^{DE}
BARCELONA

Tomografia elèctrica a escala de laboratori: investigació del sistema roca-salmorra-CO₂

David Bosch Ros

ADVERTIMENT. La consulta d'aquesta tesi queda condicionada a l'acceptació de les següents condicions d'ús: La difusió d'aquesta tesi per mitjà del servei TDX (www.tdx.cat) i a través del Dipòsit Digital de la UB (diposit.ub.edu) ha estat autoritzada pels titulars dels drets de propietat intel·lectual únicament per a usos privats emmarcats en activitats d'investigació i docència. No s'autoritza la seva reproducció amb finalitats de lucre ni la seva difusió i posada a disposició des d'un lloc aliè al servei TDX ni al Dipòsit Digital de la UB. No s'autoritza la presentació del seu contingut en una finestra o marc aliè a TDX o al Dipòsit Digital de la UB (framing). Aquesta reserva de drets afecta tant al resum de presentació de la tesi com als seus continguts. En la utilització o cita de parts de la tesi és obligat indicar el nom de la persona autora.

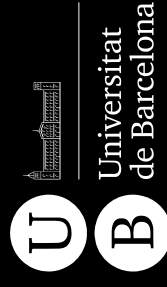
ADVERTENCIA. La consulta de esta tesis queda condicionada a la aceptación de las siguientes condiciones de uso: La difusión de esta tesis por medio del servicio TDR (www.tdx.cat) y a través del Repositorio Digital de la UB (diposit.ub.edu) ha sido autorizada por los titulares de los derechos de propiedad intelectual únicamente para usos privados enmarcados en actividades de investigación y docencia. No se autoriza su reproducción con finalidades de lucro ni su difusión y puesta a disposición desde un sitio ajeno al servicio TDR o al Repositorio Digital de la UB. No se autoriza la presentación de su contenido en una ventana o marco ajeno a TDR o al Repositorio Digital de la UB (framing). Esta reserva de derechos afecta tanto al resumen de presentación de la tesis como a sus contenidos. En la utilización o cita de partes de la tesis es obligado indicar el nombre de la persona autora.

WARNING. On having consulted this thesis you're accepting the following use conditions: Spreading this thesis by the TDX (www.tdx.cat) service and by the UB Digital Repository (diposit.ub.edu) has been authorized by the titular of the intellectual property rights only for private uses placed in investigation and teaching activities. Reproduction with lucrative aims is not authorized nor its spreading and availability from a site foreign to the TDX service or to the UB Digital Repository. Introducing its content in a window or frame foreign to the TDX service or to the UB Digital Repository is not authorized (framing). Those rights affect to the presentation summary of the thesis as well as to its contents. In the using or citation of parts of the thesis it's obliged to indicate the name of the author.

Tomografia Elèctrica
a escala de laboratori:
investigació del sistema
roca-salmorra-CO₂

David Bosch Ros
Tesi Doctoral

Directors:
Dr. Juanjo Ledo
Dra. Pilar Queralt



Universitat
de Barcelona

Institut de Recerca Geomodels
Departament de Geodinàmica i Geofísica
Facultat de Geologia
Universitat de Barcelona



geomodels
Institut de Recerca



Tomografia elèctrica a escala de laboratori: investigació del sistema roca-salmorra-CO₂

Memòria presentada per **David Bosch Ros** per optar al títol de Doctor dins del programa de doctorat de Ciències de la Terra de la Universitat de Barcelona. Aquesta tesi s'ha realitzat sota la direcció del **Dr. Juanjo Ledo** (Universitat de Barcelona) i la **Dra. Pilar Queralt** (Universitat de Barcelona).

David Bosch Ros

Febrer 2015

Dr. Juanjo Ledo

Director i tutor de la tesi

Dra. Pilar Queralt

Directora de la tesi

Aquesta tesi s'ha pogut realitzar gràcies a la beca APIF (Ajuts de Personal Investigador en Formació) de la Universitat de Barcelona i a la beca FPU (Formación de Profesorado Universitario) del Ministerio de Educación, Cultura y Deporte.

Els següents projectes, institucions i grups d'investigació han finançat part d'aquesta tesi:

Desarrollo y adaptación de técnicas electromagnéticas: caracterización de almacenes geológicos (Campo de Ayoluengo) (FBG305656)

Desarrollo y adaptación de técnicas electromagnéticas: control y seguimiento de almacenes geológicos (Campo de Ayoluengo) (FBG305658)

Proyecto PIER-CO2 (CGL2009-07604)

Departament de Geodinàmica i Geofísica (Universitat de Barcelona)

Geomodels Research Institute

Laboratoire Geosciences Montpellier (Université Montpellier II)

“no hay cuchara”

Agraïments

La realització d'aquesta tesi ha suposat per a mi una experiència de vida que ha ressonat en molts àmbits de la meva existència. Em sento molt afortunat d'haver pogut passar uns anys acompanyat de bones persones, fent allò que més m'agrada: fer-me preguntes i buscar respostes.

Moltíssimes gràcies per regalar-me aquesta oportunitat, Juanjo i Pilar. Sou un exemple de comprensió, respecte, paciència i maduresa. Gràcies per, quan feia falta, confiar més en mi que jo mateix, i per llençar-me una escala al cap quan les branques no em deixaven veure el bosc...

Gràcies Alex M. per mostrar-me sempre noves branques que no havia vist, i per embolicar-m'hi, sense voler, amb un “no t'he dit res”...

“– Hola, que hi és en Fabian?”. Fabian. Saps que ompliria deu pàgines si t'hagués d'agraïr tot el que altruísticament has fet per mi. Gràcies per les intenses hores al laboratori aplicant gel conductor a aquella marga descarada, i gràcies per les incomputables hores al despatx, questionant-nos fins i tot el que hi ha escrit al nostre carnet d'identitat. No ho oblidaré mai.

Gràcies als membres de l'EXES (Juanjo, Pilar, Alex, Anna M., Oriol, Fabian, Joan, Xènia, Lena, Perla i Eloi) per les aventures viscudes i per no haver-me fet mai cap “broma” de les vostres... i gràcies als companys de despatx (Xènia, Fabian, Anna Q., Lena, Eloi C., Eloi V.) per haver-me tractat tan bé i per no haver cobert la meva taula d'articles, revistes o roques...

Gràcies a l'Institut de Recerca Geomodels per acollir-m'hi com a membre i pel bon ambient de treball. Gracias Pablo M. por dejarme usar tu Máquina para los cálculos.

Muchísimas gracias Linda L. por tu amabilidad, tu altruismo, tus grandes consejos, tu rigor, tu paciencia y tu entusiasmo.

Merci beaucoup aux membres du Laboratoire Geosciences Montpellier. Thank you very much, Philippe G., for trusting us and lending us the cell, and also for allowing me to haunt the Lab for two months. Thanks for the KISS rule and for your mental clarity and insight. Thank you very much Richard L., for your patience with a non-initiated in the Misteries of Mechanical Engineering. I also owe a lot to you.

Moltes gràcies al Departament de Geodinàmica i Geofísica, per totes les facilitats que m'heu donat per a muntar des de zero un laboratori al soterrani. Gràcies als membres que utilitzeu el soterrani, per la vostra comprensió i per respectar en tot moment el projecte que tenia entre mans. Gràcies Raimon P. per la campana extractora i per l'aigua Milli-Q. Gracias M^a José por las llaves y la ayuda prestada. Gràcies Joan Ramón, Ana R. i Teresa B., per la paciència que heu tingut amb els temes burocràtics.

Gracias Juan José P. por prestarme y enseñarme a usar la bomba de vacío, una de las piezas clave del sistema experimental. Gracias también por permitirme dejar las muestras en el horno. Gracias Alberto S. por la muestra de arenisca del sondeo INEFC L2.

T'agraeixo enormement, Anna G., els esforços perquè pogués utilitzar el màxim temps possible el Syscal. T'asseguro que cada minut va comptar.

Moltes gràcies, Àlex R., per accedir a trencar-te el cap amb mi sobre les possibilitats de millora del sistema experimental. Ets un crack.

Moltes gràcies als increïbles i únics Geos (Eva, Iria, Aitor, David G., Josep, Alberto, Laia, Alvaro) pels ànims i pels multicumples. Sou els millors.

Muchas gracias Marc G. por tus ideas sobre la escala de color del averno y por aguantar la chapa en Esplugues. Muchas gracias Ana por tus ánimos, llegaron hondo. Gracias Sergio por intentar desmoralizarme –lo único que conseguiste fue espolearme todavía más!

També vull donar les gràcies a la meva família, però especialment a la meva mare i a la meva tieta, que, fent un esforç titànic, ens han ajudat a saltar a la Realitat amb un matalàs d'Amor sota els peus. Us estaré sempre agraït. Gràcies al Papus i a la Fermentadora, també, per l'humor i la complicitat que ens uneix.

Per acabar vull donar-te les gràcies de tot cor, Eva, per donar-ho tot i més, inclús quan ja no ens quedaven forces... sense tú, la vida no seria tan bonica i apassionant.

Índex

Pàg.

Llista de Figures	v
Llista de Taules	xiii
Introducció.....	xv
Resum	xix
1 Context científic, antecedents i objectius.....	1
1.1 Captura i emmagatzematge geològic de CO ₂	1
1.1.1 Reservoirs de CO ₂	2
1.1.2 Mecanismes de confinament.....	2
1.1.3 Tècniques de monitoreig.....	4
1.2 Aplicacions de la tomografia elèctrica.....	6
1.3 Motivació i objectius	10
2 Resistivitat elèctrica de roques poroses	13
2.1 Conductivitat electrolítica.....	13
2.2 Conductivitat superficial.....	16
2.3 Petrofísica del sistema roca-salmorra-CO ₂	18
2.3.1 Saturació de CO ₂	18
2.3.2 Dissolució de CO ₂	20
3 Tomografia de Resistivitat Elèctrica a escala de laboratori	23
3.1 La Tomografia de Resistivitat Elèctrica	23
3.1.1 Procés de mesura	24
3.1.2 Factor geomètric i resistivitat aparent.....	26
3.2 Reptes de la ERT a escala de laboratori.....	27
3.2.1 Electrodes: morfologia, material, i distribució	27
3.2.2 Seqüència de mesures.....	30
3.2.3 Paràmetres experimentals: intensitat injectada i voltatge mesurat	32
3.2.4 Qualitat de les dades i caracterització de l'error	33
3.2.4.1 Coeficient de variació	33
3.2.4.2 Error recíproc relatiu.....	34

3.2.4.3	Models d'error global	35
3.3	Validació de la ERT a escala centimètrica	36
3.3.1	Caracterització d'anomalies en cil·lindres d'argila	37
3.3.2	Detecció d'una veta en un gres miocè	40
4	Sistema experimental d'alta pressió	43
4.1	Descripció general i funcionament	44
4.2	Cel·la de confinament	46
4.3	Circuits i connexions	48
4.4	Tub de Viton	51
5	Inversió	55
5.1	Inversió amb R3t	55
5.1.1	Funció objectiu	56
5.1.2	Mètode d'inversió	58
5.2	Inversió time-lapse	60
5.3	Malla d'inversió	62
5.3.1	Geometria	62
5.3.2	Discretització de la malla	64
5.3.3	Modelització de la cel·la de confinament	67
5.3.4	Làmines de contacte	68
5.4	Proves sintètiques	70
6	Investigació del sistema roca-salmonella-CO ₂	75
6.1	Materials	76
6.2	Experiment I: Quantificació de la saturació de CO ₂ a pressió atmosfèrica	78
6.2.1	Protocol de l'experiment I	78
6.2.2	Efecte del CO ₂ en les dades d'ERT	80
6.2.3	Models de resistivitat	90
6.2.4	Quantificació de la saturació de CO ₂	100
6.2.4.1	Càlcul de l'exponent de saturació	100
6.2.4.2	Models de saturació de CO ₂	101
6.2.5	Discussió	106
6.2.5.1	Laterals resistents dels models	106
6.2.5.2	Variació aparent de la conductivitat de la salmorra	111
6.2.6	Conclusions de l'experiment I	115
6.3	Experiment II: Monitoreig de la dissolució de CO ₂ a alta pressió	116
6.3.1	Experiments previs	116

6.3.1.1	Caracterització de la mostra totalment saturada amb salmorra B.....	116
6.3.1.2	Determinació de la conductivitat superficial.....	118
6.3.2	Protocol de l'experiment II.....	121
6.3.3	Efecte de la dissolució del CO ₂ en les dades de l'experiment II	122
6.3.4	Quantificació del quocient de resistivitats de la salmorra.....	127
6.3.5	Models de resistivitat	131
6.3.6	Discussió.....	139
6.3.6.1	Quocient de resistivitats de la salmorra.....	139
6.3.6.2	Aspectes rellevants del monitoreig de CO ₂ amb ERT.....	141
6.3.7	Conclusions de l'experiment II	142
7	Conclusions i perspectives futures	143
	Referències.....	149
	Apèndix A. Càlcul d'errors.....	161
A.1	Error de les dades de la inversió de la diferència.....	161
A.2	Error de la porositat.....	162
A.3	Error de l'exponent de cimentació.....	162
A.4	Error de la resistivitat aparent	163
A.5	Error del quocient de resistències	163
A.6	Error de les dades de la inversió modificada del quocient	164
	Apèndix B. Resistivitat de les làmines dels casos investigats a l'experiment I	165
	Apèndix C. Errors recíprocs relatius	167
C.1	Errors de les dades de l'experiment I.....	167
C.2	Errors de les dades de l'experiment II	168
	Apèndix D. Càlcul numèric del factor geomètric.....	169
	Apèndix E. Càlcul numèric de l'exponent de saturació.....	171
	Publicació	175

Llista de Figures

Pàg.

Fig. 1.1. Esquema del plomall de CO ₂ al voltant del pou d'injecció. El CO ₂ mòbil ha quedat acumulat gràcies al segell impermeable que no permet que segueixi ascendint (confinament estructural). Pel camí on ha circulat el CO ₂ mòbil queda una quantitat de CO ₂ atrapada a la porositat (confinament capil·lar). A la interfase entre el CO ₂ i l'aigua de l'aquífer es produirà confinament per solubilitat (basada en Juanes <i>et al.</i> [2010]).....	3
Fig. 1.2. Velocitat d'ones P i resistivitat elèctrica mesurades en diagrames a la planta pilot d'injecció de CO ₂ de Nagaoka, Japó. Es pot comprovar que la mesura de la resistivitat elèctrica aporta informació molt rellevant per a la quantificació de la saturació de CO ₂ (modificat de Nakatsuka <i>et al.</i> [2010]).....	4
Fig. 2.1. Esquema del fenomen de la doble capa elèctrica. La superfície dels grans està carregada negativament (-), i una capa de cations (+) compensa el dèficit de càrrega (capa de Stern). Una segona capa de cations mòbils envolta la primera, amb una concentració decreixent amb la distància (modificat de Revil <i>et al.</i> , [2013])	16
Fig. 2.2. Esquema simplificat del procés de saturació de CO ₂ d'una roca porosa. a) estadi inicial: la roca està completament saturada de salmorra; b) el CO ₂ s'ha obert camí entre la porositat tot reduïnt la salmorra a una pel·lícula envoltant els grans; c) la pressió d'injecció ha fet que la salmorra quedés reduïda a meniscs als contactes entre grans	18
Fig. 2.3. a) Diagrama de fases del CO ₂ ; b) densitat del CO ₂ ; c) viscositat del CO ₂ i d) solubilitat del CO ₂ en aigua (modificat de Börner <i>et al.</i> , [2013])	22
Fig. 3.1. Esquema d'una mesura individual de tomografia elèctrica. AB: dipol d'injecció. MN: dipol de mesura (modificat de Benson <i>et al.</i> [1983])	25
Fig. 3.2. Representació esquemàtica dels dispositius més utilitzats en ERT a escala de camp i les seves relacions geomètriques. a) Wenner; b) Schlumberger; c) Dipol-dipol	25
Fig. 3.3. Cargols de titani utilitzats com a electrodes. Grau: IV. Diàmetre del cap: 4 mm; rosca: M2	29
Fig. 3.4. Posició dels electrodes respecte a la mostra cil·lindrica.....	29

Fig. 3.5. Representació esquemàtica de la seqüència de mesures, on s'han indicat les regions característiques sobre un conjunt de dades sintètiques calculades per a un cil·indre de resistivitat $10 \Omega \cdot m$	31
Fig. 3.6. Unitat d'adquisició de dades de tomografia elèctrica IRIS Syscal Pro Switch de 10 canals. Consisteix en un transmissor que permet aplicar un voltatge de fins a 800 V, un receptor que pot mesurar simultàniament en 10 canals amb una resolució d'1 μV i un multiplexor que distribueix el corrent pels canals requerits a la seqüència de mesures	32
Fig. 3.7. Exemple gràfic d'aplicació del mètode de caracterització del model d'error global detallat a Mwakanyamale <i>et al.</i> [2012]	36
Fig. 3.8. Configuració de l'experiment amb argila. L'extrem dels cables estava enrotllat al voltant del cap dels claus i el conjunt es segellava amb cola termofusible per donar-li rigidesa. Al fons es poden veure restes dels primers experiments realitzats en margues impermeables.....	37
Fig. 3.9. Resultats principals de les proves efectuades amb cil·lindres d'argila i models resultants de la inversió de les dades adquirides per a cada cas; a) cil·indre d'argil·la; b) amb un forat al mig ple de salmorra conductora (30 g/l NaCl); c) amb un forat ple d'aire; d) amb un forat no centrat ple de salmorra; e) amb un forat no centrat ple d'aire.....	39
Fig. 3.10. Comprovació final dels models de la Figura A.2d i e, on es fa patent que la tomografia havia detectat la presència d'un conducte des del fons del forat fins a l'exterior del cil·indre	40
Fig. 3.11. Model obtingut per a les dades de tomografia adquirides sobre un gres miocè saturat de salmorra molt salina (30 g/l NaCl). a) aspecte exterior del gres amb les plaques de coure adherides; b) interpretació de la veta que travessa la mostra; c) models de resistivitat obtinguts amb ERT. Es pot comprovar que la veta està ben caracteritzada, éssent contínua al llarg de les diferents orientacions del model i passant entre els electrodos corresponents.....	41
Fig. 4.1. Diagrama esquemàtic que inclou els components principals del sistema experimental. V1 – V5: vàlvules d'acer inoxidable. P1, P2: vàlvules de plàstic.....	45
Fig. 4.2. a) Plànol tècnic de la cel·la de confinament cedida pel Laboratoire Geosciences Montpellier (disseny i fabricació: Top Industrie); b) exterior de la cel·la c) interior de la cel·la.....	46
Fig. 4.3. Detall dels èmbols superior (a, b) i inferior (c,d). El patró estriat permet que el fluid es distribueixi per tota la superfície de la roca i hi percoli homogèniament. Els cargols que s'observen als èmbols estan segellant obertures que permeten insertar-hi sensors o connectar-hi tubs	47

Fig. 4.4. Relació entre els èmbols i el tub de Viton que conté la mostra	47
Fig. 4.5. a) Detall del circuit de fluïds superior. Està constituït completament d'acer inoxidable des de l'èmbol fins la vàlvula V1; b) Detall del circuit inferior. Està constituït d'acer inoxidable des de l'èmbol fins la vàlvula V4	48
Fig. 4.6. a) Xeringues de tres cossos amb sortida Luer-Lock TM utilitzades als experiments; b) detall de la vàlvula Luer-lock TM	49
Fig. 4.7. a) Connexió entre el circuit superior de la cel·la i la bomba de buit (VAC). El tub de Teflon que surt de la vàlvula V2 està empalmat amb el tub de silicona S amb una vàlvula de Teflon enganxada al tub de silicona amb resina epoxy (Araldite [®] de la marca Ceys). El tub de silicona està connectat a pressió i assegurat amb una brida al tub que va a la bomba de buit (b)	49
Fig. 4.8. Detall de les connexions directes entre les bombones de gas i la cel·la; a) CO ₂ amb la vàlvula V1; b) N ₂ amb el lateral de la cel·la a través de V5; c) bombones de gas amb els reguladors de pressió de sortida acoblats. Les bombones estan subjectades a la taula amb un sistema que evita que es tombin. Com a mesura addicional de seguretat, els tubs d'acer inoxidable s'asseguren amb brides per evitar una fuetada si la connexió fallés	50
Fig. 4.9. Interior del tub de Viton on es poden veure els electrodes	51
Fig. 4.10. a) Esquema de la integració dels electrodes dins del tub de Viton; b) detall de l'acoblament del cable a l'electrode	52
Fig. 4.11. a) Detall del tub de Viton durant el procés de preparació. Els sis electrodes ja estan col·locats i pintats amb Plasti-dip, esperant a ésser segellats amb resina epoxy (es poden veure els cables recollits i recoberts amb cola termofusible); b) aspecte final exterior del tub de Viton. Es poden veure els 24 cables recollits en un grup pintat amb Plasti-dip per a protegir-los de possibles rascades	53
Fig. 4.12. Detall de la sortida dels 24 cables de la cel·la. El diàmetre intern del tub d'acer inoxidable és d'1.8 mm	54
Fig. 4.13. a) Connexió dels cables a l'adaptador que condueix a l'equip d'adquisició; b) detall de la unió als connectors amb cola termofusible	54
Fig. 5.1. a) Geometria de la malla (tall diametral) b) cel·la de confinament c) tub de Viton d) roca e) làmines de contacte entre la roca i la cel·la. Durant la inversió, les zones b) i c) mantindran la seva resistivitat fixada, mentre que a les zones d) i e) se'ls permetrà variar la seva distribució de resistivitats	63

Fig. 5.2. Diferència relativa entre les respostes de la malla de prismes triangulars molt fina i la malla tetrahèdrica definitiva	65
Fig. 5.3. Vista comparativa de la discretització de la malla molt fina (a) i de la malla definitiva (b).....	65
Fig. 5.4. Model obtingut de la inversió de les respostes generades amb la malla molt fina utilitzant la malla definitiva, assumint un 2% d'error a les respostes a) vista exterior b) tall diametral interior	66
Fig. 5.5. Model obtingut de la inversió de les respostes generades amb la malla molt fina utilitzant la malla definitiva, havent inclòs soroll gaussià aleatori amb $\bar{x}=0$ i $\sigma=0.033$ (aproximadament un 10% de màxima variació) a les respostes a) vista exterior b) tall diametral interior.....	66
Fig. 5.6. Models recuperats invertint les respostes d'un model homogeni de 10 $\Omega\cdot m$ que havien estat generades amb una malla que inclou la cella a) inversió amb una malla que no inclou la cella i b) inversió amb una malla que inclou la cella.....	67
Fig. 5.7. a) Model recuperat pel cas 1 de l'experiment I sense incloure les làmines (contacte perfecte entre la roca i la cel·la); b) Igual que a) però incloent les làmines; c) resistivitat final obtinguda per a les làmines.....	68
Fig. 5.8. a) – e) Talls verticals diametral dels models de la inversió les dades del cas 1 de l'experiment I amb diferents valors inicials de la roca i de les làmines superior i inferior (veure Taula 5.1); f) – j) resistivitat final de les làmines	69
Fig. 5.9. a) – d) Models considerats per a les proves sintètiques (casos 1 a 4 de la Taula 5.2, respectivament). La porositat de la zona superior (z_1) conté CO_2 i salmorra (en proporcions diferents), i la de la zona inferior (z_2) conté exclusivament salmorra; Als models c) i d) hi ha hagut dissolució de CO_2 a la salmorra. e) – h): models corresponents a la inversió de les respostes generades pels models a) – d)	71
Fig. 5.10. Talls verticals dels models obtinguts mitjançant la inversió de les respostes del cas 1 (Fig. 5.9a) considerant diferents valors inicials del paràmetre de regularització α . a) – e): amb un model inicial de 100 $\Omega\cdot m$, f) – j): amb un model inicial de 10 $\Omega\cdot m$. El cas b) ha presentat inestabilitat numèrica	72
Fig. 6.1. Mostra de gres de Fontainebleau utilitzada en aquest treball. Les taques grises són una tinció residual superficial de la pintura de plata utilitzada en proves preliminars.....	76

Fig. 6.2. Dades dels casos investigats a l'experiment I. Els punts es corresponen a les mesures normals i els cercles a les recíproques, en color negre les que han estat seleccionades per a la inversió i en vermell les que n'han estat excloses. a) cas 1 (0% CO ₂), b) cas 2 (35% CO ₂), c) cas 3 (55% CO ₂), d) cas 4 (71% CO ₂).....	81
Fig. 6.3. Dades del cas 1 (0% CO ₂) de l'experiment I. Els punts es corresponen a les mesures normals i els cercles a les recíproques, en color negre les que han estat seleccionades per a la inversió i en vermell les que n'han estat excloses.....	82
Fig. 6.4. Dades del cas 2 (35% CO ₂) de l'experiment I. Els punts es corresponen a les mesures normals i els cercles a les recíproques, en color negre les que han estat seleccionades per a la inversió i en vermell les que n'han estat excloses.....	83
Fig. 6.5. Dades del cas 3 (55% CO ₂) de l'experiment I. Els punts es corresponen a les mesures normals i els cercles a les recíproques, en color negre les que han estat seleccionades per a la inversió i en vermell les que n'han estat excloses.....	84
Fig. 6.6. Dades del cas 4 (71% CO ₂) de l'experiment I. Els punts es corresponen a les mesures normals i els cercles a les recíproques, en color negre les que han estat seleccionades per a la inversió i en vermell les que n'han estat excloses.....	85
Fig. 6.7. Resistivitats aparents de les dades dels quatre casos investigats (cas 1: 0% CO ₂ ; cas 2: 35% CO ₂ ; cas 3: 55% CO ₂ ; cas 4: 71% CO ₂).....	87
Fig. 6.8. Percentatge d'ocupació de cada electrode pels quatre casos investigats a l'experiment I. L'electrode 6 ha estat eliminat del càlcul perquè no feia bon contacte.....	88
Fig. 6.9. a) Pseudo-perfils de resistivitat dels quatre casos de l'experiment I; b) esquema de la configuració d'electrodes seleccionada, exemplificada pel quart nivell d'electrodes.....	89
Fig. 6.10. Model de resistivitat obtingut pel cas 1 (0% CO ₂) de l'experiment I. Als talls verticals (AB i CD) s'indica la posició dels electrodes.....	91
Fig. 6.11. Model de resistivitat obtingut pel cas 2 (35% CO ₂) de l'experiment I. Als talls verticals (AB i CD) s'indica la posició dels electrodes	92
Fig. 6.12. Model de resistivitat obtingut pel cas 3 (55% CO ₂) de l'experiment I. Als talls verticals (AB i CD) s'indica la posició dels electrodes	93
Fig. 6.13. Model de resistivitat obtingut pel cas 4 (71% CO ₂) de l'experiment I. Als talls verticals (AB i CD) s'indica la posició dels electrodes	94

Fig. 6.14. Ajust de les respostes (punts vermells) del model a les dades (cercles verds) i diferència relativa entre respostes i dades (punts negres) pel cas 1 (0% CO ₂) de l'experiment I	96
Fig. 6.15. Ajust de les respostes (punts vermells) del model a les dades (cercles verds) i diferència relativa entre respostes i dades (punts negres) pel cas 2 (35% CO ₂) de l'experiment I	97
Fig. 6.16. Ajust de les respostes (punts vermells) del model a les dades (cercles verds) i diferència relativa entre respostes i dades (punts negres) pel cas 3 (55% CO ₂) de l'experiment I	98
Fig. 6.17. Ajust de les respostes (punts vermells) del model a les dades (cercles verds) i diferència relativa entre respostes i dades (punts negres) pel cas 4 (71% CO ₂) de l'experiment I	99
Fig. 6.18. a) Representació gràfica de l'índex de resistivitat en funció de la saturació de salmorra i de la recta de regressió que passa pel punt (1,1) utilitzada per a determinar l'exponent de saturació (veure Apèndix E) b) configuració utilitzada per a estimar la resistència efectiva de la roca	101
Fig. 6.19. Model de saturació de CO ₂ obtingut pel cas 2 (35% CO ₂) de l'experiment I, en base als models de les Figures 6.6 i 6.7. Als talls verticals (AB i CD) s'indica la posició dels electrodes	103
Fig. 6.20. Model de saturació de CO ₂ obtingut pel cas 3 (55% CO ₂) de l'experiment I, en base als models de les Figures 6.6 i 6.8. Als talls verticals (AB i CD) s'indica la posició dels electrodes	104
Fig. 6.21. Model de saturació de CO ₂ obtingut pel cas 4 (71% CO ₂) de l'experiment I, en base als models de les Figures 6.6 i 6.9. Als talls verticals (AB i CD) s'indica la posició dels electrodes	105
Fig. 6.22. Variació relativa de la resistivitat de la salmorra A (30 g/l NaCl) en funció de la temperatura respecte a la resistivitat corresponent a la temperatura de l'experiment (18°C)	111
Fig. 6.23. a) – d) Models de partida; e) – h) models recuperats mitjançant la inversió de les respostes calculades a partir dels models de partida; i) - l) quocient de models (e/a, f/b, g/c i h/d)	113
Fig. 6.24. a) Model de la Figura 6.23b; b) model de la Figura 6.23f i c) model obtingut pel cas 2 de l'experiment I (veure Figura 6.11 –tall AB)	114
Fig. 6.25. a) Dades del cas amb la mostra totalment saturada de salmorra B (0.3 g/l NaCl); b) resistivitats aparents i c) model obtinguts per inversió	117

Fig. 6.26. Evolució de la pressió de CO_2 al llarg de l'experiment previ d'alta pressió	119
Fig. 6.27. Dades de la primera i l'última mesura de l'experiment II (35% CO_2). S'observa una clara disminució de la resistència entre l'inici i el final de l'experiment	123
Fig. 6.28. Quocient de resistències per les nou mesures del primer dia de l'experiment II. Hi ha marcats els cicles de la seqüència de mesures. Es mostra una ampliació per poder apreciar la tendència del quocient a augmentar amb el temps. La línia vermella marca un valor del quocient igual a 1	125
Fig. 6.29. Quocient de resistències per les set mesures representatives de l'experiment II (una cada dia). Hi ha marcats els cicles de la seqüència de mesures. Es mostra una ampliació per poder apreciar la tendència del quocient a augmentar amb el temps. La línia vermella marca un valor del quocient igual a 1	126
Fig. 6.30. a) Quocient de resistències calculat en base a les respostes dels models b) i c)	127
Fig. 6.31. Quocient de resistències de les configuracions que presentaven un error del quocient inferior al 2% en totes les mesures de l'experiment II. En negre es representa la mitjana geomètrica del quocient per a cada mesura	129
Fig. 6.32. Quocient de resistències local en funció de la saturació de salmorra i del quocient entre les resistivitats de la salmorra segons l'equació 6.12, assumint $q \approx 10$	130
Fig. 6.33. Talls verticals diametral dels models de resistivitat per a les vuit mesures representatives de l'experiment II, pels tres mètodes d'inversió <i>time-lapse</i> ; a) – h): inversions independents; i) – o): inversió de la diferència; p) – v): inversió modificada del quocient	133
Fig. 6.34. Talls verticals diametral del quocient de models de l'experiment II, pels tres mètodes d'inversió <i>time-lapse</i>	135
Fig. 6.35. Ajust de les respostes (punts vermells) dels models a les dades (cercles verds) i diferència relativa entre respostes i dades (punts negres) pels models obtinguts per a la primera mesura de l'experiment II	137
Fig. 6.36. Ajust de les respostes (punts vermells) dels models a les dades (cercles verds) i diferència relativa entre respostes i dades (punts negres) pels models obtinguts per a l'última mesura de l'experiment II	138
Fig. B.1. Làmines superior i inferior dels quatre casos investigats a l'experiment I a) cas 1 (0% CO_2); b) cas 2 (35% CO_2); c) cas 3 (55% CO_2); d) cas 4 (71% CO_2)	165

Fig. C.1. Error recíproc relatiu de les dades dels quatre casos investigats a l'experiment I. a) cas 1 (0% CO₂), b) cas 2 (35% CO₂), c) cas 3 (55% CO₂) i d) cas 4 (71% CO₂)167

Fig. C.2. Error recíproc relatiu de les dades de la primera mesura de cada dia de l'experiment II a) mesura 1, b) mesura 13 (26 h), c) mesura 21 (49 h), d) mesura 30 (79 h), e) mesura 31 (95 h), f) mesura 33 (122.25 h), g) mesura 34 (143.75 h) i h) mesura 36 (175.75 h)168

Fig. D.1. Factor geomètric de les 1362 configuracions d'electrodes utilitzades169

Llista de Taules

Pàg.

Taula 1.1. Llistat de tècniques de monitoreig de CO ₂ (modificat de Hannis, [2013]).....	5
Taula 3.1. Resistència qualitativa a la corrosió observada en diferents materials emprats com a electrodes.....	28
Taula 5.1. Models inicials considerats.....	69
Taula 5.2. Característiques dels casos considerats per a les proves sintètiques.....	70
Taula 6.1. Característiques dels experiments realitzats.....	75
Taula 6.2. Valors utilitzats pel càlcul de la porositat amb el mètode de la triple pesada	77
Taula 6.3. Característiques de les salmorres utilitzades als experiments	77
Taula 6.4. Casos investigats a l'experiment I.....	78
Taula 6.5. Paràmetres d'interès de les inversions de l'experiment I.....	95
Taula 6.6. Característiques dels casos considerats per a les proves sintètiques.....	112
Taula 6.7. Paràmetres d'interès de les inversions de l'experiment II	136
Taula 6.8. Dades necessàries pel càlcul de la conductivitat de la salmorra	140

Introducció

La captura i emmagatzematge geològic de CO₂ es contempla com una tecnologia viable per a la reducció de les emissions netes d'aquest gas a l'atmosfera. La fase final del procés, en la qual el CO₂ s'injecta en una formació geològica porosa i permeable, requereix la monitorització del sistema durant desenes d'anys per assegurar-ne l'estabilitat. D'entre les tècniques de monitoreig existents, els mètodes elèctrics i electromagnètics són especialment eficaços en la detecció dels canvis de resistivitat del subsòl causats per la presència de fluïds. L'aplicació d'aquestes tècniques a escala de laboratori, utilitzant mostres de mida centimètrica, aporta informació útil per a l'estudi dels fenòmens físico-químics que hi tenen lloc i, a més, proporciona dades necessàries per a interpretar i calibrar les observacions efectuades a gran escala.

Aquesta tesi es centra en la caracterització de l'estructura elèctrica de mostres poroses de mida centimètrica mitjançant tomografia de resistivitat elèctrica (ERT), en una sèrie d'experiments que emulen diferents escenaris dins el context de l'emmagatzematge geològic de CO₂. s'ha dissenyat i muntat un sistema experimental específic. Les aportacions principals han consistit, en primer lloc, en el disseny i la posta a punt d'un sistema experimental específic per tal de poder efectuar mesures d'ERT a condicions d'alta pressió i, en segon lloc, en la realització de dos experiments que han permès investigar les interaccions entre els components del sistema roca-salmorra-CO₂.

La memòria d'aquest treball s'organitza en sis capítols. Al Capítol 1 s'introdueix el context científic de la captura i l'emmagatzematge de CO₂. Es ressalten els avantatges dels mètodes elèctrics i electromagnètics en relació al monitoreig, tot posant l'èmfasi en les aplicacions més rellevants de la ERT al monitoreig del subsòl, a diferents escales. A continuació es discuteix la motivació principal de la investigació duta a terme en aquesta tesi, i es plantegen els objectius concrets.

Al Capítol 2 es descriuen els mecanismes de conducció elèctrica en roques que contenen aigua i es presenta una visió de la petrofísica del sistema roca-salmorra-CO₂, tot fent èmfasi en els efectes elèctrics de les diferents interaccions entre els seus components. Aquests processos constitueixen la base del disseny dels experiments realitzats i la posterior interpretació del resultat.

Els Capítols 3, 4, 5 constitueixen el cos metodològic de la tesi. Al Capítol 3, després d'una descripció de la tècnica de la ERT, es discuteixen els reptes específics de l'aplicació de la ERT a escala de laboratori i les solucions que s'han proposat. Es presenta la seqüència de mesures utilitzada i es desgrana l'anàlisi d'errors de les dades. També s'adjunten els resultats dels assaigs de validació de la ERT a escala de laboratori.

Al Capítol 4 es detalla el procés de disseny del sistema experimental i es descriuen els seus components: la cel·la de confinament, els circuits de fluids i les connexions i el tub de Viton[®], que manté en contacte els electrodes amb la superfície exterior de la mostra.

Al Capítol 5 es descriu el mètode d'inversió que segueix el programa utilitzat i se n'exposen les consideracions numèriques necessàries, incloent una discussió de la geometria i la discretització de la malla, la modelització de la cel·la metàl·lica, l'efecte de les làmines de contacte als extrems de la mostra i, finalment, les

conclusions pràctiques d'una sèrie de proves sintètiques relacionades amb els experiments plantejats.

El Capítol 6 conté els resultats dels dos experiments principals en els quals s'ha aplicat la ERT a una mostra de gres de Fontainebleau: un experiment de saturació de la mostra amb CO_2 i un altre de dissolució de CO_2 a alta pressió. A l'inici de cada experiment es llista el protocol de preparació de la mostra. A continuació s'analitzen i s'interpreten les dades adquirides, i es dóna pas a la presentació dels models de resistivitat obtinguts a partir de la inversió de les dades. A l'experiment I es quantifica la saturació de CO_2 , mentre que a l'experiment II es discuteix l'efecte de la dissociació del CO_2 dissolt a la salmorra. També es presenten resultats d'experiments previs rellevants. Al final de cada experiment, es discuteixen els resultats i se n'extreuen conclusions individuals.

A continuació es resumeixen les conclusions generals d'aquesta tesi i s'exposen algunes perspectives de treball, així com també es presenten opcions de millora del sistema experimental i alguns exemples de nous experiments.

A més de les Referències, s'adjunten cinc Apèndix on es detalla el càlcul teòric d'errors, els valors de resistivitat de les làmines dels quatre casos investigats a l'experiment I, els errors recíprocs relatius de les dades dels experiments I i II, el càlcul numèric del factor geomètric de les configuracions utilitzades i el càlcul de l'exponent de saturació i del seu error.

Al final de la memòria s'annexa la publicació resultant de la fase inicial de la tesi:

Bosch, D.; Ledo, J.; Queralt, P., 2013, Fuzzy logic determination of lithologies from well log data: application to the KTB project dataset (Germany), *Surveys in Geophysics*, 34 (4), 413 – 439.

Resum

La captura i emmagatzematge geològic de CO_2 es considera una opció viable per a la reducció de les emissions netes d'aquest gas a l'atmosfera terrestre. El procés consisteix a separar el CO_2 de la resta de gasos generats durant l'ús de combustibles fòssils, transportar-lo fins a les plantes d'emmagatzematge i injectar-lo en una formació porosa i permeable que el retindrà, en principi, indefinidament. En aquesta tesi es consideren els aqüífers salins profunds com a reservori de CO_2 de referència.

La fase d'emmagatzematge requereix que es monitoritzi el subsòl mitjançant tècniques indirectes no destructives, amb l'objectiu de caracteritzar la distribució del CO_2 dins el reservori per poder assegurar que la contenció és efectiva i permanent. D'entre els mètodes de monitoreig existents, els mètodes elèctrics i electromagnètics són molt convenients, degut a la seva sensibilitat a la conductivitat elèctrica, una propietat física intrínsecament relacionada amb la fracció de volum de fluids conductors presents a la porositat de la roca. Quan s'injecta CO_2 al subsòl, la substitució de salmorra (conductora) per gas (resistent) genera un contrast de resistivitat detectable amb mètodes elèctrics i electromagnètics. En funció de la magnitud del canvi, es pot quantificar la saturació de CO_2 del reservori.

Aquesta tesi centra la seva investigació en els efectes elèctrics d'alguns dels fenòmens que tenen lloc a micro-escala durant el procés d'injecció i emmagatzematge geològic de CO_2 . L'objectiu principal consisteix a caracteritzar la distribució de resistivitat elèctrica d'una mostra centimètrica de gres de Fontainebleau en dos experiments principals, mitjançant la tècnica de la tomografia elèctrica aplicada a escala de laboratori.

Els dos experiments principals d'aquesta investigació inclouen, per un cantó, la quantificació de la saturació de CO_2 per a diferents graus de saturació i, per l'altre, el monitoreig del sistema en un experiment de dissolució de CO_2 a alta pressió (40 bar). A l'experiment I, la mostra representa una petita fracció d'un aquífer salí profund (saturat d'una salmorra molt salina) en diferents estadis de l'avanç del plomall de CO_2 . A l'experiment II, la mostra representa una fracció d'un aquífer somer (amb una salmorra poc salina) en la qual hi ha hagut una invasió de CO_2 des d'un aquífer proper.

Per tal de poder realitzar els experiments plantejats, s'ha dissenyat i muntat un sistema experimental que permet realitzar mesures de tomografia elèctrica a les condicions de pressió requerides, sense haver d'aturar l'experiment.

Els dos experiments principals són una de les contribucions més importants d'aquesta tesi, perquè per primer cop s'ha aplicat tomografia elèctrica a escala centimètrica en experiments que involucren CO_2 . Els resultats han demostrat que el sistema experimental permet obtenir dades significatives i de bona qualitat. Els models resultants de l'experiment I han permès quantificar la saturació de CO_2 a l'interior de la porositat de la roca, mentre que l'experiment II ha permès determinar l'augment de la conductivitat de la salmorra degut a la dissolució i dissociació de CO_2 al llarg de vuit dies.

Així, aquesta tesi suposa una contribució rellevant al camp de l'emmagatzematge geològic de CO_2 i al de l'aplicació de la tomografia elèctrica a escala de laboratori, presentant una investigació dels fenòmens elèctrics fruit de la interacció entre els components del sistema roca-salmorra- CO_2 a escala centimètrica. Les dades experimentals adquirides, a més, constitueixen una base de coneixement per a la calibració dels models obtinguts amb tècniques elèctriques i/o electromagnètiques de gran escala, o per a la realització de processos d'*upscaling*.

1 Context científic, antecedents i objectius

En aquest capítol es situa la investigació d'aquesta tesi dins el marc científic de la captura i emmagatzematge geològic de diòxid de carboni, es presenten els antecedents d'aplicació de la tomografia elèctrica i, finalment, es llisten els objectius plantejats.

1.1 Captura i emmagatzematge geològic de CO₂

La captura i emmagatzematge geològic de diòxid de carboni (CO₂) és una opció considerada viable per a la reducció del balanç d'emissions d'aquest gas a l'atmosfera terrestre, tot contribuint d'aquesta manera a la mitigació dels efectes del canvi climàtic [IPCC, 2005]. El procés consisteix, en primer lloc, a separar el CO₂ de la resta de gasos generats degut a l'ús de combustibles fòssils a les principals fonts emissores: centrals de producció d'energia elèctrica, mitjans de transport, processos industrials i sectors comercial i residencial. A continuació, el CO₂ és transportat fins a plantes d'emmagatzematge on s'injecta, a través d'un pou, en una formació geològica porosa i permeable del subsòl, on hi quedarà retingut. Durant i posteriorment a la injecció, cal monitoritzar l'evolució del sistema atmosfera-sòl-subsòl al llarg del temps per poder assegurar que la contenció sigui efectiva i segura de manera permanent.

1.1.1 Reservoiris de CO₂

Es consideren tres possibles tipus de reservoris adequats per a l'emmagatzematge de CO₂: grans jaciments de carbó, camps petrolífers esgotats i aqüífers salins profunds. Aquests últims són considerats el millor tipus de reservori geològic per a l'emmagatzematge de CO₂ a Europa, perquè es troben més ubíquament distribuïts i presenten la capacitat d'emmagatzematge més gran [Bergmann *et al.*, 2010]. El fet que l'aigua de la porositat d'aquest tipus d'aqüífers contingui sals dissoltes (i a la qual se'n farà referència d'aquí en endavant amb el terme “salmorra”), fa que l'emmagatzematge del CO₂ no suposi una pèrdua de recursos hídrics, perquè aquella aigua no és potencialment aprofitable [Vilarrasa, 2012]. Per aquestes raons, aquest treball es centra en els aqüífers salins.

1.1.2 Mecanismes de confinament

S'identifiquen quatre mecanismes de confinament de CO₂ al subsòl [IPCC, 2005]. Quan és injectat en un aqüífer salí, el CO₂ desplaça part de l'aigua continguda a la porositat de les roques del voltant del pou d'injecció i s'acumula formant el que es coneix com a *plomall* (Figura 1.1). A les condicions de pressió i temperatura de l'aqüífer, el CO₂ és menys dens i viscos que l'aigua subterrània i, per tant, tendirà a migrar cap al sostre de l'aqüífer. Aquesta migració estarà condicionada pel flux subterrani de l'aqüífer i el seu pendent [Macminn *et al.*, 2010]. Quan el flux de CO₂ és aturat per una capa impermeable (anomenada *segell*) es parla de *confinament estructural*. Com que el CO₂ és mòbil, una fractura al segell o un pou pre-existent poden permetre que hi hagi una fuga en sentit ascendent fins arribar a un aqüífer menys profund (i contaminar-lo en cas que aquest contingui aigua potable) o inclús a la superfície.

A part del confinament estructural, el CO₂ també queda immobilitzat dins l'aqüífer en forma de bombolles aïllades, desconnectades del plomall a mesura

que aquest avança per l'aqüífer. Aquest tipus de confinament s'anomena *capil·lar* o *residual*.

A la interfase entre el CO_2 i l'aigua hi té lloc el fenòmen de dissolució, de manera que una fracció del CO_2 romandrà dins l'aigua tant en forma molecular com dissociat en les seves espècies iòniques (veure apartat 2.3.2). Aquest mecanisme es coneix com a *confinament per solubilitat*.

Finalment, la salmorra, acidificada degut al CO_2 que s'hi ha dissolt, pot reaccionar amb la roca reservori i fer precipitar-hi minerals del grup dels carbonats, tot fixant el CO_2 permanentment en el que es coneix com a *confinament mineral*.

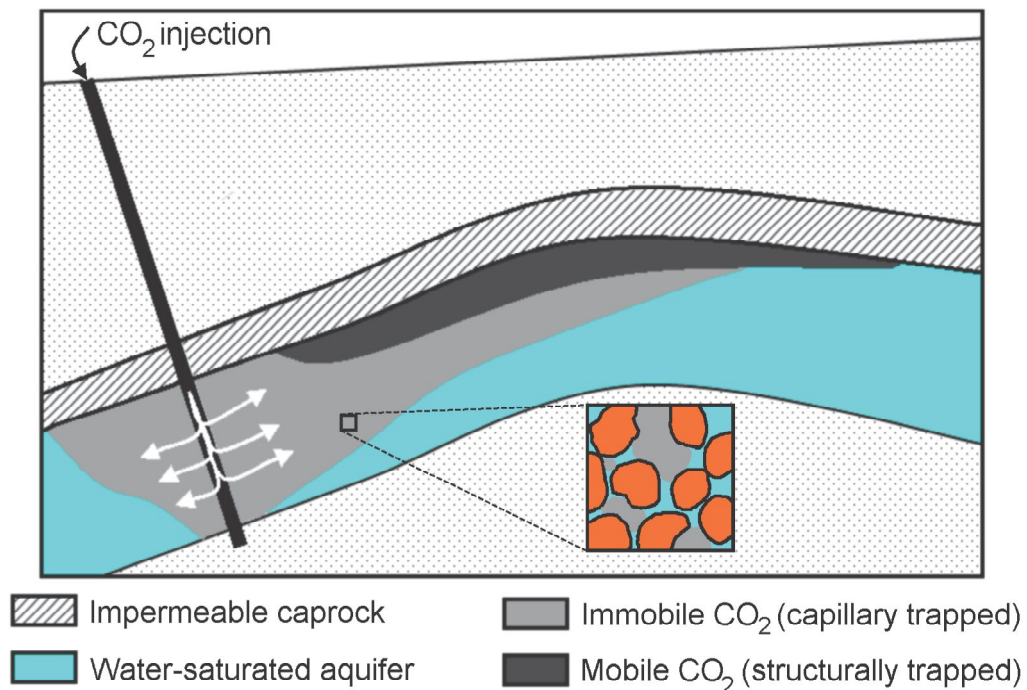


Fig. 1.1. Esquema del plomall de CO_2 al voltant del pou d'injecció. El CO_2 mòbil ha quedat acumulat gràcies al segell impermeable que no permet que segueixi ascendint (confinament estructural). Pel camí on ha circulat el CO_2 mòbil queda una quantitat de CO_2 atrapada a la porositat (confinament capil·lar). A la interfase entre el CO_2 i l'aigua de l'aqüífer es produirà confinament per solubilitat (basada en Juanes *et al.* [2010])

1.1.3 Tècniques de monitoreig

Per tal de determinar la viabilitat a llarg termini i l'acceptació de l'emmagatzematge geològic de CO_2 per part de la població, és d'importància cabdal monitoritzar el subsòl al llarg del temps, especialment durant la fase post-injecció [Breen *et al.*, 2012]. A la Taula 1.1 es recull un llistat no exhaustiu de tècniques de monitoreig [Hannis, 2013]. Es distingeixen entre tècniques profundes i superficials, en funció de la profunditat d'investigació.

D'entre la gran quantitat de tècniques de monitoreig existents, els mètodes elèctrics i electromagnètics són molt convenients degut a la seva gran sensibilitat a la conductivitat elèctrica del subsòl i a la seva capacitat de complementar-se per estudiar els reservoris a diferents escales [Nakatsuka *et al.*, 2010; Börner *et al.*, 2013; Ogaya *et al.*, 2013, 2014; Vilamajó *et al.*, 2013]. Una contribució essencial dels mètodes elèctrics i electromagnètics és el canvi consistent que presenta la resistivitat elèctrica d'un medi porós amb els canvis en la saturació de CO_2 (Figura 1.2), complementant així altres tècniques.

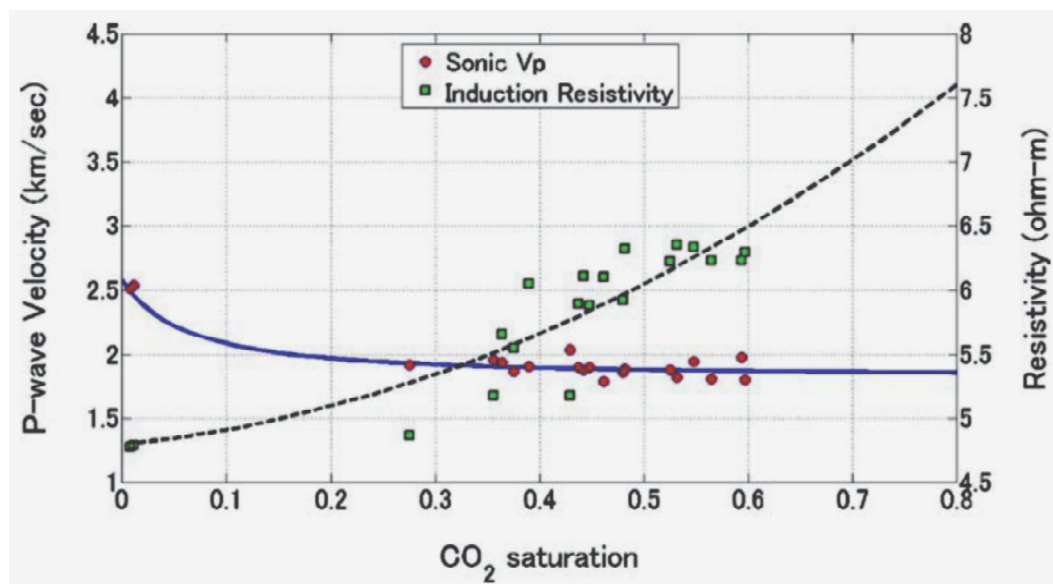


Fig. 1.2. Velocitat d'ones P i resistivitat elèctrica mesurades en diagrames a la planta pilot d'injecció de CO_2 de Nagaoka, Japó. Es pot comprovar que la mesura de la resistivitat elèctrica aporta informació molt rellevant per a la quantificació de la saturació de CO_2 (modificat de Nakatsuka *et al.* [2010])

Taula 1.1. Llistat de tècniques de monitoreig de CO₂ (modificat de Hannis, [2013])

Tècnica		Objectiu principal
Tècniques profundes	Exploració sísmica 2D/3D/4D en superfície i crosshole	Caracteritzar l'evolució de la distribució de velocitats de les ones sísmiques al reservori associada a la presència del CO ₂
	Microsísmica	Detecció passiva d'events sísmics induïts per la injecció de CO ₂
	Gravimetria	Caracteritzar el plomall de CO ₂ en base a la mesura del seu efecte gravimètric en superfície
	Mètodes de pressió i temperatura	Monitoreig de la injecció i de la connectivitat hidràulica i tèrmica entre pous
	Logs geofísics	Detecció del CO ₂ al voltant dels pous
	Tomografia elèctrica (ERT) en superfície i crosshole	Caracteritzar l'evolució de la distribució de resistivitat elèctrica al reservori associada a la presència del CO ₂
	Mètodes electromagnètics (CSEM, MT)	Caracteritzar la distribució del CO ₂ al reservori i possibles fugues a les roques suprajacents
	Química de fluids (mostreig en pous)	Detecció dels canvis de saturació en CO ₂ i evolució geoquímica del reservori
	Traçadors	Permeten determinar el flux de CO ₂ al reservori
	Monitoreig geoquímic d'aqüífers poc profunds	Detectar fugues en l'aigua potable d'aqüífers propers
Tècniques superficials	Mesures d'inclinació i interferometria per satèl·lit (inSAR)	Monitoreig dels desplaçaments relatius del terra associats a la injecció del CO ₂
	Ecosonda, sonar, vídeo	Monitoreig del fons marí amb ultrasons per detectar fugues
	Detecció de bombolles i mostreig de gasos	Monitoreig del fons marí per detectar fugues
	Flux superficial i mostreig de gas al sòl	Mesura de la concentració i el flux de CO ₂ al sòl
	Torres de flux (covariància Eddy)	Detecció de flux de CO ₂ des de la superfície
	Detectors passius i diodes làsers infraroigs	Detecció de flux de CO ₂ des de la superfície
	Monitoreig de l'ecosistema	Detectar efectes d'una fuga de CO ₂ en l'ecosistema de la zona
	Espectrometria aeroportada	Detectar efectes d'una fuga de CO ₂ amb sensors remots

1.2 Aplicacions de la tomografia elèctrica

La tomografia de resistivitat elèctrica (ERT) és un mètode ben establert que permet determinar la distribució de resistivitats al subsòl. Els avantatges principals de la ERT a escala de camp són la seva velocitat d'adquisició (en comparació amb l'adquisició manual), el fet que és una tècnica no invasiva, el seu baix cost i la possibilitat de mostrejar a gran escala [Kuras *et al.*, 2009; Wilkinson *et al.*, 2010; Perri *et al.*, 2012].

Un camp d'aplicació important de la ERT és l'enginyeria civil, en projectes de caracterització de túnells [Chambers *et al.*, 2007; Bellmund *et al.*, 2012] o de detecció de fractures o cavitats al subsòl [Deceuster *et al.*, 2006; Chávez *et al.*, 2014]. A més, la capacitat de la ERT de detectar canvis petits en la resistivitat la fa especialment adequada per estudiar la circulació subterrània de fluids [Breen *et al.*, 2012]. Algunes aplicacions de la ERT en aquest camp inclouen el monitoreig de la migració d'aigües subterrànies a la zona vadosa i/o la infiltració d'aigua superficial, de manera que es poden caracteritzar estructures hidrogeològiques com ara aqüífers [Coscia *et al.*, 2011], fractures en roques ígnies [Arora and Ahmed, 2011], karsts [Meyerhoff *et al.*, 2012] i, en alguns casos, fer estimacions dels processos dinàmics que hi tenen lloc (per exemple, determinar velocitats i tipus de fluxos –per capil·laritat, gravitacionals, etc [Daily *et al.*, 1992; Binley *et al.*, 2002; Coscia *et al.*, 2012]).

La ERT també s'ha utilitzat satisfactòriament en la caracterització del transport de soluts, la qual cosa permet determinar-ne la seva variabilitat espacial i les corbes de ruptura dels traçadors [Slater *et al.*, 2000; Kemna *et al.*, 2002; Singha and Gorelick, 2005; Cassiani *et al.*, 2006; Leroux and Dahlin, 2006; Doetsch *et al.*, 2012]. Finalment, les aplicacions més típiques de la caracterització dels processos de transport inclouen el monitoreig de processos de remediació ambiental [Ramirez *et al.*, 1993; Daily and Ramirez, 1995, 2000; LaBrecque *et al.*, 1996] i la

caracterització de la intrusió salina en aqüífers [Comte and Banton, 2007; de Franco *et al.*, 2009; Martínez *et al.*, 2009]. Aquestes aplicacions es basen en la capacitat de la ERT de detectar anomalies conductores associades amb la presència de contaminants dissolts a l'aigua subterrània.

En relació a l'emmagatzematge geològic de CO₂, la primera aplicació a gran escala de la ERT per monitoritzar la injecció de CO₂ en un aqüífer salí profund es va efectuar a Ketzin (Alemanya), com una part del projecte CO₂ SINK [Giese *et al.*, 2009; Bergmann *et al.*, 2010; Kiessling *et al.*, 2010; Schmidt-Hattenberger *et al.*, 2011, 2013]. L'aplicació més profunda de monitoreig de CO₂ amb ERT (a més de 3000 m de profunditat) s'ha dut a terme a Cranfield (EUA), dins del marc del projecte SECARB [Carrigan *et al.*, 2013; Doetsch *et al.*, 2013]. Aquests experiments inclouen combinacions d'electrodes en pous (crosshole ERT).

Varis experiments d'ERT desde la superfície i/o amb pous també han demostrat que aquesta tècnica és capaç de detectar i quantificar la saturació i dissolució de CO₂ en aqüífers poc profunds. Exemples a la literatura inclouen l'experiment d'Esbjerg (Dinamarca) [Auken *et al.*, 2014], el d'Escatawpa (EUA) [Dafflon *et al.*, 2013], el de Gironde (França) [Le Roux *et al.*, 2013] o el de Wittstock (Alemanya) [Lamert *et al.*, 2012]. En general, la correlació entre les mesures de conductivitat elèctrica en mostres d'aigua i les inferides a partir dels models de tomografia és bona. Tot i que la ERT no pot detectar les petites variacions, el seu punt fort és la delimitació del plomall i la capacitat de visualitzar-lo fora de l'espai comprès entre els pous d'adquisició.

L'estudi de la resistivitat elèctrica també s'ha dut a terme a escala de laboratori per a la investigació de flux de fluids (incloent el CO₂) en medis porosos o fracturats. A continuació es comenten algunes aplicacions i resultats d'interès. Slater *et al.* [2002] van investigar els camins de percolació d'un traçador de NaCl en un tanc experimental simulant un canal fluvial. Les imatges obtingudes

presentaven una bona correlació amb els models teòrics de flux. A LaBrecque *et al.* [2004] es va investigar la capacitat de la ERT de detectar el flux d'aigua a través de fractures, en un experiment de laboratori a meso-escala. En general, la ERT era capaç de detectar fractures resistives (seques). Es va observar que la tomografia perdia resolució quan les fractures es trobaven molt juntes, o quan aquestes estaven situades als extrems del model. Pel cas de fractures conductores, un procediment d'inversió de la diferència va permetre situar-les correctament. Fleury and Deschamps [2008] van mesurar l'efecte de la dissolució de CO₂ en la conductivitat elèctrica de dissolucions molt salines (20 – 160 g/l NaCl) a 85 bar. Van observar que la conductivitat augmentava en funció de la fracció molar de CO₂ dissolt a la solució, fins assolir un valor màxim relatiu del 10%. Koestel *et al.* [2008] van aplicar la ERT a la monitorització del transport d'ions clorur a través d'una columna de sòl. La solució salina s'afegia al sistema per irrigació des de l'extrem superior de la columna. Els resultats concordaven amb les mesures independents adquirides per reflectometria en domini temporal. Liu and Moysey [2012] van concloure, en un experiment de mesura de l'exponent de saturació d'una roca que contenia oli mineral i aigua, que a l'hora d'inferir la saturació de fluïds a partir de mesures de resistivitat elèctrica cal considerar les condicions del flux, ja que la inestabilitat del flux exerceix un control de primer ordre en la distribució espacial dels fluïds. Nakatsuka *et al.* [2010] van efectuar mesures de resistivitat en funció de la saturació de CO₂ per una mostra de gres de Berea i una mostra de gres de Tako. Van observar que la resistivitat elèctrica és molt sensible a la saturació de CO₂ al llarg de tot l'interval de saturacions, i van comprovar que la presència d'argil·les invalidava l'aplicació immediata de la llei d'Archie. Breen *et al.* [2012] van monitoritzar la injecció d'un plomall d'aire en un tanc bidimensional transparent ple de sorra de diferents granulometries, simulant un aquífer salí amb un aquífer confinant el reservori permeable. A part de determinar correctament les dimensions del plomall, la ERT va ser capaç de detectar una fuga d'aire des del plomall principal a través de l'aquífer. Börner *et al.* [2013] van dissenyar un sistema experimental per mesurar la conductivitat de

fluïds o de sorres saturades de salmorra durant un flux de CO_2 . En un experiment deixen equilibrar un volum de salmorra en una atmosfera de CO_2 pur, i observen un augment de la conductivitat de la salmorra que depèn de la salinitat d'aquesta (com més salina, menys increment). En experiments dinàmics de drenatge de sorra saturada de salmorra, observen l'augment de la resistivitat de la sorra a causa de la substitució de salmorra per CO_2 , però, al deixar equilibrar el sistema, tornen a detectar un augment de la conductivitat degut a la dissolució del CO_2 a la salmorra, la qual cosa dificulta la interpretació directa utilitzant la llei d'Archie. Wagner *et al.* [2013] van monitoritzar amb ERT, en un únic pou, un experiment anàleg d'intrusió salina en un aquífer siliciclàstic i van concloure que aquesta tècnica detecta satisfactòriament l'arribada de l'aigua salada.

Finalment, la ERT també s'ha aplicat en mostres de roca de mida centimètrica. Únicament se n'han localitzat dos estudis a la literatura. Al primer [van Weereld *et al.*, 2001], es va investigar l'avanç del front de percolació de la salmorra en una mostra cilíndrica (38 mm de diàmetre i 50 mm de llarg) de gres de Bentheim, prèviament saturat amb salmorra residual i petroli. 192 electrodes muntats en un circuit imprès envoltaven la mostra. Els autors van comprovar que la ERT podia visualitzar un sistema de dues fases, tot i que no van convertir les imatges de resistivitat a saturació.

El segon estudi [Stacey, 2006; Stacey *et al.*, 2009], va utilitzar la tomografia elèctrica per a visualitzar la imbibició de salmorra (5 g/l NaCl) d'una mostra cilíndrica (50 mm de diàmetre i 100 mm de llarg) de gres de Berea amb 48 electrodes. A part de la visualització quantitativa de la imbibició de salmorra, es van determinar les corbes de l'índex de resistivitat en funció de la saturació de salmorra.

1.3 Motivació i objectius

Les mesures de laboratori són necessàries per a predir les conseqüències físiques de les interaccions fluïd-fluïd i fluïd-roca [Milsch *et al.*, 2007; Perrin *et al.*, 2009], i per a convertir la resistivitat elèctrica inferida de les mesures de camp a saturació de CO₂ [Myer, 2001; Nakatsuka *et al.*, 2010]. Les dades d'experiments a escala de laboratori també permeten calibrar well-logs i models de gran escala. A més, són el punt de partida de qualsevol procés d'*upscaling*, és a dir, l'obtenció de valors de propietats a una certa escala a partir de valors d'aquelles propietats mesurades a una escala més petita (veure, per exemple, Beven [1993], Tiwary *et al.* [2009], Nakashima i Nakano [2011], Dewandel *et al.* [2012] o Andrä *et al.* [2013]).

En aquesta tesi s'ha plantejat, per primer cop, l'aplicació de la tomografia elèctrica a mostres de roca de mida centimètrica, en experiments que involucrin la injecció de CO₂ a diferents pressions, amb l'objectiu d'investigar els fenòmens elèctrics resultants de la interacció entre la roca, la salmorra i el CO₂.

Per dur a terme la investigació plantejada, en aquesta tesi s'han establert els següents objectius:

1) Metodològics

- a) Investigar la viabilitat de la ERT a escala centimètrica mitjançant experiments preliminars.
- b) Dissenyar i posar a punt un sistema experimental que permeti efectuar mesures d'ERT en mostres cil·lindriques de mida centimètrica a diverses condicions de pressió.

- c) Explorar els diversos factors que influeixen el procés d'inversió de dades d'ERT (discretització de la malla, paràmetres d'inversió, etc)

2) Aplicats

- a) Experiment I: quantificar la saturació de CO_2 a la mostra, per a diferents saturacions, emulant una fracció d'un aqüífer salí profund.
- b) Experiment II: monitoritzar la dissolució i dissociació del CO_2 a la salmorra durant vuit dies, a alta pressió, emulant la invasió de CO_2 en un aqüífer somer.

2 Resistivitat elèctrica de roques poroses

La resistivitat d'una roca està determinada per tres tipus de conducció elèctrica: a través del fluïd contingut a la porositat, a través dels grans i al llarg de la interfase entre els grans i el fluïd [Bussian, 1983; Guéguen and Palciauskas, 1994; Ruffet et al., 1995; Revil and Glover, 1997]. Els minerals del grup dels silicats es consideren aïllants elèctrics [Guéguen and Palciauskas, 1994] i, per tant, en una roca principalment composta de silicats (com podria ser un gres d'un aquífer salí), el corrent només circularà a través del fluïd i al llarg de la superfície dels grans. La conducció a través dels grans té lloc quan hi ha minerals que actuen com a semi-conductors o com a conductors metàl·lics, com per exemple sulfurs, alguns òxids i metalls natius.

Assumint que no hi ha conducció a través dels grans, la conductivitat efectiva de la roca es pot expressar com una combinació lineal de la conductivitat electrolítica σ_{el} i la conductivitat superficial σ_s [Waxman and Smits, 1968]:

$$\sigma = \sigma_{el} + \sigma_s \quad (2.1)$$

2.1 Conductivitat electrolítica

La conducció electrolítica té lloc a través del moviment dels ions en la solució que omple part o tota la porositat de la roca, assumint que aquests es poden moure

lliurement i que estan uniformement distribuïts. En aquest cas, i assumint també que el material de la matriu és un aïllant perfecte, la conductivitat electrolítica de la roca es pot descriure amb la llei empírica d'Archie [1942]:

$$\sigma_{el} = \frac{1}{\rho_{el}} = \frac{1}{a} \phi^m \sigma_w S_w^n, \quad (2.2)$$

on ρ_{el} és la resistivitat electrolítica, a és el factor de tortuositat, ϕ és la porositat, m l'exponent de cimentació, σ_w és la conductivitat del fluïd, S_w és la saturació de fluïd i n l'exponent de saturació. Si tota la porositat està plena de fluïd ($S_w = 1$), l'equació 2.2 es simplifica:

$$\sigma_{el} = \frac{1}{a} \phi^m \sigma_w = \frac{1}{F} \sigma_w, \quad (2.3)$$

on $F \equiv a/\phi^m$ es defineix com el factor de formació i és característic de cada medi porós, quan el fluïd que satura la roca és tant salí que l'efecte de la conductivitat superficial és negligible respecte a la conductivitat electrolítica [Revil, 2013]. Per a roques amb grans esfèrics, a Revil *et al.*, [2014] es proposa l'ús de l'equació modificada d'Archie [Sen *et al.*, 1981]

$$F = (\phi - \phi_p)^{m^*}, \quad (2.4)$$

on ϕ_p és la porositat al llindar de percolació, i m^* és l'exponent modificat de cimentació. La correcció ϕ_p introduïda a l'equació 2.4 és necessària per ajustar la relació factor de formació en funció de la porositat utilitzant la teoria del medi efectiu diferencial considerant grans esfèrics, on m^* té un valor teòric d'1.5.

L'equació 2.2 mostra que la conductivitat electrolítica de la roca és proporcional a la conductivitat del fluïd. Aquesta última depèn de la concentració de les espècies iòniques en solució c_i , de les forces inter-ióniques i de la velocitat de deriva dels ions v_i . La velocitat de deriva sota l'aplicació d'un camp elèctric extern depèn de la valència dels ions z_i , del seu radi iònic r_i i de la viscositat del fluïd η [Robinson and Stokes, 2002]. El quocient entre la velocitat de deriva i la magnitud del camp elèctric defineix la mobilitat iònica $\mu_i \equiv v_i/E = z_i/6\pi\eta r_i$. Per a baixes concentracions dels ions en solució, la conductivitat del fluïd es pot expressar com el sumatori de les contribucions de cada ió [Schön, 1996]:

$$\sigma_w = \sum_{i=1}^n \Phi c_i z_i \mu_i, \quad (2.5)$$

on Φ és la constant de Faraday. L'equació 2.5 es pot re-escriure en termes del coeficient de difusió de cada espècie iònica en solució [Robinson and Stokes, 2002]

$$\sigma_w = \sum_{i=1}^n \frac{z_i^2 \Phi^2}{RT} D_i c_i, \quad (2.6)$$

mitjançant l'ús d'una forma de l'equació de la mobilitat elèctrica $\mu_i = D_i q / k_B T = D_i z_i \Phi / RT$, on q és la càrrega, k_B és la constant de Boltzmann, T és la temperatura i R és la constant dels gasos ideals. A concentracions altes, els ions interactuen més fortament entre ells i la descripció del fenomen esdevé molt més complexa. Per altra banda, la viscositat del fluïd depèn de la temperatura, de manera que la conductivitat (electrolítica i superficial) requerirà una correcció per temperatura [Revil et al., 1998]:

$$\sigma_{el}(T) = \sigma_{el}(T_0) [1 + \alpha_{el}(T - T_0)], \quad (2.7)$$

$$\sigma_s(T) = \sigma_s(T_0)[1 + \alpha_s(T - T_0)], \quad (2.8)$$

on $T_0 = 25^\circ C$ és la temperatura de referència, i α és el coeficient de correcció de temperatura, tabulat a la literatura per a diversos ions [Revil *et al.*, 1998].

2.2 Conductivitat superficial

La conducció superficial té lloc a la interfase entre el fluïd i la superfície dels grans, la qual està carregada negativament degut a imperfeccions o substitucions iòniques a l'estructura cristal·lina i a reaccions àcid/base amb l'aigua [Revil *et al.*, 1998]. Per compensar aquest dèficit de càrrega, una capa adjacent de cations queda fixada a la superfície del mineral (la capa de Stern, Figura 2.1). Al seu voltant hi ha una capa difosa de cations mòbils amb una concentració que disminueix exponencialment amb la distància des de la superfície [Grahame, 1947; Revil and Glover, 1997]. El conjunt es coneix com a doble capa elèctrica [Waxman and Smits, 1968]. Els cations de la capa difosa no estan fortament retinguts i es poden intercanviar amb els cations de la solució, aportant a la roca un mecanisme addicional de conducció elèctrica.

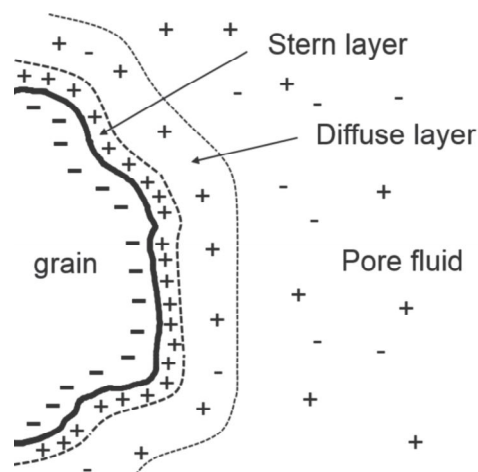


Fig. 2.1. Esquema del fenomen de la doble capa elèctrica. La superfície dels grans està carregada negativament (-), i una capa de cations (+) compensa el dèficit de càrrega (capa de Stern). Una segona capa de cations mòbils envolta la primera, amb una concentració decreixent amb la distància (modificat de Revil *et al.*, [2013])

La contribució de la conductivitat superficial pren especial rellevància amb la presència d'argil·les, les quals presenten una capacitat d'intercanvi catiònic important. Tot i així, els minerals silicatats també presenten aquest fenòmen [Revil, 2013; Revil *et al.*, 2014].

S'han proposat varis models per incloure l'efecte de la conductivitat superficial en roques amb presència d'argil·les [Waxman and Smits, 1968; Bussian, 1983; Johnson and Sen, 1988; David *et al.*, 1993; Glover *et al.*, 2000]. El més conegut és l'adaptació empírica de la llei d'Archie proposada a Waxman i Smits [1968]:

$$\sigma = \phi^m (BQ_v + \sigma_w), \quad (2.9)$$

$$B = 0.0046 \cdot [1 - 0.6 \exp(-\sigma_w/1.3)], \quad (2.10)$$

on B és la mobilitat dels ions a la doble capa, Q_v és la concentració en volum de cations intercanviables de les argil·les i, per tant, el producte BQ_v és la conductivitat de les argil·les, depenent de σ_w [Glover *et al.*, 2000].

Pel cas de gresos o sorres amb poc contingut d'argil·la i amb fluïds amb una alta salinitat, la conductivitat superficial es sol negligir [Fleury and Deschamps, 2008; Börner *et al.*, 2013]. Si la salinitat i/o la saturació del fluïd són baixes, però, la conductivitat electrolítica és més baixa i l'efecte de la conductivitat superficial dels silicats no es pot negligir. A Revil *et al.*, [2014] es proposa el model

$$\sigma_s = 6Q_s \beta_{(+)} \frac{1}{d} \left(\frac{1}{F\phi} \right), \quad (2.11)$$

on Q_s és la densitat de càrrega equivalent a la superfície del mineral, $\beta_{(+)}$ representa la mobilitat catiònica a l'aigua de la porositat, d el diàmetre mitjà dels grans, F el factor de formació i ϕ la porositat.

2.3 Petrofísica del sistema roca-salmorra- CO_2

Durant el procés d'injecció i emmagatzematge de CO_2 , al reservori es produeix una sèrie d'interaccions físico-químiques a micro-escala entre els components del sistema. A continuació es descriuen dos dels fenòmens principals que hi tenen lloc: la disminució de la conductivitat elèctrica a causa de la saturació de CO_2 , i l'augment de la conductivitat degut a la dissolució i dissociació del CO_2 a la salmorra.

2.3.1 Saturació de CO_2

Quan el CO_2 és injectat a la roca, desplaça part de la salmorra que inicialment saturava la xarxa de porus (Figura 2.2a). A mesura que la saturació de CO_2 augmenta (Figura 2.2b), la salmorra quedarà reduïda a una fina pel·lícula envoltant els grans [Han *et al.*, 2009]. Si la pressió d'injecció és prou gran, el CO_2 aconseguirà arrossegar la pel·lícula de salmorra (Figura 2.2c) i la resta quedarà confinada residualment en forma de meniscs als contactes entre grans [Yanici *et al.*, 2013]. En termes elèctrics, la substitució de salmorra (conductora) per CO_2 (aïllant) fa disminuir la conductivitat de la roca perquè s'està reduint la saturació de salmorra (veure equació 2.2).

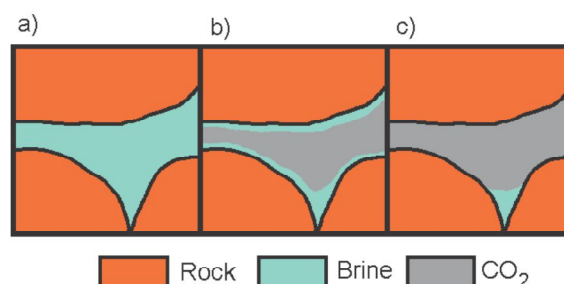


Fig. 2.2. Esquema simplificat del procés de saturació de CO_2 d'una roca porosa. a) estat inicial: la roca està completament saturada de salmorra; b) el CO_2 s'ha obert camí entre la porositat tot reduint la salmorra a una pel·lícula envoltant els grans; c) la pressió d'injecció ha fet que la salmorra quedi reduïda a meniscs als contactes entre grans

Tal com s'ha comentat a l'apartat 2.2, en un gres sense argil·les saturat d'un fluid molt salí (com és el cas de l'experiment I, veure apartat 6.2), la conducció del corrent serà essencialment electrolítica [Revil *et al.*, 2014]. Per tant, la variació de la resistivitat efectiva de la roca dependrà únicament de la variació en la saturació de salmorra (o, el que és el mateix, de la de CO_2), tal com es pot descriure amb la llei d'Archie (veure equació 2.2). El càlcul de la saturació de CO_2 es pot dur a terme partint de l'índex de resistivitat, definit com el quocient entre la resistivitat efectiva de la roca ρ quan aquesta té una fracció de salmorra S_w i la resistivitat efectiva de la roca ρ_0 quan està completament saturada de salmorra ($S_w=1$) [Guéguen and Palciauskas, 1994]:

$$RI = \frac{\rho}{\rho_0} = \frac{a\phi^{-m}\rho_w S_w^{-n}}{a\phi^{-m}\rho_w (1)^{-n}} = (S_w)^{-n}, \quad (2.12)$$

Quan la resta de la porositat es troba ocupada per CO_2 , es compleix $S_w = 1 - S_{\text{CO}_2}$. Així, la saturació de CO_2 es pot obtenir directament de l'índex de resistivitat:

$$S_{\text{CO}_2} = 1 - \left(\frac{1}{RI} \right)^{1/n}, \quad (2.13)$$

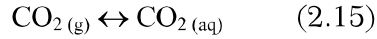
S'ha observat que l'índex de resistivitat del gres de Fontainebleau, a saturacions de salmorra típicament inferiors al 20%, pot presentar desviacions del comportament ideal d'Archie [Han *et al.*, 2009; Kumar *et al.*, 2009; Yanici *et al.*, 2013; Revil *et al.*, 2014]. Aquest fet és degut principalment a la conductivitat superficial, que pren importància quan el terme de conductivitat electrolítica es redueix. El càlcul de la saturació de CO_2 ignorant la conductivitat superficial per a baixes saturacions de salmorra serà erroni. A Revil *et al.*, [2014] es reformula l'índex de resistivitat amb la següent expressió

$$RI = (S_w)^{-n} \cdot \left(\frac{\phi \sigma_w + \lambda_s}{\phi \sigma_w + \lambda_s / S_w} \right), \quad (2.14)$$

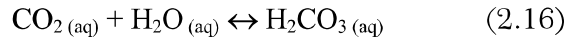
on $\lambda_s = 6Q_s \beta_{(+)} / d$ és la conductivitat superficial *intrínseca*. L'equació 2.14 posa de manifest que, considerant la conductivitat superficial, el valor de RI calculat serà menor que si s'utilitza l'equació 2.12. Això es tradueix en una sobre-estimació de la saturació de salmorra, i una sub-estimació de la saturació de CO_2 .

2.3.2 Dissolució de CO_2

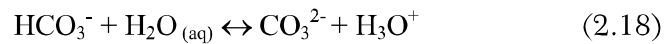
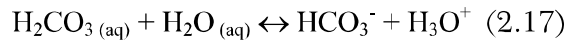
A la interfase entre el CO_2 i la salmorra, tindrà lloc un procés continu de dissolució de CO_2 a la salmorra, seguint la reacció



Aquest procés depèn de la temperatura, la pressió i la concentració de sals a la salmorra [Duan and Sun, 2003]. Una fracció de les molècules de CO_2 dissoltes a la salmorra intervindrà en la formació d'àcid carbònic



Aquest es dissociarà seguint les reaccions [Millero et al., 2007]



Les reaccions 2.17 i 2.18 estan governades per les lleis d'acció de massa següents:

$$K_1 = \frac{[\text{HCO}_3^-] \cdot [\text{H}^+]}{[\text{CO}_2]_{aq}}, \quad (2.19)$$

$$K_2 = \frac{[CO_3^{2-}] \cdot [H^+]}{[HCO_3^-]_{aq}}, \quad (2.20)$$

Les constants d'equilibri de les reaccions 2.19 i 2.20 valen, a 25°C, $pK_1 = -\log(K_1) = 6.37$, i $pK_2 = -\log(K_2) = 10.33$ [Millero *et al.*, 2007]. Degut a la dissociació del CO_2 dissolt, l'aport d'espècies iòniques en solució provocarà un increment de la conductivitat electrolítica de la salmorra [Robinson and Stokes, 2002], i farà disminuir la resistivitat efectiva de la roca. Quan la salmorra és molt salina, com pugui ser el cas d'un aqüífer salí profund, la quantitat de CO_2 que finalment s'hi dissol és tan petita que l'augment de conductivitat és negligible [Fleury and Deschamps, 2008; Börner *et al.*, 2013].

La formació d'àcid carbònic arrel de la dissolució del CO_2 a la salmorra farà disminuir el pH d'aquesta, augmentant així la capacitat de la salmorra de dissoldre els minerals que formen la matriu rocosa del reservori. Per exemple, carbonats [Luquot and Gouze, 2009], aluminosilicats o argil·les [Kaszuba *et al.*, 2003; Luquot *et al.*, 2012]. A causa d'aquesta dissolució, inicialment la roca experimentaria un augment de porositat i permeabilitat, però, a mesura que la quantitat d'ions provinents dels minerals dissolts augmentés, s'afavoriria la precipitació de nous minerals que, conseqüentment, faria disminuir la porositat i permeabilitat de la roca fins arribar a l'equilibri [Luquot and Gouze, 2009]. Si el CO_2 migra cap a un aqüífer poc profund, la dissolució de minerals podria implicar, a més, l'alliberament de metalls pesants, amb la qual cosa es degradaria la qualitat de l'aigua.

A part de la complexitat de processos geoquímics que implica la interacció fluïd-roca, la presència de CO_2 també afectaria la microbiologia del subsòl. Així, les comunitats microbianes s'haurien d'adaptar a un entorn més àcid [Krüger *et al.*, 2011]. L'energia disponible gràcies a l'oxidació de sulfurs o a la dissolució de

feldspats permetria estimular processos de metanogènesi [Oldenburg, 2007; West *et al.*, 2011].

Els fenòmens descrits en aquest capítol tindran lloc, en un aquífer salí profund, a unes condicions de pressió i temperatura prou altes com perquè el CO_2 es trobi en estat supercrític. A la Figura 2.3a es mostra el diagrama de fases del CO_2 . El punt crític està situat a 30.98°C i 7.377 MPa [Span and Wagner, 1996]. En aquest estat, la densitat del CO_2 és com la d'un líquid (Figura 2.3b), de manera que es podrà emmagatzemar una quantitat més gran de CO_2 supercrític per unitat de volum que si es trobés en estat gasós. La viscositat del CO_2 en estat supercrític és similar a la d'un gas (Figura 2.3c), de manera que podrà percolar més fàcilment a través de la porositat de la roca reservori que si es trobés en estat líquid. La solubilitat en aigua també es veu afectada pel canvi d'estat, tal com reflexa la Figura 2.3d. En aquest treball s'ha treballat amb CO_2 en fase gas.

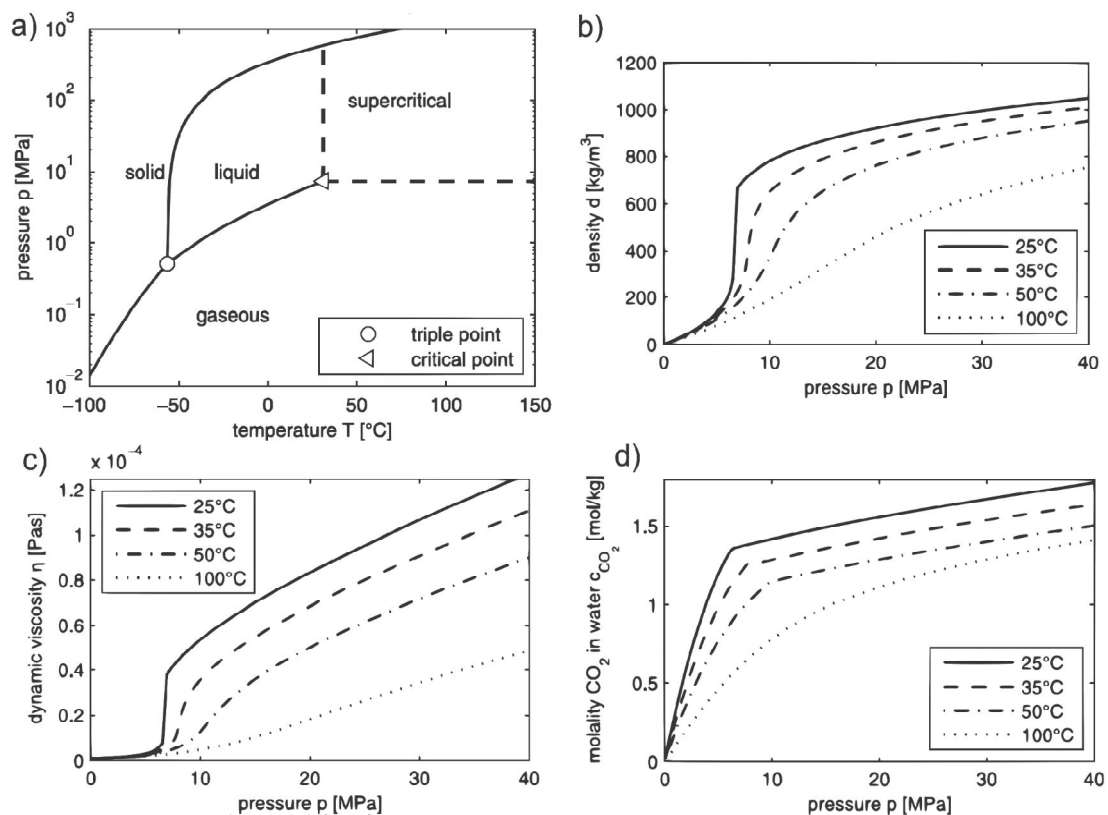


Fig. 2.3. a) Diagrama de fases del CO_2 ; b) densitat del CO_2 ; c) viscositat del CO_2 i d) solubilitat del CO_2 en aigua (modificat de Börner *et al.*, [2013])

3 Tomografia de Resistivitat Elèctrica a escala de laboratori

En aquest capítol, inicialment es descriu la tècnica de la tomografia elèctrica, fent èmfasi en la seva aplicació a escala de camp. A continuació, s'exposen els reptes principals que plantejava el seu ús a escala de laboratori, i es discuteixen les solucions proposades en aquesta investigació. Finalment, es presenten els resultats dels experiments preliminars realitzats amb mostres artificials (constituïdes d'argila) i reals (un gres d'edat miocena), els quals constitueixen arguments de pes per a validar l'aplicació de la ERT a escala centimètrica.

3.1 La Tomografia de Resistivitat Elèctrica

La tomografia elèctrica és una tècnica geofísica ben establerta, inicialment desenvolupada a França entre el 1912 i el 1926 pels germans Schlumberger [Chave *et al.*, 1991]. L'objectiu del mètode és obtenir la distribució de la resistivitat elèctrica del subsòl a partir de la mesura de la diferència del potencial elèctric entre diversos punts de la superfície. El camp de potencial es genera gràcies a la injecció de corrent continu a través d'electrodes distribuïts per la superfície del terreny. La morfologia del camp de potencial depèn de la distribució de la resistivitat del subsòl i, per tant, mitjançant un procés numèric de modelització matemàtica inversa (anomenat *inversió*) es pot obtenir una distribució de resistivitat del subsòl que sigui coherent amb les dades.

3.1.1 Procés de mesura

En una mesura individual de tomografia elèctrica hi intervenen, com a mínim, quatre electrodes (veure Figura 3.1). Es distingeix el parell d'electrodes d'injecció, denominats A i B, del parell d'electrodes de mesura, M i N. A través del dipol AB s'injecta corrent elèctric al terreny, i la diferència de potencial es mesura al dipol MN. Si s'utilitza un equip de tomografia elèctrica multicanal, per una mateixa injecció de corrent es pot mesurar la diferència de potencial en varis dipols simultàniament.

Amb la intenció de caracteritzar el més completament possible la distribució de resistivitat del subsòl, en una exploració amb tomografia elèctrica s'utilitzen desenes o centenars d'electrodes, que permeten efectuar un gran nombre de combinacions de dipols d'injecció i de mesura. Els tipus de combinacions de dipols d'injecció i mesura s'anomenen *configuracions* o *dispositius*. Els dispositius més utilitzats en ERT a escala de camp són el Wenner, l'Schlumberger i el Dipol–dipol, esquematitzats a la Figura 3.2. Els dispositius Wenner i Schlumberger en general són més sensibles als canvis verticals de resistivitat, i per tant s'utilitzen principalment per a determinar estructures estratificades horitzontals. En canvi, el dispositiu Dipol–dipol és en principi més sensible a les variacions horitzontals de resistivitat, de manera que es recomana utilitzar-lo per a detectar estructures més verticals, com podrien ser falles o dics. Per altra banda, és molt sensible a les variacions de resistivitat properes a la superfície [Dahlin and Zhou, 2004].

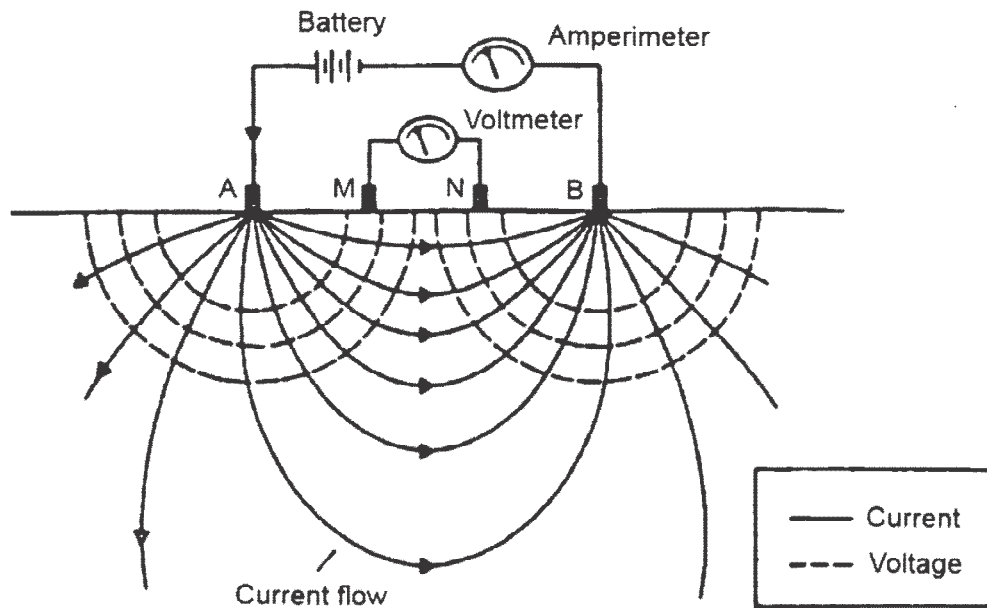


Fig. 3.1. Esquema d'una mesura individual de tomografia elèctrica. AB: dipol d'injecció. MN: dipol de mesura (modificat de Benson *et al.* [1983])

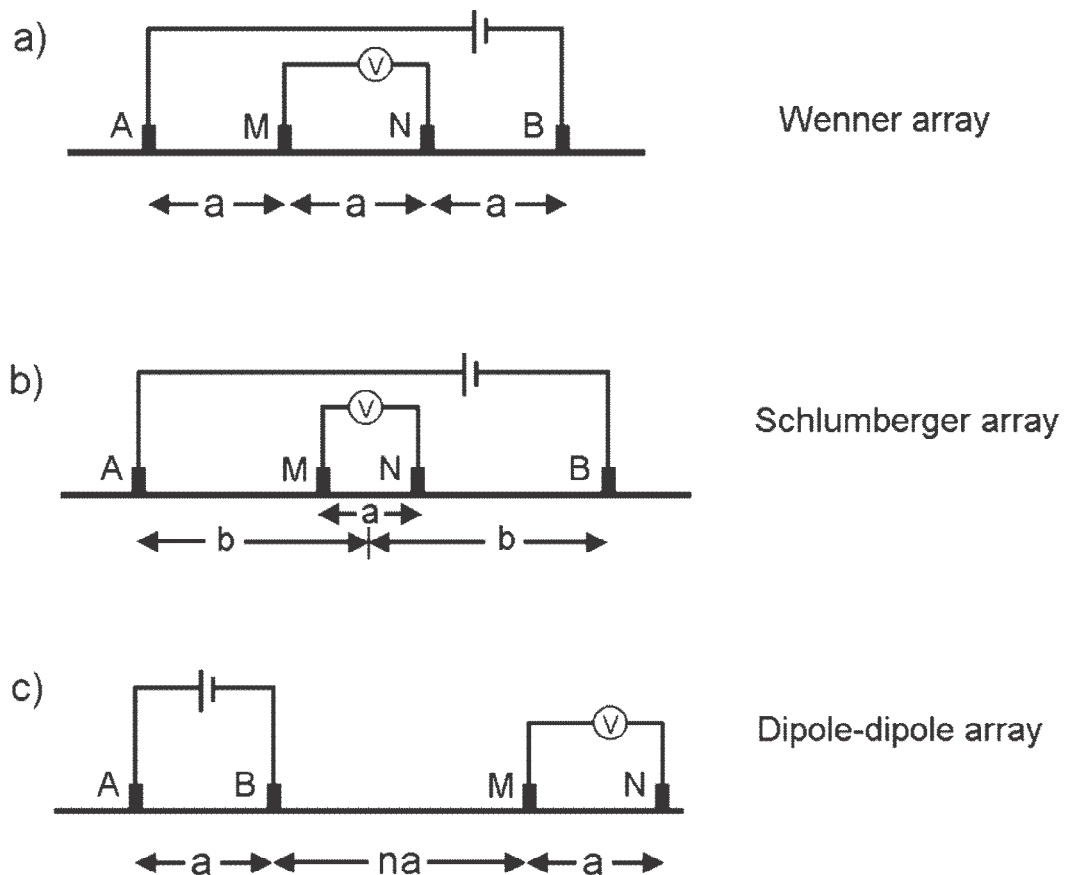


Fig. 3.2. Representació esquemàtica dels dispositius més utilitzats en ERT a escala de camp i les seves relacions geomètriques. a) Wenner; b) Schlumberger; c) Dipol-dipol

3.1.2 Factor geomètric i resistivitat aparent

Si el subsòl fos infinitament profund i extens (el que es coneix com a *half-space*) i tingués una resistivitat homogènia ρ , la diferència de potencial entre dos punts M i N (situats a la superfície) separats dels electrodes d'injecció A i B per les distàncies r_{AM} , r_{BM} , r_{AN} i r_{BN} , respectivament, té la expressió exacta [Zhdanov, 2009]

$$\Delta V_{MN} = \frac{I_{AB}\rho}{2\pi} \cdot \left(\frac{1}{r_{AM}} - \frac{1}{r_{BM}} + \frac{1}{r_{BN}} - \frac{1}{r_{AN}} \right), \quad (3.1)$$

on I_{AB} és la intensitat de corrent que s'ha injectat. Com que les distàncies i la intensitat són conegudes, i la diferència de potencial és la quantitat mesurada, en aquest cas hipotètic es podria determinar el valor de la resistivitat del subsòl

$$\rho = \frac{\Delta V_{MN}}{I_{AB}} \cdot 2\pi \cdot \left(\frac{1}{r_{AM}} - \frac{1}{r_{BM}} + \frac{1}{r_{BN}} - \frac{1}{r_{AN}} \right)^{-1} = \frac{\Delta V_{MN}}{I_{AB}} \cdot k, \quad (3.2)$$

on

$$k = 2\pi \cdot \left(\frac{1}{r_{AM}} - \frac{1}{r_{BM}} + \frac{1}{r_{BN}} - \frac{1}{r_{AN}} \right)^{-1}, \quad (3.3)$$

El paràmetre k s'anomena *factor geomètric* de la configuració d'electrodes AB MN. El factor geomètric no depèn de cap paràmetre experimental, ja que s'ha definit exclusivament a partir de les posicions relatives entre els electrodes assumint que el subsòl és un *half-space* amb resistivitat homogènia.

En un cas real, la distribució de resistivitat del subsòl no serà en general homogènia i, per tant, el càlcul del potencial elèctric esdevé més complex i només en pocs casos té solució analítica. Tot i així, en ERT es calcula, per a cada parella

de valors d'intensitat i de diferència de potencial I_{AB} i ΔV_{MN} , respectivament, la resistivitat que correspondria si aquells valors s'haguessin obtingut mesurant en un half-space homogeni. Així, es defineix la *resistivitat aparent*

$$\rho_a \equiv k \frac{\Delta V_{MN}}{I_{AB}}, \quad (3.4)$$

Aquesta quantitat és útil per a poder comparar dades obtingudes amb configuracions d'electrodes diferents, o per a comparar conjunts de dades obtingudes amb les mateixes configuracions d'electrodes però amb distribucions de resistivitat diferents. El valor de la resistivitat aparent també permet obtenir una interpretació geològica aproximada de les dades [Zhdanov, 2009].

3.2 Reptes de la ERT a escala de laboratori

La ERT s'ha aplicat majoritàriament a escala de camp i, menys freqüentment, a escala de laboratori (mètrica o decimètrica). En aquesta tesi s'ha utilitzat aquesta tècnica en mostres de roca cil·lindriques de mida centimètrica, un tipus d'aplicació del qual hi ha molt pocs exemples a la literatura [van Weereld et al., 2001; Stacey, 2006; Stacey et al., 2009]. A continuació, es descriuen els principals reptes que plantejava l'aplicació de la ERT a escala de laboratori i les solucions proposades per abordar-los.

3.2.1 Electrodes: morfologia, material, i distribució

La incògnita inicial a l'hora de plantejar-se aplicar tomografia elèctrica a mostres de mida centimètrica era la mida, la forma, el material i la distribució dels electrodes. Pels experiments preliminars (veure apartat 3.3) es va experimentar

amb dos tipus d'electrodes. A l'experiment amb cil·lindres d'argila es van utilitzar claus d'acer inoxidable, els quals penetraven aproximadament 2 mm dins la mostra. Per l'experiment sobre una mostra de gres miocè, es van utilitzar com a electrodes plaques quadrades de coure enganxades sobre la roca amb pintura conductora de plata. Tot i que per a les proves preliminars aquestes morfologies i materials van resultar adequats, no eren viables de cara al sistema experimental definitiu plantejat. Per clavar els claus d'acer inoxidable caldria perforar les mostres de roca, corrent el risc d'alterar-les o fins i tot trencar-les durant el procés. Per altra banda, es va observar que les plaques de coure adherides amb pintura de plata tenen un temps d'ús limitat degut a l'oxidació natural del coure. Finalment, es va optar per utilitzar cargols col·locats de manera que el cap faci contacte amb la mostra. La rosca del cargol permet enrotllar-hi el cable de connexió amb la seguretat que es mantindrà un bon contacte.

Per tal de determinar el material més adequat pels electrodes de cara al disseny definitiu, es va experimentar amb la resistència a la corrosió de diversos materials (Taula 3.1). Es van submergir els electrodes en una solució d'aigua amb 30 g/l NaCl, utilitzant una pila d'1.5 V com a font d'alimentació. El grau i la velocitat de la degradació del material era indicativa de la seva resistència a la corrosió. En base als resultats obtinguts i considerant també la resistència mecànica del material, es va decidir utilitzar cargols de titani com a electrodes pels experiments definitius (Figura 3.3).

Taula 3.1. Resistència qualitativa a la corrosió observada en diferents materials emprats com a electrodes

Material	Resistència a la corrosió
Ferro	Molt baixa
Coure	Baixa
Acer inoxidable 316	Mitjana
Titani (grau IV)	Alta
Grafit	Molt alta (no s'observa corrosió)



Fig. 3.3. Cargols de titani utilitzats com a electrodes. Grau: IV. Diàmetre del cap: 4 mm; rosca: M2

Pels experiments preliminars es van utilitzar 24 electrodes. En vista dels bons resultats (veure apartat 3.3), aquest nombre es va mantenir al disseny experimental definitiu. Pel que fa a la seva disposició, es va decidir col·locar els electrodes en sis nivells, cada nivell contenint quatre electrodes separats cada 90° (veure Figura 3.4). D'aquesta manera es cobria un màxim de la superfície de la mostra. També es podria haver considerat quatre nivells amb sis electrodes cada nivell, o tres nivells amb vuit electrodes cada nivell, però en aquests casos la resolució vertical seria significativament inferior. Els cil·lindres de roca pels quals està preparat el sistema experimental definitiu han de mesurar 80 mm d'alçada i 40 mm de diàmetre. El primer nivell està situat a 10 mm de la base de la mostra. La separació entre nivells és de 12 mm fins arribar a l'últim nivell, que es troba a 10 mm del sostre de la mostra.

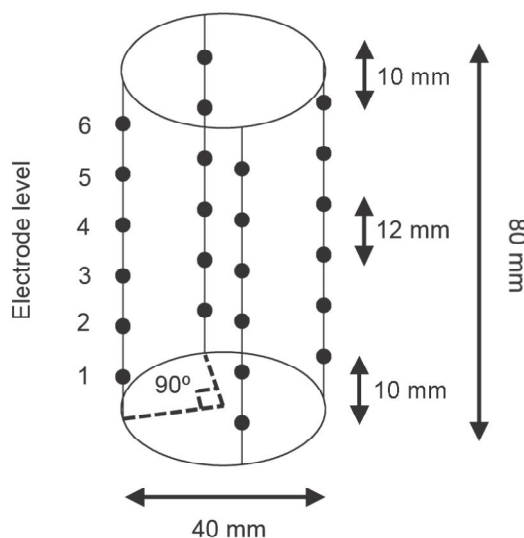


Fig. 3.4. Posició dels electrodes respecte a la mostra cil·lindrica

3.2.2 Seqüència de mesures

Amb n electrodes, es poden efectuar $n(n-1)(n-2)(n-3)/4$ combinacions de parelles de dipols d'injecció i de mesura [Noel and Xu, 1991]. Per $n = 24$, aquest nombre val 63756. S'ha decidit utilitzar un nombre inferior de mesures per reduir el temps d'adquisició. Al disposar de quatre línies verticals d'electrodes (anàlogues a quatre “pous”), s'han explorat noves possibilitats tot utilitzant configuracions que mostregin el màxim possible l'interior de la mostra. Inicialment es va generar una seqüència que incloïa dispositius Wenner, Schlumberger i Dipol–dipol, però finalment es va comprovar que generaven dades significativament més sorolloses que les configuracions escollides per a la seqüència definitiva, en concordança amb Bing and Greenhalgh [2000].

A la Figura 3.5 es mostren les dades sintètiques calculades per un cilindre de roca amb una resistivitat homogènia de $10 \Omega \cdot m$. Aquest exemple permet visualitzar la seqüència de mesures utilitzada. Es poden distingir cinc regions que presenten patrons diferenciats. A la regió A, s'observa un rang molt gran de resistències discretitzades en varis nivells, corresponent a mesures on els dipols d'injecció i de potencial són horitzontals i es van separant progressivament. Dins de la regió A es pot detectar que aquest conjunt de mesures es repeteix quatre cops, cadascun en una orientació diferent. La regió B és semblant a la A, però amb valors més alts de resistència. En aquest cas, els dipols es troben situats als plans diametral del cil·indre. La regió C apareix quatre cops, coincidint amb les quatre orientacions possibles. Es caracteritza per presentar una morfologia cicloïdal de la resistència, corresponent a l'obertura i tancament progressius del dipol de potencial. La regió D és semblant a la C però amb una dispersió menor dels valors de resistència. Els dipols d'injecció i de potencial es troben en plans diferents. Finalment, la regió E és anàloga a la B (els dipols situats als plans diametral) però seguint l'evolució de les regions C i D.

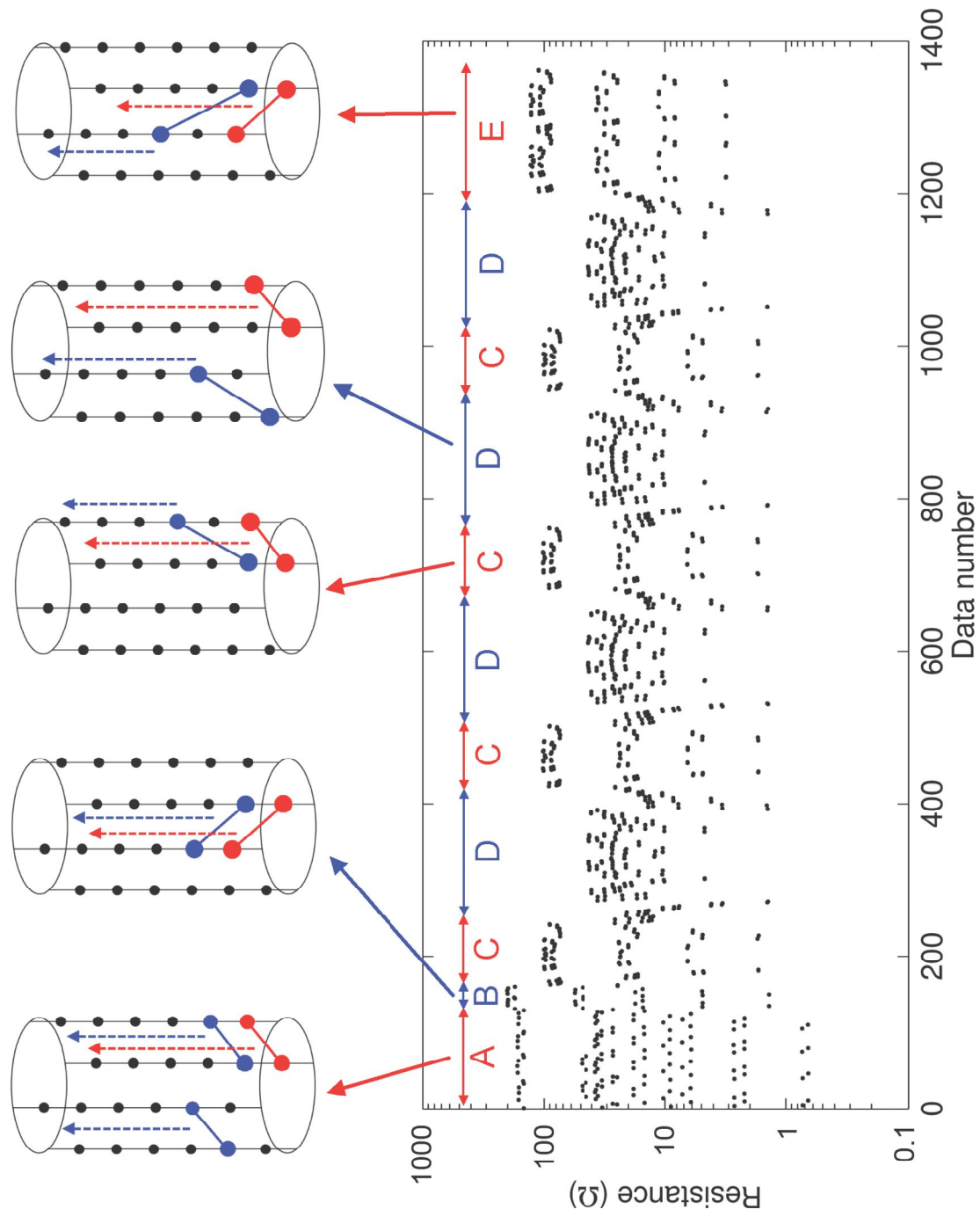


Fig. 3.5. Representació esquemàtica de la seqüència de mesures, on s'han indicat les regions característiques sobre un conjunt de dades sintètiques calculades per a un cilindre de resistivitat $10 \Omega \cdot m$

En una mesura d'ERT completa s'adquireixen 3978 dades, de les quals 1362 (i el mateix nombre de configuracions recíproques, veure 3.2.4) s'utilitzen per a la inversió (veure Capítol 5). La resta de configuracions han estat introduïdes pel programa d'optimització de seqüències OptiPro. Cada electrode intervé en un 16 – 17% de les configuracions, de manera que no hi ha cap electrode que predomini sobre la resta.

3.2.3 Paràmetres experimentals: intensitat injectada i voltatge mesurat

Per efectuar les mesures de tomografia elèctrica, es disposava d'una unitat d'adquisició IRIS Syscal Pro Switch de 10 canals (Figura 3.6), la qual s'utilitza rutinàriament en exploració amb ERT a escala de camp. Inicialment, es desconeixia quina intensitat s'havia d'injectar en mostres de mida centimètrica per tal d'obtenir dades de bona qualitat. En un exemple d'adquisició d'ERT a escala de camp, les intensitats injectades oscil·laven els 10 i els 500 mA, i el potencial mesurat era de l'ordre de 10 mV fins a 1 V. La resolució de l'amperímetre de la unitat d'adquisició és d'1 μ A, i la del voltímetre 1 μ V.



Fig. 3.6. Unitat d'adquisició de dades de tomografia elèctrica IRIS Syscal Pro Switch de 10 canals. Consisteix en un transmissor que permet aplicar un voltatge de fins a 800 V, un receptor que pot mesurar simultàniament en 10 canals amb una resolució d'1 μ V i un multiplexor que distribueix el corrent pels canals requerits a la seqüència de mesures

Als assaigs preliminars amb mostres d'argil·la, descrits a l'apartat 3.3, es va comprovar que, aplicant un voltatge entre els electrodes d'injecció de 12 V (el mínim permès per l'aparell), circulaven entre 5 i 20 mA, i es mesuraven valors de potencial entre 2 mV i 4 V. Pel cas del gres miocè saturat amb salmorra, aplicant 12 V circulaven entre 1 i 5 mA, tot mostrant que, en conjunt, era més resistent que l'argila. Es mesuraven entre 10 mV i 5 V, un rang de valors semblant al de l'argila. Als experiments centrals de la tesi, descrits al Capítol 4, es van haver d'aplicar 100 V per obtenir una senyal comparable: circulaven entre 5 i 25 mA pel cas més conductor i entre 0.1 i 0.35 mA pel cas més resistent. Els voltatges mesurats oscil·laven entre 1 mV i 4 V pel cas més conductor i entre 10 mV i 11 V pel cas més resistent.

En base als rangs de valors mesurats, es pot concloure que, en general, l'error de resolució no és significatiu. Als casos on algun electrode feia mal contacte es van detectar dades amb valors d'intensitat sistemàticament inferiors a 0.1 mA, i es van descartar automàticament.

3.2.4 Qualitat de les dades i caracterització de l'error

Per filtrar les dades de bona qualitat, es solen realitzar dos tipus d'anàlisi de dades. En primer lloc, es descarten les dades amb una baixa repetibilitat, quantificada pel coeficient de variació i, en segon lloc, es desestimen les dades amb un error recíproc relatiu massa alt.

3.2.4.1 Coeficient de variació

Inicialment, l'equip d'ERT repeteix cada injecció (amb una durada especificada per l'usuari) tres vegades i, a continuació, torna a injectar corrent un nombre de vegades addicional especificat al paràmetre *stack min*. Tot seguit computa la

desviació estàndard relativa (també anomenat coeficient de variació) de les dades que ha adquirit fins aquest moment

$$Dev = 100 \cdot \frac{s}{\bar{x}}, \quad (3.4)$$

on s és la desviació estàndard de les dades, i $\bar{x}$ n'és la mitjana. Si el valor de Dev és inferior a un valor llindar Q especificat per l'usuari, s'atura el procés (anomenat de *stacking*) i s'escriu a l'arxiu de dades el valor de la mitjana. Si, en canvi, el valor de Dev és superior al valor llindar, l'equip efectuarà una injecció més i es re-calcularà altre cop el valor de Dev , i així successivament, fins que Dev sigui inferior a Q o fins que s'arribi al nombre màxim permès de repeticions, especificat al paràmetre *stack max*. Després d'efectuar proves amb diversos valors, es va decidir utilitzar els següents valors: *stack min*=2, *stack max*=4, Q =5%. També es va comprovar que una durada del pols d'injecció de 250 ms era suficient per obtenir dades de bona qualitat.

3.2.4.2 Error recíproc relatiu

Per a cada mesura considerada s'ha realitzat la seva mesura *recíproca*, que consisteix a intercanviar els rols d'injecció i de mesura de les parelles d'electrodes. El teorema de reciprocitat afirma que la resistència mesurada ($R = V_{MN} / I_{AB}$) ha de ser la mateixa en ambdós casos i, per tant, la diferència relativa entre la resistència obtinguda en la configuració *normal* (AB MN) i l'obtinguda en la configuració *recíproca* (MN AB), respecte a la mitjana entre les dues dades, proporciona una quantificació de l'error, anomenat *error recíproc relatiu*

$$\varepsilon_R = \frac{R_{normal} - R_{recíproc}}{0.5 \cdot (R_{normal} + R_{recíproc})}, \quad (3.5)$$

3.2.4.3 Models d'error global

L'arxiu de dades que es proporcionarà al programa d'inversió conté, per a cada configuració d'electrodes de la seqüència, un valor de resistència i el seu error. El valor de resistència emprat en aquest treball és la mitjana entre la resistència calculada amb les dades de la mesura normal i la calculada amb les de la mesura recíproca.

En relació a l'error, no s'utilitza directament l'error recíproc calculat per a cada parella de dades (normal i recíproca), com s'ha fet tradicionalment, perquè en general subestima l'error real i no té en compte la correlació entre els errors individuals ni els errors de modelització [LaBrecque *et al.*, 1996; Koestel *et al.*, 2008]. De fet, l'error recíproc es podria considerar una mesura de precisió i no d'exactitud [Koestel *et al.*, 2008]. El fet que es calculi amb només dues dades fa que no sigui estadísticament robust. Per aquestes raons, l'error s'ha caracteritzat seguint el mètode proposat a Mwakanyamale *et al.* [2012], el qual assumeix que depèn de la resistència i es distribueix seguint un model global.

El procés s'exemplifica a la Figura 3.7. Inicialment, es representa l'error recíproc absolut (en Ω) en funció de la resistència en ordre creixent. A continuació, es divideixen les dades de resistència en cinc intervals que continguin el mateix nombre de dades, i de cada interval s'efectua la mitjana tant de la resistència com dels valors d'error recíproc associats. A continuació s'efectua un ajust numèric dels cinc punts obtinguts amb la funció

$$\varepsilon = aR^b, \quad (3.6)$$

on a i b són paràmetres d'ajust de la funció. Finalment, per a calcular l'error de qualsevol dada, s'aplicarà l'equació

$$\varepsilon = aR^b + \varepsilon_{offset}, \quad (3.7)$$

on ε_{offset} és un terme d'error numèric de modelització. Pel nostre cas, s'ha estimat un error de modelització d'un 2% de la resistència (veure 5.3.2) i, per tant, $\varepsilon_{offset} = 0.02 \cdot R$.

En aquest treball, s'ha decidit treballar només amb les parelles de dades (normal i recíproca) que presentaven un error global (calculat amb el model) inferior al 10%.

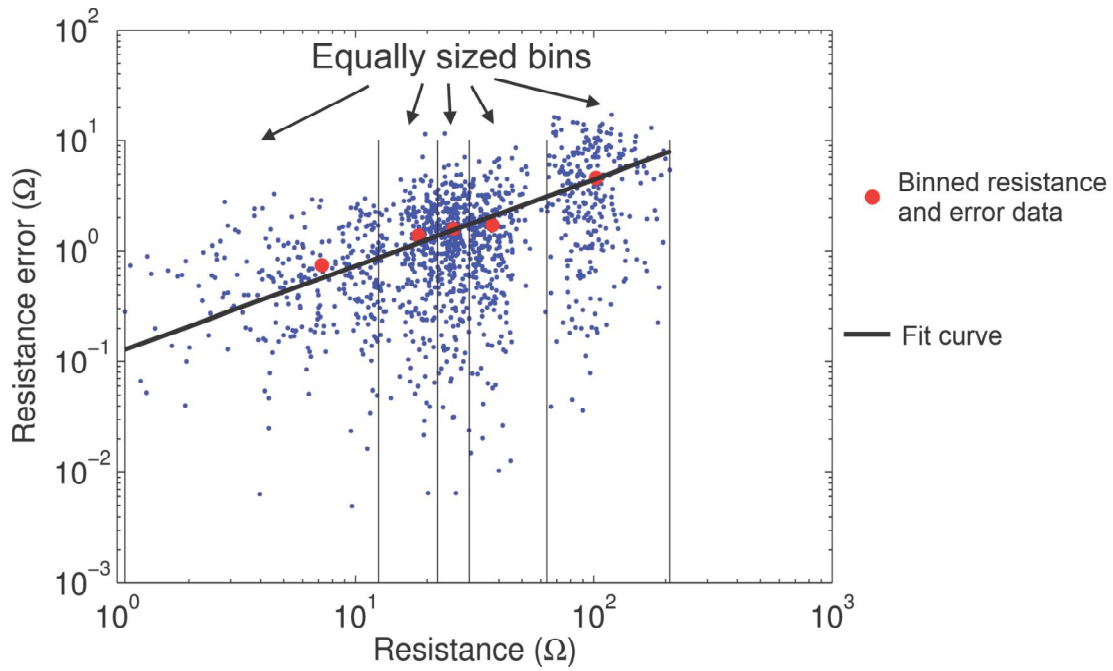


Fig. 3.7. Exemple gràfic d'aplicació del mètode de caracterització del model d'error global detallat a Mwakanyamale *et al.* [2012]

3.3 Validació de la ERT a escala centimètrica

Per tal de comprovar que les solucions proposades als reptes descrits a l'apartat 3.2 eren vàlides, es va efectuar una sèrie de proves amb mostres de mida centimètrica. A continuació es presenten dos dels assaigs més rellevants, els

resultats dels quals van ser claus per a demostrar la viabilitat de la ERT a escala centimètrica. Al primer experiment es van caracteritzar anomalies conductores i resistives a l'interior de cil·lindres d'argila, mentre que al segon es va aconseguir detectar una veta de quars en una mostra de gres d'edat miocena. En aquests experiments, la malla utilitzada en la inversió estava constituïda per prismes triangulars i no era definitiva. A l'apartat 3.5 es discuteix l'elecció de la malla definitiva i la seva discretització.

3.3.1 Caracterització d'anomalies en cil·lindres d'argila

En aquest experiment, els cables de l'equip de tomografia es van connectar a claus d'acer inoxidable de 8 mm de llarg, els quals travessaven les parets d'un tub de PVC que estava ple d'argila (Figura 3.8) i hi penetraven 1 mm. El cil·lindre d'argila delimitat pel tub de PVC mesurava 7 cm de llarg i 3.6 cm de diàmetre, i els nivells d'electrodes estaven separats 10 mm.

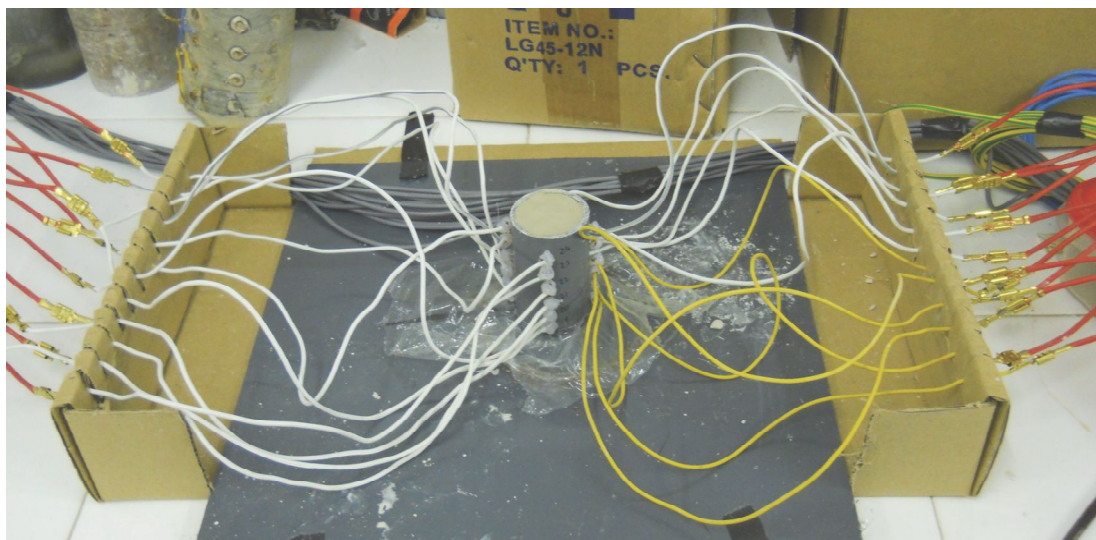


Fig. 3.8. Configuració de l'experiment amb argila. L'extrem dels cables estava enrotllat al voltant del cap dels claus i el conjunt es segellava amb cola termofusible per donar-li rigidesa. Al fons es poden veure restes dels primers experiments realitzats en margues impermeables

Es van realitzar cinc proves diferents, els resultats de les quals es comparen a la Figura 3.9. A la primera prova es va caracteritzar el cilindre d'argila sencer (Figura 3.9a), tot obtenint un valor mitjà de resistivitat al voltant de $10 \Omega \cdot m$. Per a la resta de proves, es va fer un forat de 3 cm de fondària a la part superior del cilindre. El forat suposava una anomalia de resistivitat respecte a l'argila, ja que en dos casos es va deixar buit (ple d'aire), éssent una anomalia resistiva (veure Figura 3.9c i e) i als altres dos casos es va omplir amb salmorra (30 g/l NaCl), representant una anomalia conductora (Figura 3.9b i d). A part de determinar si la ERT caracteritzava correctament les anomalies, es va investigar si era capaç de localitzar-les tant si estaven situades al centre (Figura 3.9b i c) com desplaçades (Figura 3.9d i e).

En totes les mesures es van aplicar 12 V, el mínim permès per l'aparell. Més del 90% de les dades va presentar un error recíproc relatiu inferior al 10%. Als models obtinguts mitjançant la inversió de les dades es pot comprovar que els resultats de l'experiment són molt satisfactoris, ja que en tots els casos la tomografia va ser capaç de caracteritzar i localitzar les anomalies de resistivitat presents a la mostra. La resistivitat recuperada per a la salmorra (entre 0.1 i 0.2 $\Omega \cdot m$) és molt propera al valor real ($0.230 \pm 0.001 \Omega \cdot m$), el qual es va obtenir amb un conductímetre (veure Taula 6.3). La resistivitat recuperada per a l'aire que omplia el forat buit (al voltant de 100 $\Omega \cdot m$), en canvi, és molt inferior a la resistivitat real de l'aire (de l'ordre de $10^{16} \Omega \cdot m$). Semblaria que, en presència d'anomalies molt resistives amb un gran contrast de resistivitats, si no hi ha algun electrode directament en contacte amb l'anomalia, la ERT no recuperaria valors prou alts de resistivitat. Tot i així, la ERT ha detectat l'anomalia i ha determinat que era resistiva, recuperant un contrast de resistivitats d'aproximadament 10. Pel que fa a la localització de les anomalies, la ERT també ha estat capaç de situar correctament el forat, tant pel que fa a la posició (centrada o desplaçada) com la seva profunditat.

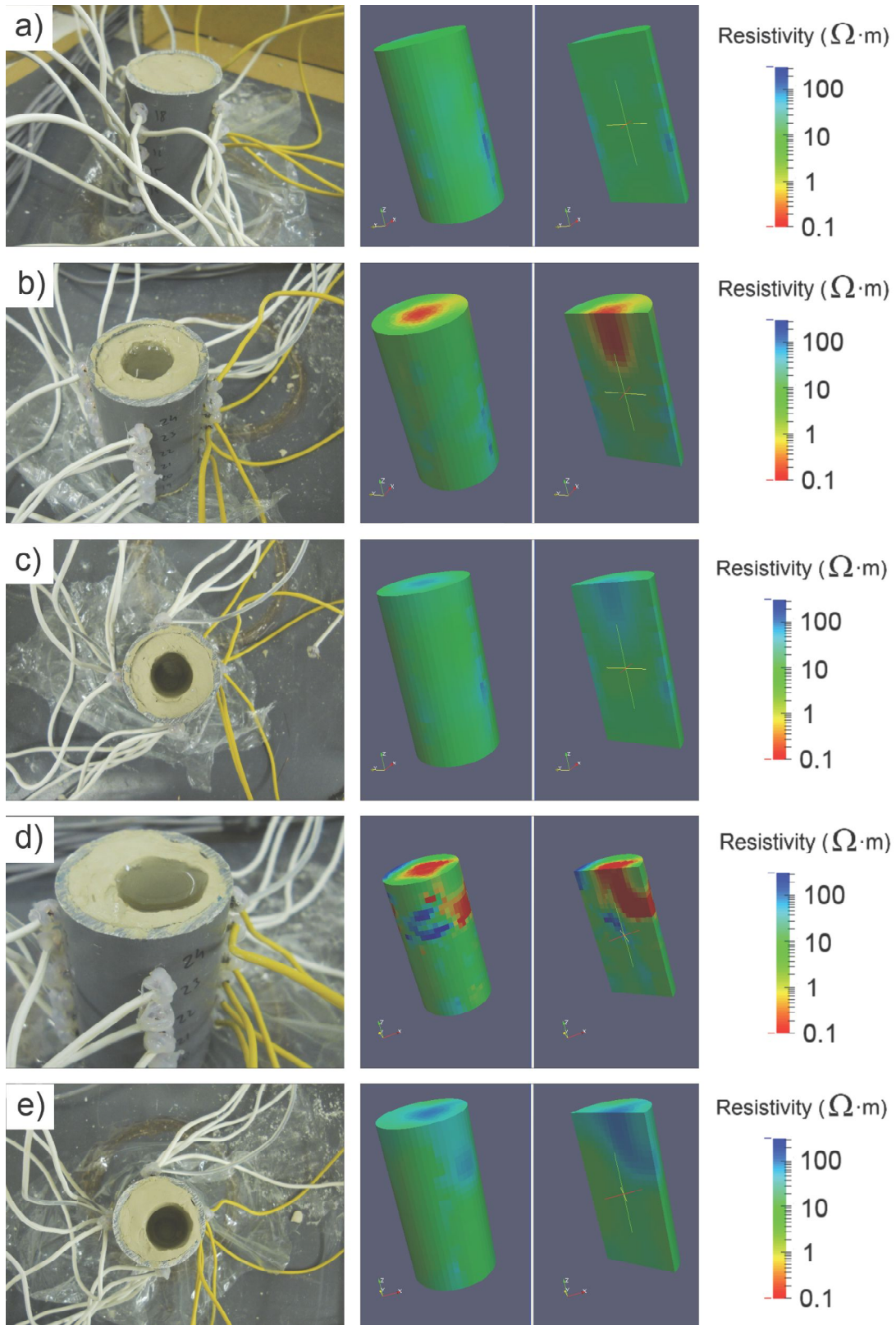


Fig. 3.9. Resultats principals de les proves efectuades amb cil·lindres d'argila i models resultants de la inversió de les dades adquirides per a cada cas; a) cil·lindre d'argil·la; b) amb un forat al mig ple de salmorra conductora (30 g/l NaCl); c) amb un forat ple d'aire; d) amb un forat no centrat ple de salmorra; e) amb un forat no centrat ple d'aire

Un resultat no esperat d'aquests experiments va ser pel cas de la Figura 3.9d i e, ja que els models resultants semblaven a priori incorrectes. Un cop l'argila es va extreure del PVC, però, es va comprovar que, efectivament, hi havia un conducte a la part inferior del forat que connectava amb l'exterior del cil·indre, de manera que la salmorra (i l'aire) podia acumular-s'hi (Figura 3.10).

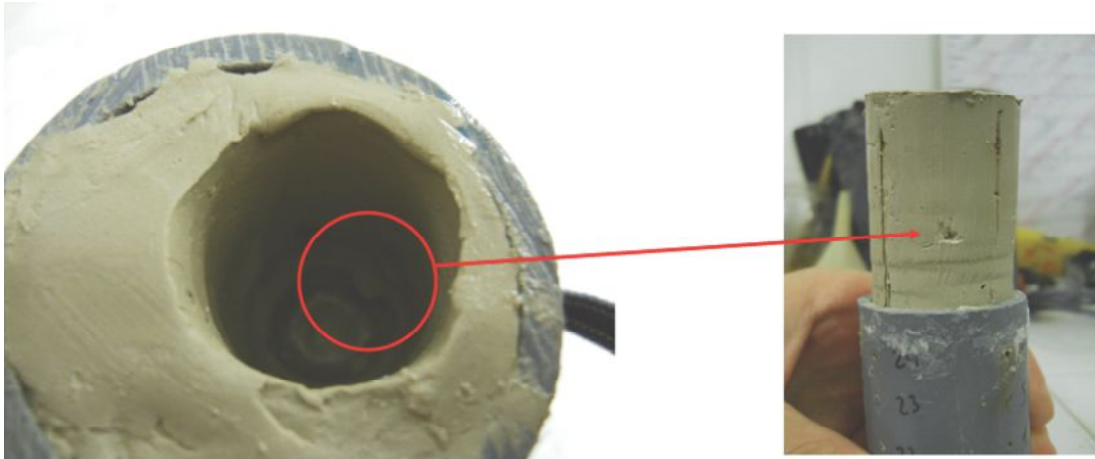


Fig. 3.10. Comprovació final dels models de la Figura A.2d i e, on es fa patent que la tomografia havia detectat la presència d'un conducte des del fons del forat fins a l'exterior del cil·indre

3.3.2 Detecció d'una veta en un gres miocè

En aquest experiment de validació, es van efectuar mesures de tomografia en una mostra de gres d'edat miocena saturat de salmorra per immersió (sense fer-hi el buit prèviament). Els electrodes eren plaques de coure enganxades a la roca amb pintura conductora de plata. També es van aplicar 12 V, i les dades adquirides van ser de molt bona qualitat. A la Figura 3.11 es pot comprovar que el model resultant obtingut reproduïx correctament la morfologia de la veta, que és aïllant elèctric. Aquest resultat, juntament amb els resultats dels experiments de l'apartat 3.3.1, constitueixen arguments de pes per a validar la ERT com a tècnica aplicable a escala centimètrica. També demostren que la disposició dels electrodes és adequada per a caracteritzar l'estructura elèctrica de les mostres.

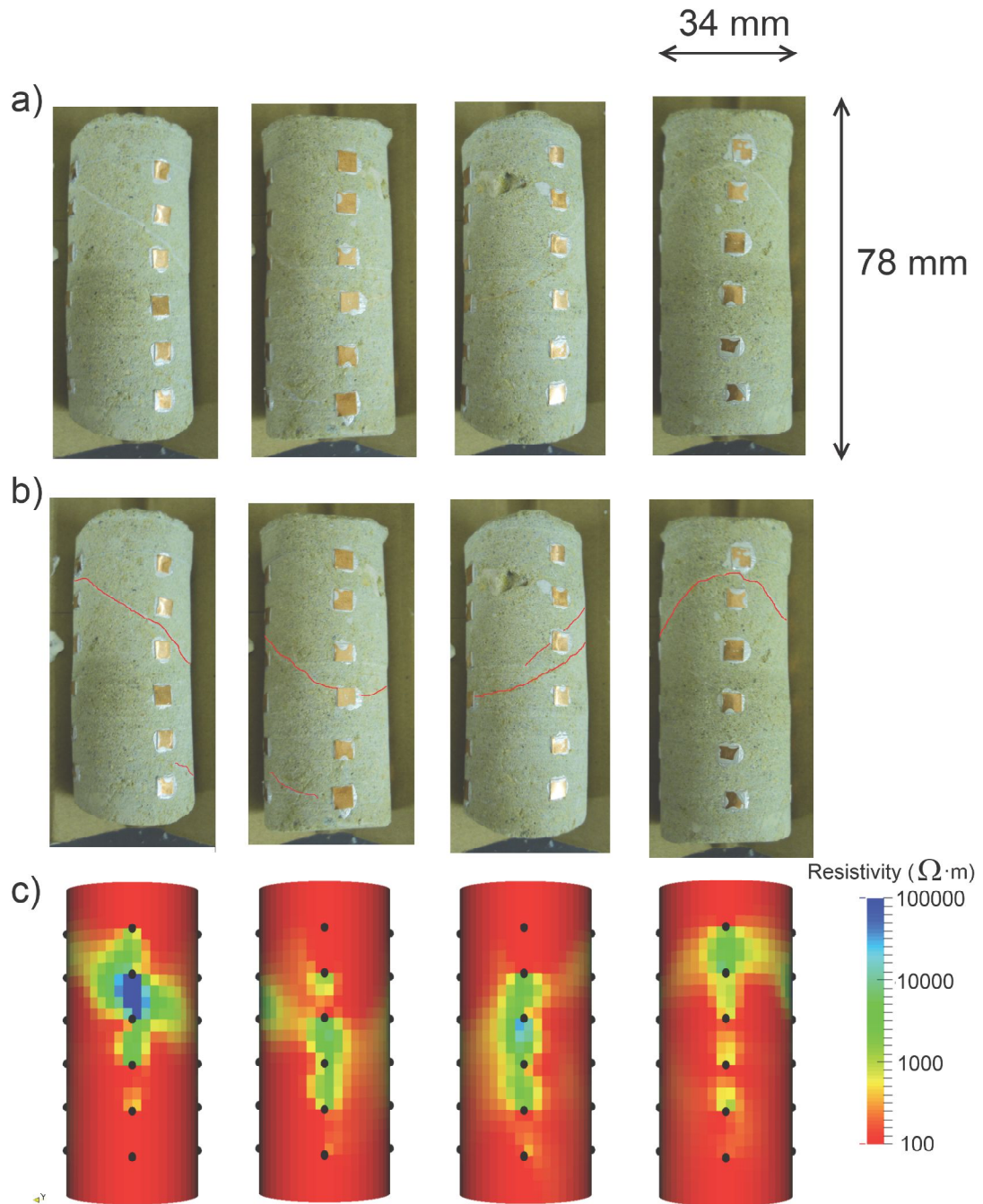


Fig. 3.11. Model obtingut per a les dades de tomografia adquirides sobre un gres miocè saturat de salmorra molt salina (30 g/l NaCl). a) aspecte exterior del gres amb les plaques de coure adherides; b) interpretació de la veta que travessa la mostra; c) models de resistivitat obtinguts amb ERT. Es pot comprovar que la veta està ben caracteritzada, éssent contínua al llarg de les diferents orientacions del model i passant entre els electodes corresponents

4 Sistema experimental d'alta pressió

Un cop validada la ERT a escala centimètrica (veure 3.3), ja es podia abordar la investigació del sistema roca-salmona-CO₂. Primerament, calia determinar els requeriments tècnics dels experiments plantejats. El fet de treballar amb CO₂ gas requeria, en primer lloc, un sistema de tubs per a poder-lo conduir des de la bombona que el contenia fins a la roca. També caldria que la mostra estigués envoltada d'una peça impermeable, per tal de mantenir el CO₂ dins la porositat de la roca. Aquesta peça, a més, hauria de contenir els electrodes, tot assegurant que aquests estiguessin en contacte amb la roca. Com que un dels experiments requeria l'ús de CO₂ a alta pressió, també calia que el sistema experimental permetés aplicar pressió de confinament sobre la peça impermeable per tal de contenir la pressió interior i mantenir el sistema estable.

Gràcies a un procés intensiu d'experimentació amb diversos materials i elements, s'ha pogut dissenyar i muntar un sistema experimental funcional que reuneix tots els requisits exposats al paràgraf anterior. La configuració que es detalla és l'última versió, amb la qual s'han pogut realitzar amb èxit els experiments principals plantejats en aquesta tesi. Una de les característiques més importants d'aquest disseny és que permet efectuar mesures de tomografia elèctrica sense haver d'interrompre l'experiment per a col·locar els electrodes.

4.1 Descripció general i funcionament

El sistema experimental (veure Figura 4.1) consisteix en una cel·la de confinament de tipus Hassler que conté la mostra, la qual va encaixada en un tub de fluoroelastòmer (en el nostre cas, Viton[®] de la marca DuPont[™]) que conté els electrodes. Els cables connectats als electrodes surten de la cel·la a través d'un tub d'acer inoxidable taponat amb resina epoxy i estan connectats a una unitat d'adquisició de dades d'ERT Iris Syscal Pro Switch de 10 canals (veure Figura 3.6). Els èmbols superior i inferior de la cel·la, que subjecten la mostra, estan perforats i permeten la circulació de fluïds pressuritzats a través de la roca. Els fluïds (salmorra, CO₂, aire) es condueixen cap a la mostra per un circuit de tubs d'acer inoxidable, controlat per diverses vàlvules preparades per a resistir l'alta pressió. Un manòmetre indica en tot moment la pressió dins la part del circuit que comunica amb la mostra. També es disposa de dues bombones de gas, una amb N₂ (utilitzat per a mantenir la pressió de confinament sobre el tub de Viton), i l'altra amb CO₂, utilitzat per a saturar part o la totalitat de la mostra durant els experiments principals. Una bomba de buit permet eliminar l'aire de tot el sistema prèviament a saturar-lo amb salmorra. Actualment no es disposa d'una funda tèrmica ni de reguladors de pressió però la modularitat del sistema permet incorporar-los.

El funcionament general del sistema es resumeix a continuació. Inicialment s'ha de fer el buit a la roca. Per aconseguir-ho, es tanquen les vàlvules P1 i P2, i s'obren les vàlvules internes (V1 a V4). S'acciona la bomba de buit (VAC) i, un cop s'ha assolit el buit al sistema, es tanca V2 (al tractar-se d'una vàlvula triple, segueix permetent el pas de fluïd entre V1 i V3). A continuació es carrega la xeringa amb salmorra i es connecta a la vàlvula P2. Quan aquesta s'obre, la salmorra ascendirà, per l'acció del buit, travessant V4 (una vàlvula de seguretat que es tanca quan el sistema està a alta pressió) i arribant a la part base de la mostra. La injecció de CO₂ s'efectua pel circuit superior. Si és a baixa pressió, es

pot injectar manualment amb una xeringa amb vàlvula Luer-Lock™ a través de la vàlvula P1. El CO₂ circularà a través de V1, V2 i V3 i arribarà a la roca, omplint la porositat restant. Si la injecció és a alta pressió, a V1 s'hi connecta el tub d'acer inoxidable que ve directament des de la bombona de CO₂. La vàlvula V3 evita el pas de fluid entre V2 i la roca, però no entre la roca i el manòmetre. La seva funció és com a connexió de seguretat pel manòmetre.

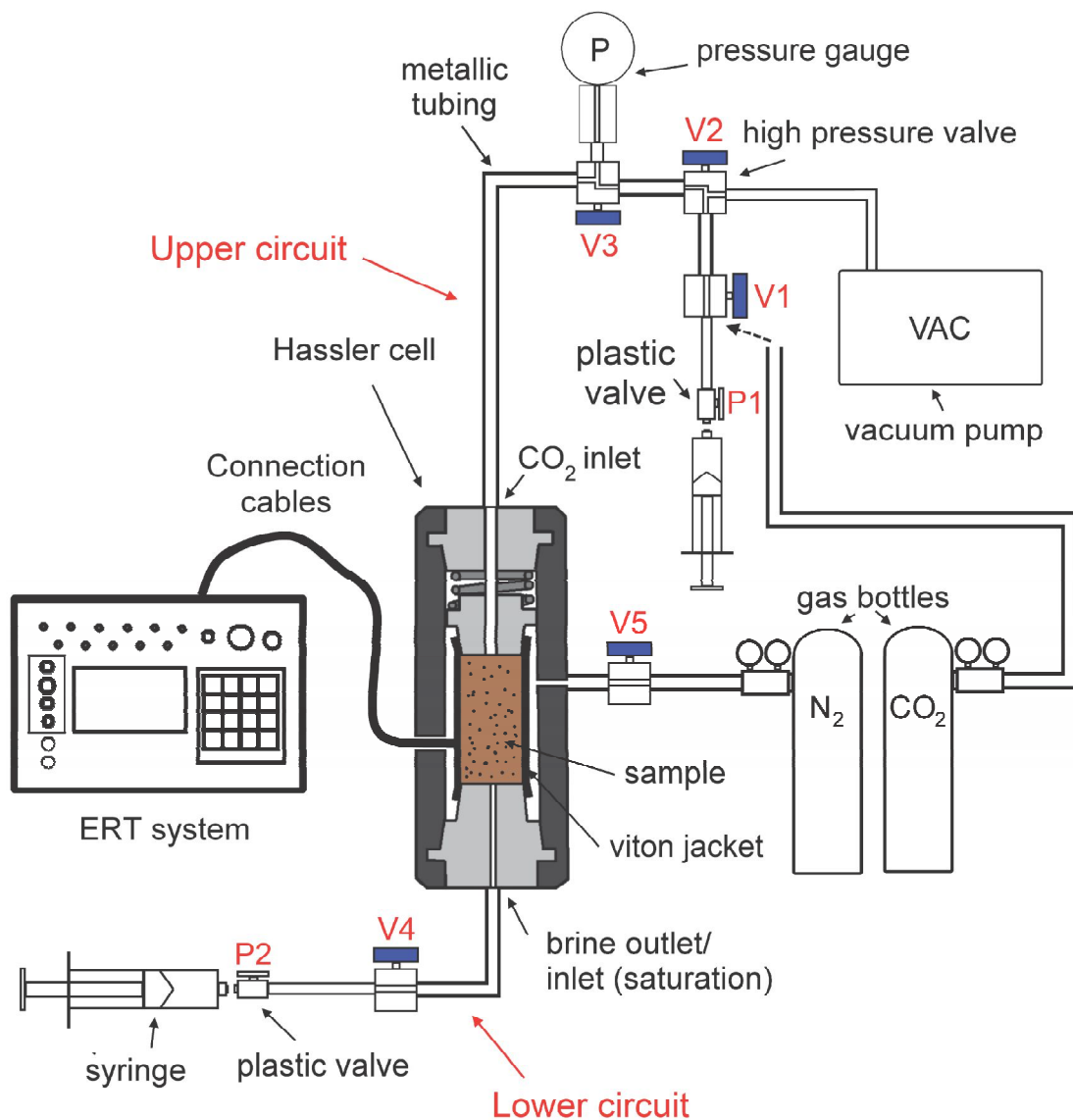


Fig. 4.1. Diagrama esquemàtic que inclou els components principals del sistema experimental. V1 – V5: vàlvules d'acer inoxidable. P1, P2: vàlvules de plàstic

4.2 Cel·la de confinament

La cel·la de confinament, cedida pel Laboratoire Geosciences Montpellier, està fabricada en acer inoxidable i pot suportar una pressió interior de fins a 370 bar (Figura 4.2). Les seves dimensions requereixen que les mostres de roca siguin cilíndriques i mesurin 40 mm de diàmetre i 80 mm de llargada.

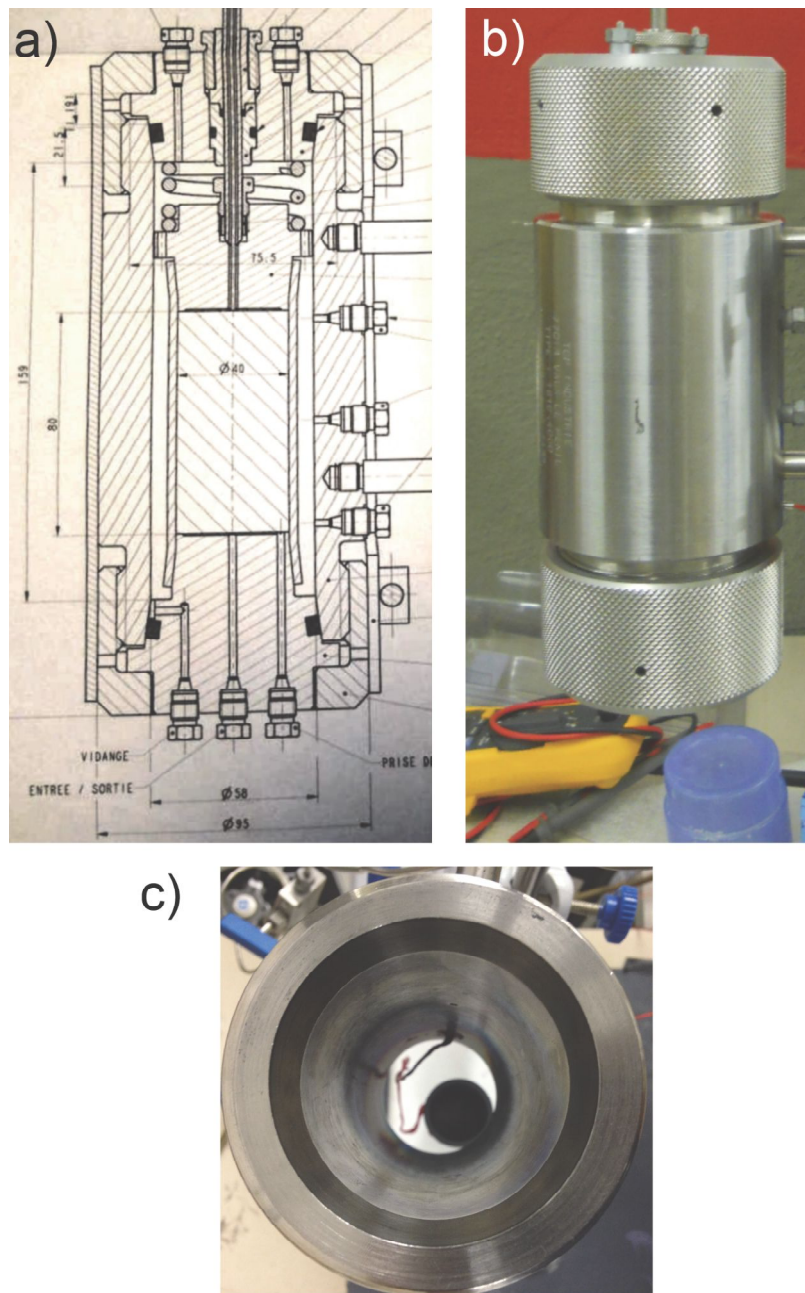


Fig. 4.2. a) Plànol tècnic de la cel·la de confinament cedida pel Laboratoire Geosciences Montpellier (disseny i fabricació: Top Industrie); b) exterior de la cel·la c) interior de la cel·la

La funció de la cel·la és contenir la mostra i permetre-hi l'aplicació de pressió de confinament. Els èmbols perforats superior (Figura 4.3a i b) i inferior (Figura 4.3c i d) subjecten la roca (Figura 4.4) i permeten l'arribada i la distribució de fluïds als seus extrems.

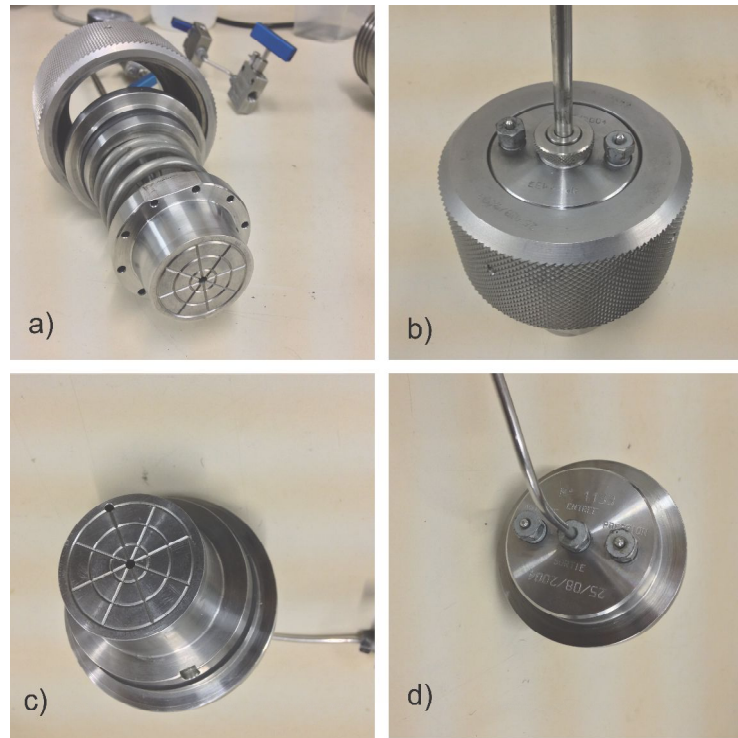


Fig. 4.3. Detall dels èmbols superior (a, b) i inferior (c, d). El patró estriat permet que el fluïd es distribueixi per tota la superfície de la roca i hi percoli homogeniament. Els cargols que s'observen als èmbols estan segellant obertures que permeten insertar-hi sensors o connectar-hi tubs



Fig. 4.4. Relació entre els èmbols i el tub de Viton que conté la mostra

4.3 Circuits i connexions

Els circuits superior i inferior del sistema (veure Figura 4.5) es van configurar específicament per a les operacions que s'havien de dur a terme durant els experiments. Els tubs que van des dels èmbols superior i inferior fins a les vàlvules V1 i V4, respectivament, són d'acer inoxidable, amb un diàmetre extern de 3.2 mm i un gruix de paret de 0.7 mm per poder suportar altes pressions. Les vàlvules també són d'acer inoxidable i resisteixen pressions de fins a 1000 bar. Els tubs a partir de les vàlvules V1 i V4 són de plàstic (Teflon[®] de la marca DuPont[™]), així com també les vàlvules dels extrems d'ambdós circuits. Aquestes vàlvules són de tipus Luer-Lock[™], un sistema que permet un acoblament estanc de xeringues de tres cossos amb sortida Luer-Lock[™] (Figura 4.6).

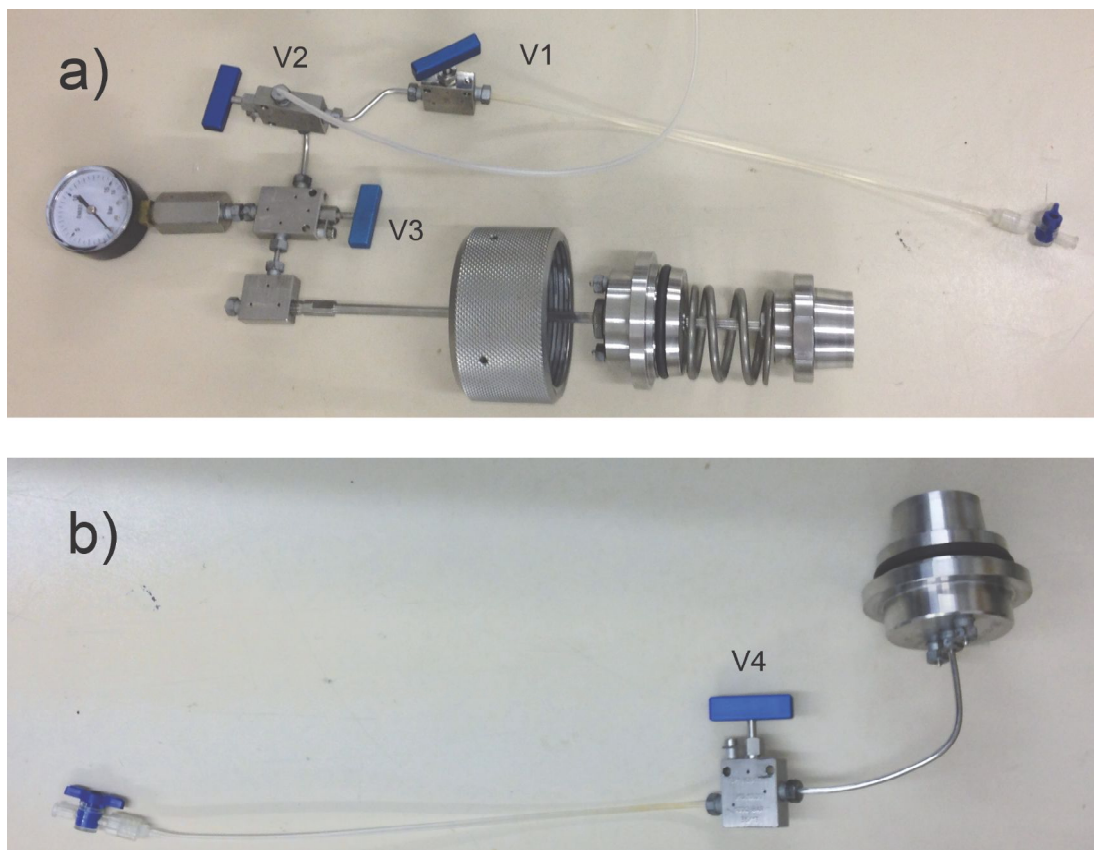


Fig. 4.5. a) Detall del circuit de fluids superior. Està constituït completament d'acer inoxidable des de l'èmbol fins la vàlvula V1; b) Detall del circuit inferior. Està constituït d'acer inoxidable des de l'èmbol fins la vàlvula V4

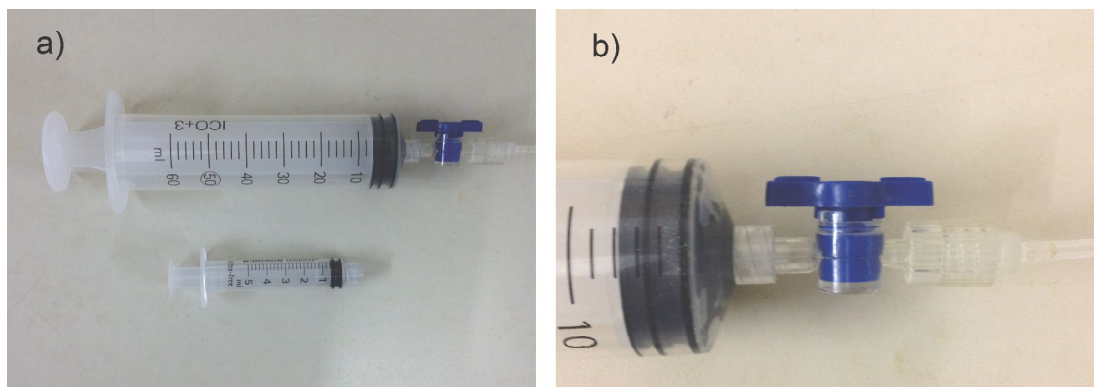


Fig. 4.6. a) Xeringues de tres cossos amb sortida Luer-Lock™ utilitzades als experiments; b) detall de la vàlvula Luer-lock™

A la Figura 4.7 es mostra la connexió entre la cel·la i la bomba de buit. És una bomba d'oli rotativa (model E2M2). La pressió mínima que pot aconseguir és d'aproximadament 10^{-6} bar.

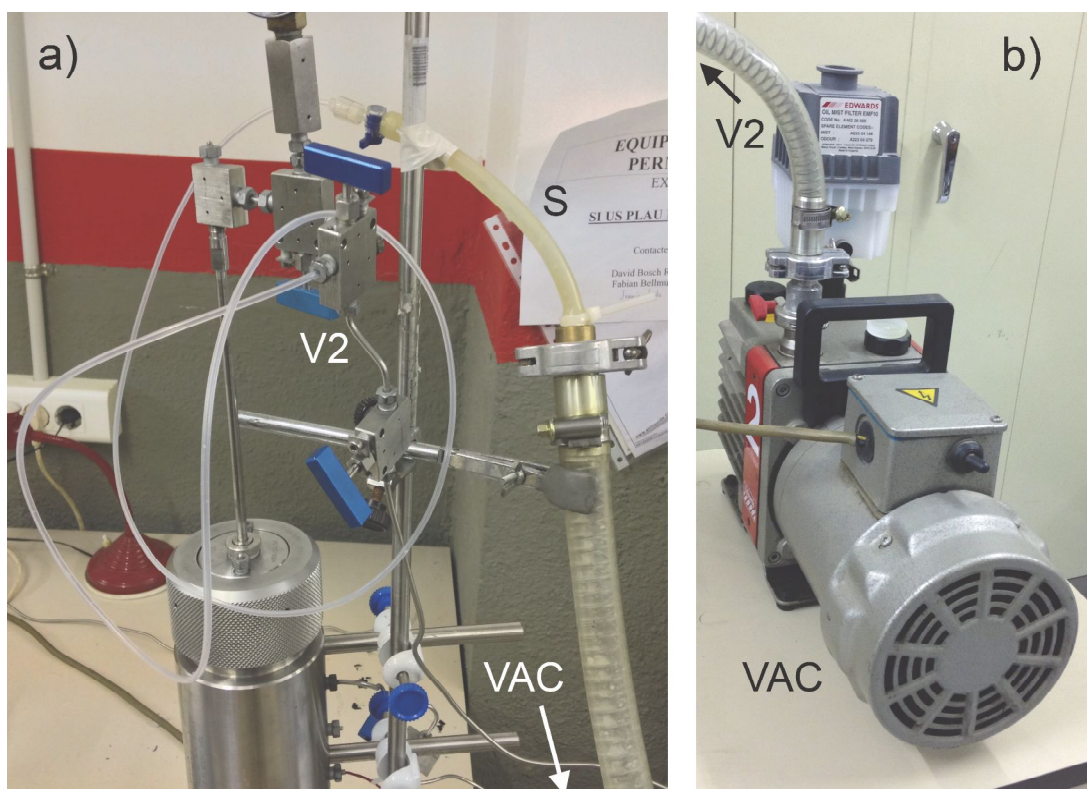


Fig. 4.7. a) Connexió entre el circuit superior de la cel·la i la bomba de buit (VAC). El tub de Teflon que surt de la vàlvula V2 està empalmat amb el tub de silicona S amb una vàlvula de Teflon enganxada al tub de silicona amb resina epoxy (Araldite® de la marca Ceys). El tub de silicona està connectat a pressió i assegurat amb una brida al tub que va a la bomba de buit (b)

A la Figura 4.8 es mostren les connexions de les bombones de gas amb la cel·la. La connexió de la bombona de CO_2 (Figura 4.8a) amb la vàlvula V1 només s'efectua quan l'experiment requereix que estigui a alta pressió, mentre que la connexió de N_2 (Figura 4.8b) amb la cel·la és permanent. El pas de N_2 per aplicar la pressió de confinament es regula amb la vàlvula V5.

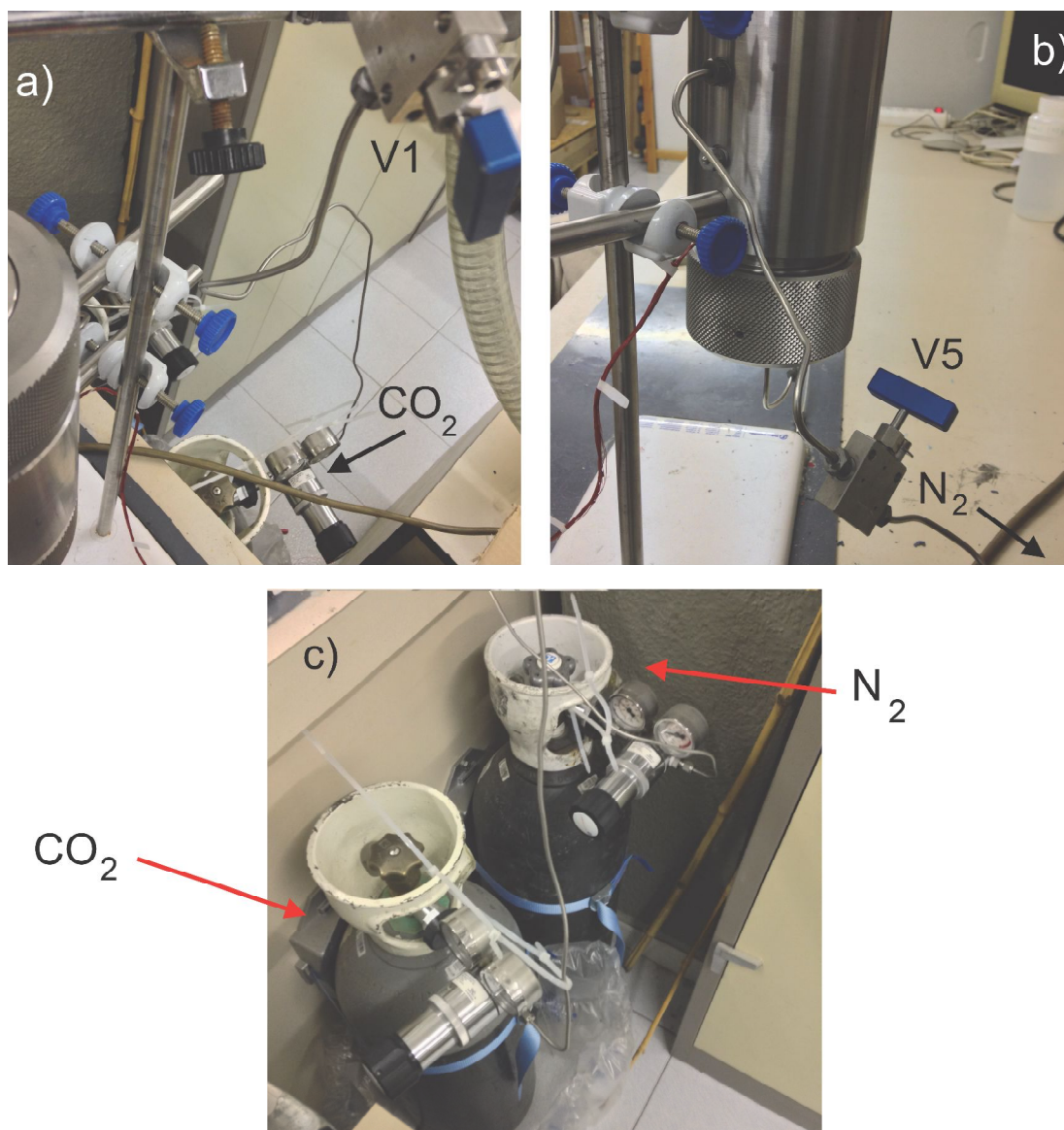


Fig. 4.8. Detall de les connexions directes entre les bombones de gas i la cel·la; a) CO_2 amb la vàlvula V1; b) N_2 amb el lateral de la cel·la a través de V5; c) bombones de gas amb els reguladors de pressió de sortida acoblats. Les bombones estan subjectades a la taula amb un sistema que evita que es tombin. Com a mesura addicional de seguretat, els tubs d'acer inoxidable s'asseguren amb brides per evitar una fuetada si la connexió fallés

4.4 Tub de Viton

La peça clau que permet efectuar mesures de tomografia elèctrica a diferents condicions de pressió, sense haver d'interrompre l'experiment, és el tub de Viton que envolta la roca i que conté els 24 electrodos que es troben en contacte amb la superfície exterior de la mostra (Figura 4.9).

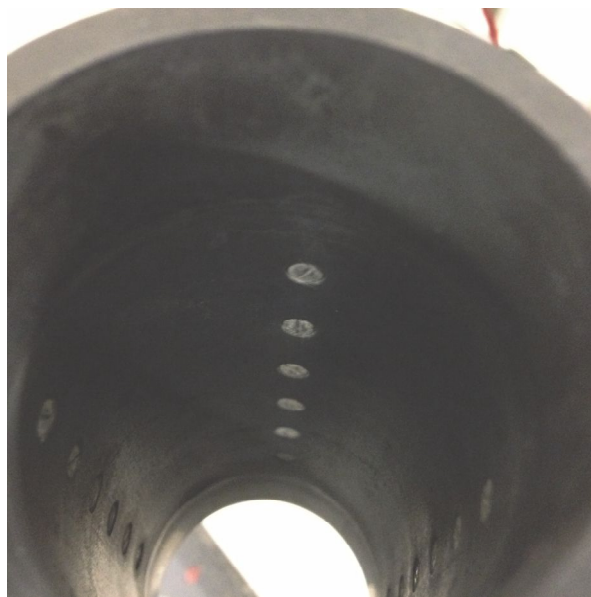


Fig. 4.9. Interior del tub de Viton on es poden veure els electrodos

La decisió d'utilitzar Viton és el resultat de l'experimentació amb múltiples materials. Inicialment, el tub es va fabricar manualment amb silicona per a motlles, però es va descartar per resultar massa flexible i poc resistent a la manipulació continuada. També es va provar d'utilitzar un tub de goma de cautxú, que va resultar ser elèctricament conductora. En una ocasió es va considerar utilitzar làtex, però aquest ofereix una resistència mecànica semblant a la de la silicona i és molt més difícil de treballar. El Viton és un fluoroelastòmer, aïllant de l'electricitat, que presenta una excel·lent resistència química, tèrmica i mecànica i, al mateix temps, és lleugerament compressible, de manera que es pot adaptar a la rugositat de la roca tot impermeabilitzant-la efectivament. Per a les tres versions de prova i per a la versió final, es van utilitzar tubs de Viton cedits pel Laboratoire Geosciences Montpellier. Es van haver de mecanitzar al Taller

Mecànic de la Facultat de Física de la Universitat de Barcelona, amb un torn mecànic d'alta precisió, per acomodar-se a les dimensions de la cel·la i per acollir els electodes.

La integració dels electodes dins del tub de Viton està esquematitzada a la Figura 4.10a. A la rosca de cada cargol hi ha enrotllat l'extrem d'un cable de coure de 0.2 mm de diàmetre (Figura 4.10b). El contacte entre el cable i l'electrode està homogeneïtzat amb pintura de plata conductora. El conjunt està recobert amb pintura plàstica (de la marca Plasti-dip). El forat del Viton dins del qual hi ha col·locat l'electrode amb el cable està omplert amb resina epoxy (Araldite® de la marca Ceys) per evitar que hi pugui haver fugues de fluïd entre la mostra i l'exterior i, al mateix temps, per a protegir-los de la pressió de confinament. L'ús de la resina epoxy és essencial perquè és l'únic material que ha demostrat tenir unes propietats adhesives prou fortes per a segellar l'interior de la mostra de les altes pressions exteriors, una resistència química als àcids excel·lent i una alta resistència a la temperatura. Proves prèvies per a segellar els electodes inclouen l'ús de Leak-lock (útil a baixa pressió, però de ràpida degradació amb la pressió), resina de poliéster (eficaç però difícil de manipular, al tractar-se d'una resina bi-component, i altament tòxica per inhalació), silicona i cola termofusible (aquesta amb pobres propietats adhesives, segellants i tèrmiques).

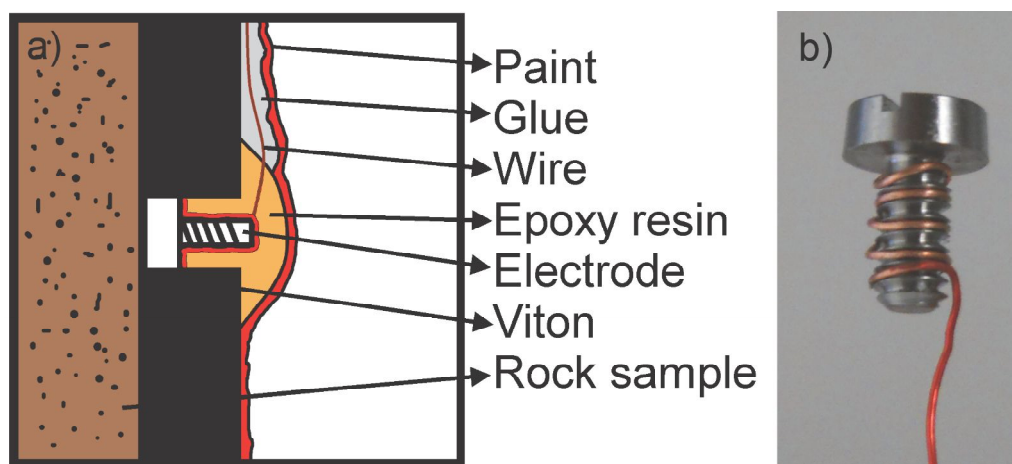


Fig. 4.10. a) Esquema de la integració dels electodes dins del tub de Viton; b) detall de l'acoblament del cable a l'electrode

La pintura plàstica que recobreix els electrodes permet una separació neta entre aquests i la resina, en cas que calgués efectuar alguna modificació posterior. A la superfície exterior del Viton, els cables estan recollits i immobilitzats al tub amb cola termofusible (o resina en cas que s'hagi de treballar a alta temperatura) per tal de protegir-los de la pressió de confinament (Figura 4.11a). Tot el conjunt està finalment recobert amb pintura plàstica per a més protecció i com a indicador de possibles fugues (Figura 4.11b). Després d'haver provat diferents pintures i materials (cinta aïllant, TeflonTM, pintura impermeabilitzant, segellant de juntes, combinacions varies dels materials anteriors, etc), s'ha considerat el Plasti-dip com la millor opció perquè fa la funció protectora i al mateix temps es pot retirar sense haver de rascar el tub de Viton en cas que calgués fer alguna modificació o reparació.

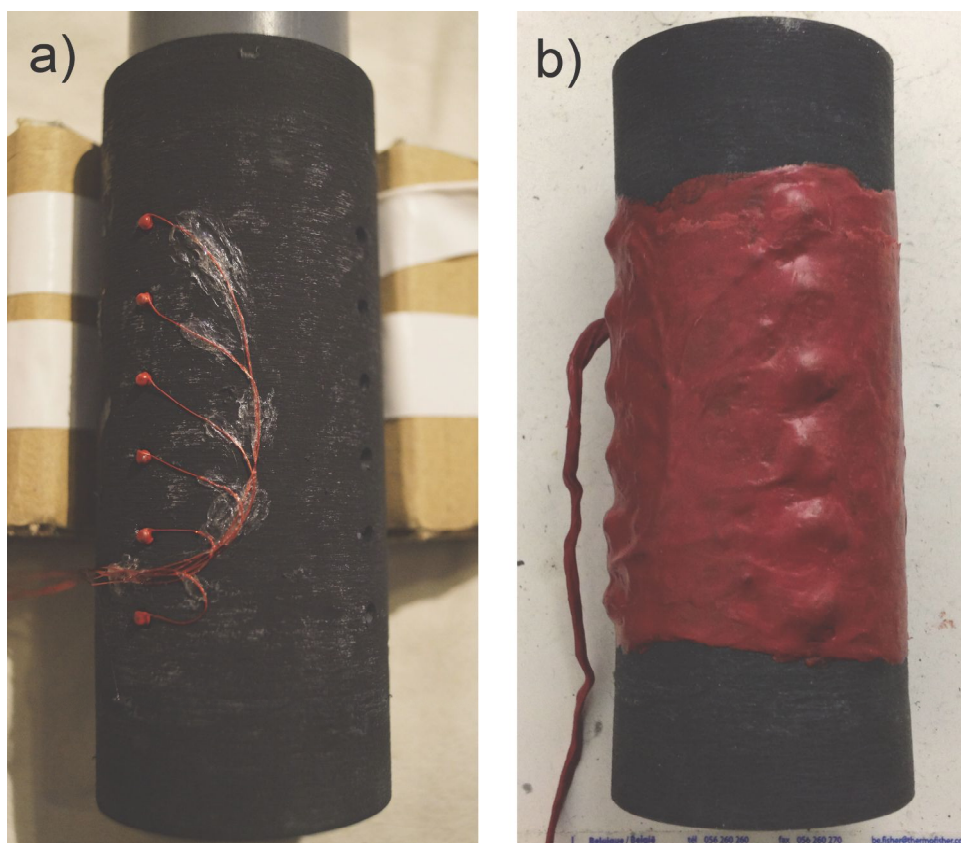


Fig. 4.11. a) Detall del tub de Viton durant el procés de preparació. Els sis electrodes ja estan col·locats i pintats amb Plasti-dip, esperant a ésser segellats amb resina epoxy (es poden veure els cables recollits i recoberts amb cola termofusible); b) aspecte final exterior del tub de Viton. Es poden veure els 24 cables recollits en un grup pintat amb Plasti-dip per a protegir-los de possibles rascades

Pel que fa als 24 cables, la seva sortida de la cel·la s'efectua a través d'un tub d'acer inoxidable acoblat a la cel·la i omplert amb resina epoxy (Araldite® de la marca Ceys), per poder mantenir la pressió de confinament constant i protegir els cables del possible moviment ocasionat per l'entrada de N_2 a la cel·la (Figura 4.12). L'altre extrem dels cables va connectat a l'equip d'adquisició mitjançant un adaptador i una sèrie de connexions intermèdies (4.13).

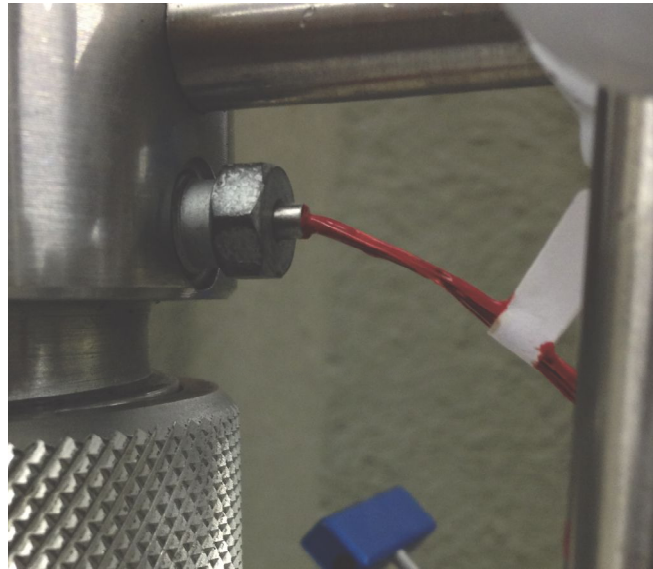


Fig. 4.12. Detall de la sortida dels 24 cables de la cel·la. El diàmetre intern del tub d'acer inoxidable és d'1.8 mm

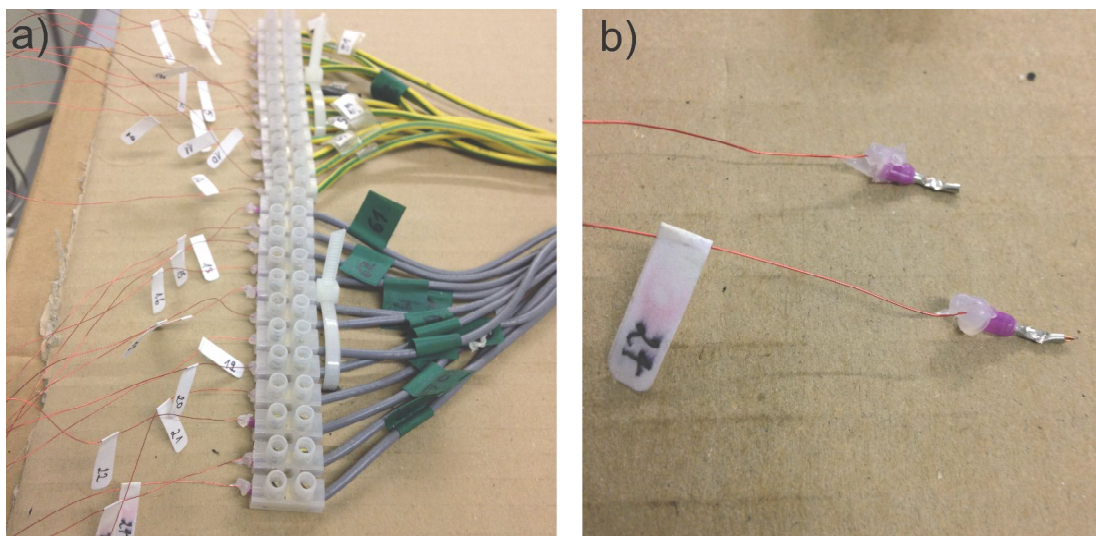


Fig. 4.13. a) Connexió dels cables a l'adaptador que condueix a l'equip d'adquisició; b) detall de la unió als connectors amb cola termofusible

5 Inversió

L'objectiu final de la tomografia elèctrica és determinar la distribució de resistivitats a l'interior de la mostra. El procés d'inversió consisteix a trobar un model que sigui coherent amb les observacions. En aquest capítol, inicialment s'exposa el mètode d'inversió que segueix el programa utilitzat, així com també s'introdueix la inversió time-lapse. A continuació, es descriu la malla d'inversió construïda específicament per aquest treball i, mitjançant l'anàlisi de casos sintètics, s'investiga la dependència de la inversió amb el valor inicial del paràmetre de regularització i la resistivitat del model inicial.

5.1 Inversió amb *R3t*

Per invertir les dades de tomografia elèctrica, en aquest treball s'ha utilitzat el programa *R3t* [Binley, 2014]. És un codi d'inversió 3D específic per a ERT. El programa utilitza un esquema d'elements finits, en el qual el domini d'inversió (la zona de la qual es vol obtenir la distribució de resistivitats) es discretitza en prismes triangulars o tetrahedres. Aquesta discretització també es coneix com a *malla* (veure 5.3). Quan cada element de la malla té assignat un valor de resistivitat, el conjunt constitueix el que s'anomena *model de resistivitats*. Com que el programa té implementada la descripció matemàtica dels fenòmens físics involucrats en la tomografia elèctrica, a partir d'un model de resistivitats es poden

calcular les dades que s'obtidrien si s'efectués una mesura. Aquest procés s'anomena *modelització* o *problema directe*, i les dades sintètiques obtingudes s'anomenen *respostes*. Com que el camp de potencial no es pot caracteritzar completament perquè s'adquireix un conjunt finit de punts de mesura, es diu que, en tomografia elèctrica, el problema invers és no únic. Així doncs, un conjunt de dades d'ERT pot, en general, estar explicat per infinits models de resistivitat diferents.

5.1.1 Funció objectiu

El procés d'inversió, en termes matemàtics, és un problema d'optimització, en el qual es busca el mínim d'una funció objectiu [Kemna, 2000]

$$\Psi(\mathbf{m}) = \Psi_d(\mathbf{m}) + \alpha \Psi_m(\mathbf{m}), \quad (5.1)$$

on $\mathbf{m}$ és el vector de paràmetres del model (en el nostre cas, un vector amb els valors de resistivitat de tots els elements del model), Ψ_d és una mesura de la discrepància entre les dades experimentals i les respostes (dades sintètiques) calculades pel model $\mathbf{m}$, Ψ_m és una funció objectiu que conté les característiques del model desitjades i α és un nombre real positiu que es coneix com a paràmetre de regularització.

La discrepància entre les dades i les respostes s'expressa com

$$\Psi_d = \sum_{i=1}^N \left(\frac{\ln(d_i) - \ln(f_i(\mathbf{m}))}{\varepsilon_i} \right)^2, \quad (5.2)$$

on N és el nombre de dades, d_i és la i -èssima dada, f_i la i -èssima resposta del model $\mathbf{m}$ i ε_i és l'error relatiu de la i -èssima dada. El codi R3t utilitza com a

critèri d'aturada del procés d'inversió una quantitat derivada de la discrepància, l' ε_{RMS} (*root mean square error*)

$$\varepsilon_{RMS} = \sqrt{\frac{\Psi_d}{N}}, \quad (5.3)$$

El procés d'inversió s'atura quan $\varepsilon_{RMS} \leq 1$. Aquest fet indicaria que, de mitjana, els valors de les respostes es troben dins del marge d'error de les dades i, per tant, ja s'hauria trobat un model vàlid.

El segon terme de l'equació 5.1 permet condicionar la inversió per a buscar dins d'un subconjunt de models que presentin característiques concretes. La introducció d'aquest terme, al mateix temps, estabilitza el procés d'inversió [Zhdanov, 2009]. Aquesta aproximació s'anomena *regularització* i va ser desenvolupada per Tikhonov and Arsenin [1977]. El programa R3t permet realitzar tres tipus principals d'inversió, en funció de la característica imposada. El valor del paràmetre de regularització, que multiplica el terme de regularització, determinarà la importància d'aquest en relació a la discrepància entre les dades i les respostes.

El primer tipus d'inversió es centra en buscar models on la variació espacial de la resistivitat sigui suau (és a dir, que no hi hagi canvis bruscos de resistivitat dins del model). En aquest cas, el terme de regularització s'expressa com

$$\Psi_m = \mathbf{m}^T \mathbf{R}^T \mathbf{R} \mathbf{m} \approx \int_V \|\nabla \mathbf{m}\|^2 dv, \quad (5.4)$$

on $\mathbf{R}$ és la matriu de rugositat del model, que aproxima amb diferències finites la variació espacial dels paràmetres del model $\mathbf{m}$, $\|\cdot\|$ és la norma L_2 i ∇ és l'operador gradient en tres dimensions.

El segon tipus d'inversió implementat al codi R3t consisteix a trobar models amb una estructura semblant a la d'un model inicial $\mathbf{m}_0$. Aquesta característica es sol incloure quan es disposa d'informació *a priori* de l'estructura elèctrica o geològica de la zona investigada. Aquest cop, el terme de regularització té la forma

$$\Psi_m = (\mathbf{m} - \mathbf{m}_0)^T \mathbf{R}^T \mathbf{R} (\mathbf{m} - \mathbf{m}_0), \quad (5.5)$$

L'equació 5.5 imposa que les diferències entre els models siguin suaus en l'espai, és a dir, que el model obtingut presenti una estructura semblant a la del model inicial, però no implica necessàriament que els valors de resistivitat siguin els mateixos.

El tercer tipus d'inversió s'utilitza quan es vol obtenir un model molt semblant al model inicial, en termes de resistivitat. S'afegeix un nou terme a l'equació 5.5, de manera que

$$\Psi_m = (\mathbf{m} - \mathbf{m}_0)^T \mathbf{R}^T \mathbf{R} (\mathbf{m} - \mathbf{m}_0) + \alpha_s (\mathbf{m} - \mathbf{m}_0)^T (\mathbf{m} - \mathbf{m}_0), \quad (5.6)$$

on α_s és un factor que dóna pes al terme que mesura la diferència entre models, especificat per l'usuari.

5.1.2 Mètode d'inversió

El programa R3t utilitza un mètode iteratiu de Gauss-Newton combinat amb la tècnica dels Gradients Conjugats [Kemna, 2000]. El procés parteix d'un model inicial introduït per l'usuari. Primerament, el programa determina si hi ha alguna dada que presenta una polaritat que no es pot explicar amb el model inicial. Si és així, aquella dada s'exclou temporalment del procés d'inversió, fins que el model trobat hi sigui compatible. A continuació, el programa calcula l' ε_{RMS} del model

inicial i, si $\varepsilon_{RMS} > 1$, s'inicia el procés d'inversió. En cas negatiu, el model inicial ja seria un model vàlid.

A la primera iteració, el programa utilitza un valor del paràmetre de regularització α proporcionat per l'usuari o inicialitzat automàticament. Seguint el mètode de Gauss–Newton, es construeix un sistema d'equacions lineals, la solució del qual proporcionarà una actualització dels paràmetres del model $\Delta \mathbf{m}$ en la direcció de màxim pendent de la funció objectiu. Com que la solució d'aquest sistema d'equacions sol esdevenir computacionalment molt costosa, el programa aplica la tècnica dels Gradients Conjugats, basada en una aproximació quadràtica local de la funció objectiu. Aquest mètode permet trobar una actualització aproximada del model que minimitza localment la funció objectiu. El procés d'optimització amb Gradients Conjugats s'atura quan s'ha arribat a una tolerància especificada per l'usuari. Un cop s'ha obtingut l'actualització del model, es calcula l' ε_{RMS} del nou model candidat ($\mathbf{m}_k = \mathbf{m}_{k-1} + \Delta \mathbf{m}$, on k és la iteració actual de Gauss–Newton) per a determinar si compleix el criteri d'aturada. En cas negatiu, la inversió continua.

Abans d'actualitzar definitivament el model i procedir a la següent iteració de la inversió de Gauss–Newton, però, cal trobar el valor del paràmetre de regularització que proporciona el millor model de la iteració actual. Amb aquest objectiu, s'efectua una cerca del valor òptim d' α , tot resolent amb el mètode dels Gradients Conjugats el sistema d'equacions lineals per a cada valor d' α . Al final de cada determinació de la millor actualització $\Delta \mathbf{m}_\alpha$, es calcula l' ε_{RMS} del nou model candidat ($\mathbf{m}_{k,\alpha} = \mathbf{m}_{k-1} + \Delta \mathbf{m}_\alpha$). Si algun d'ells compleix el criteri de convergència, la inversió s'atura.

Quan el procés d'inversió s'acosta al mínim global de la funció objectiu, hi ha la possibilitat que, en aplicar l'actualització del model, el nou punt hagi sobrepassat

el mínim. Així doncs, el programa inclou un mètode per intentar prevenir aquest cas. Quan s'ha obtingut el valor òptim del paràmetre de regularització, es calcula l' ε_{RMS} d'un model a mig camí entre el que s'ha trobat en aquesta iteració i el de la iteració anterior ($\mathbf{m}_k = \mathbf{m}_{k-1} + 0.5 \cdot \Delta \mathbf{m}$). D'aquesta manera es pot ajustar una paràbola als tres punts i actualitzar el model al punt corresponent al mínim, en cas que es trobi entre els dos extrems.

A cada iteració, el programa també presenta la opció de modificar els pesos de les dades (es a dir, els errors individuals) automàticament perquè la inversió sigui robusta. Com que s'ha treballat amb dades amb un error experimental inferior al 10% (veure 3.2.4), s'ha decidit no utilitzar aquesta opció i mantenir constants els errors durant la inversió.

5.2 Inversió time-lapse

El monitoreig *time-lapse* amb ERT consisteix a efectuar mesures sobre una mateixa àrea d'estudi en diferents moments del temps al llarg del qual té lloc algun fenòmen d'interès. L'aproximació estàndard d'inversió de dades *time-lapse* consisteix a realitzar el que s'anomenen *inversions independents*, és a dir, realitzar una inversió per a cada conjunt de dades sense imposar cap relació entre les diferents inversions [Karaoulis *et al.*, 2012]. Els models obtinguts mitjançant la inversió independent de les dades *time-lapse* en general són difícils de comparar, perquè solen contenir artefactes causats pel soroll aleatori present a les dades i/o pel propi procés d'inversió.

S'han proposat varies alternatives a la inversió independent, amb l'objectiu d'intentar minimitzar el soroll i invertir només els canvis reals de les propietats del subsòl. Una de les estratègies més populars és la inversió de la diferència,

proposada per LaBrecque and Yang [2001], en la qual al vector de dades se li resta la diferència entre unes dades de referència i les respostes d'un model que ajusti les dades de referència,

$$\mathbf{d}^* = \mathbf{d} - (\mathbf{d}_0 - \mathbf{f}(\mathbf{m}_0)), \quad (5.7)$$

Normalment, $\mathbf{d}_0$ són les dades de la primera mesura i $\mathbf{m}_0$ és un model que les ajusta, obtingut mitjançant una inversió independent de $\mathbf{d}_0$. Alternativament, també es pot utilitzar com a dades i model de referència els de la mesura anterior. La inversió independent del nou conjunt de dades $\mathbf{d}^*$ en general aconsegueix eliminar gran part de l'error sistemàtic de les dades $\mathbf{d}$ i $\mathbf{d}_0$, associat a errors en la posició dels electrodes o a efectes de la discretització de la malla. El càlcul de l'error de les dades de la inversió de la diferència es detalla a l'Apèndix A.1.

A part de la inversió de la diferència, també s'utilitza sovint la inversió del quocient [Daily and Owen, 1991; Daily et al., 1992; Slater et al., 2000]. Aquesta tècnica consisteix a invertir el quocient entre les dades de la mesura efectuada al temps t i les dades d'una mesura de referència, multiplicat per les respostes d'un model homogeni arbitrari,

$$d_i^* = (d_{t,i}/d_{0,i}) \cdot f_i(\mathbf{m}_h), \quad (5.8)$$

La inversió d'aquest nou conjunt de dades revelarà les zones del model responsables de les diferències observades entre les dades en els dos instants del temps. El model obtingut reflexarà la variació de les distribucions de resistivitat, referida al model homogeni de referència [Bellmunt et al., 2012].

Recentment, s'està desenvolupant un nou tipus d'inversió anomenat 4D *time-lapse*, que inclou un paràmetre de regularització temporal, de manera que la

inversió busca una evolució dels models que sigui suau en el temps [Singha *et al.*, 2014]. Exemples d'aquestes estratègies d'inversió es poden trobar a Karaoulis *et al.*, [2014], Power *et al.*, [2014] o Yang *et al.*, [2014], entre d'altres.

5.3 Malla d'inversió

Per a poder calcular el problema directe i realitzar la inversió de les dades, cal discretitzar el domini d'inversió configurant una malla d'elements finits. Tal com s'ha comentat a l'apartat 5.1, el programa R3t està preparat per treballar amb malles constituïdes per prismes triangulars o tetrahedres.

5.3.1 Geometria

A la Figura 5.1 es presenten tots els elements que configuren la malla utilitzada als experiments principals d'aquest treball. El domini d'inversió és el cil·lindre de roca, de 40 mm de diàmetre per 80 mm d'alçada. Per tal d'intentar reproduir el màxim la realitat, es van incloure dues zones a les quals no es permet variar la seva resistivitat durant la inversió: el tub de Viton, amb una resistivitat de $10^9 \Omega \cdot m$, i la cel·la de confinament, amb una resistivitat de $7 \cdot 10^{-7} \Omega \cdot m$. Tal com es descriu més endavant (apartat 5.3.3), la modelització de la cel·la és essencial per a evitar l'aparició d'artefactes durant la inversió que invalidarien completament els models obtinguts. Quan es va treballar amb les dades reals dels experiments principals, va resultar necessari modelitzar el contacte no perfecte entre els extrems superior i inferior del cil·lindre de roca i la cel·la per evitar l'aparició d'artefactes als models obtinguts per inversió (veure apartat 5.4.2). La solució ideada va consistir a afegir dos subdominis d'inversió, amb morfologia de làmina circular de 40 mm de diàmetre i 1 mm de gruix, adjacents als extrems superior i inferior de la roca.

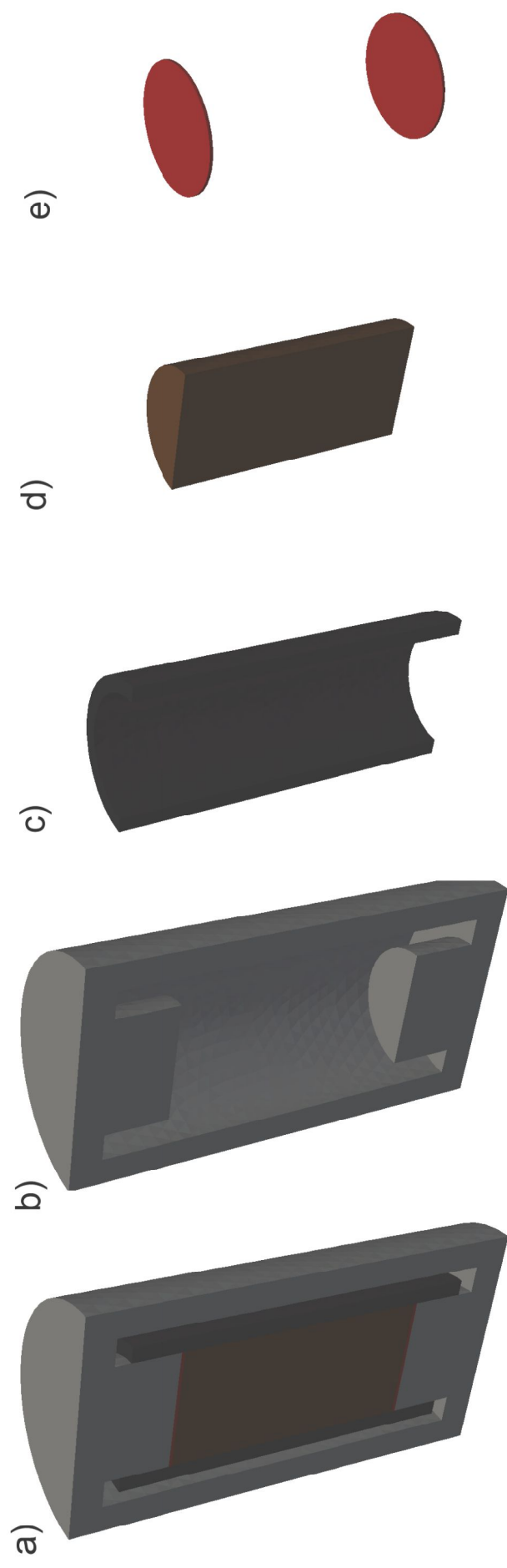


Fig. 5.1.1. a) Geometria de la malla (tall diametral) b) cel·la de confinament c) tub de Viton d) roca e) làmines de contacte entre la roca i la cel·la. Durant la inversió, les zones b) i c) mantindran la seva resistivitat fixada, mentre que a les zones d) i e) se'ls permetrà variar la seva distribució de resistivitats

5.3.2 Discretització de la malla

El grau de discretització de la malla és arbitrari. Es va experimentar amb diverses discretitzacions, tant amb malles triangulars (estructurades) com tetrahèdriques (no estructurades). Les malles triangulars es van construir amb subrutines pròpies programades amb MATLAB® [The MathWorks, 2007]. Les malles tetrahèdriques es van crear utilitzant el programa NETGEN® [Schöberl, 1997], que interpreta arxius de *Solid Constructive Geometry* on es defineix la geometria de la malla. Es van programar vàries subrutines amb MATLAB® per efectuar la conversió del format de l'arxiu de la malla al format que requereix el programa R3t.

El grau de discretització general de la malla definitiva es va determinar estadísticament, tot comparant la diferència relativa entre les respostes calculades per un model homogeni de $10 \text{ } \Omega \cdot \text{m}$, per una banda amb la malla potencialment definitiva i, per l'altra, amb una malla molt refinada, composta de 3834720 elements (prismes triangulars) i 1979145 nodes. La malla definitiva, constituïda per 27408 elements tetrahèdrics i 6078 nodes, genera unes respostes amb una diferència inferior al 2% respecte a les respostes calculades amb la malla molt fina (Figura 5.2). Aquest valor s'ha utilitzat com a estimació de l'error de modelització introduït a l'equació 3.7 ($\varepsilon_{\text{offset}}$).

Es va decidir utilitzar una malla tetrahèdrica perquè la versió actual del software d'inversió R3t (v1.8) està optimitzada per a treballar-hi. Per un mateix nombre d'elements, la inversió amb una malla tetrahèdrica és de l'ordre de 10 vegades més ràpida que la inversió amb una malla de prismes triangulars.

A la Figura 5.3 es compara la discretització de la malla definitiva i la de la malla molt refinada per a la regió corresponent al cil·indre de roca.

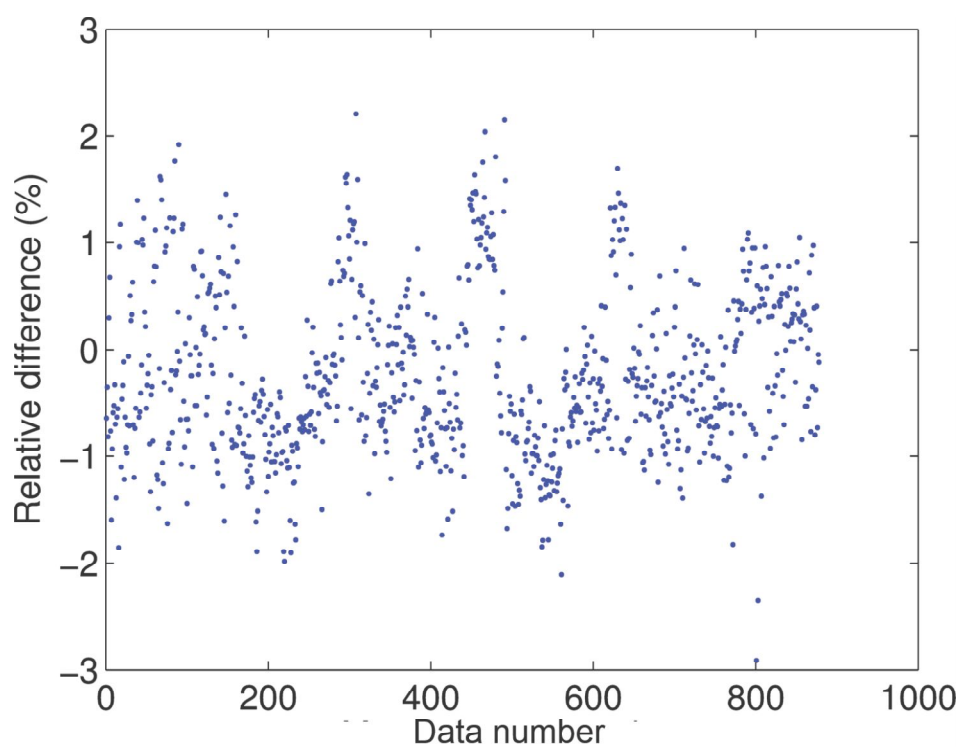


Fig. 5.2. Diferència relativa entre les respostes de la malla de prismes triangulars molt fina i la malla tetrahèdrica definitiva

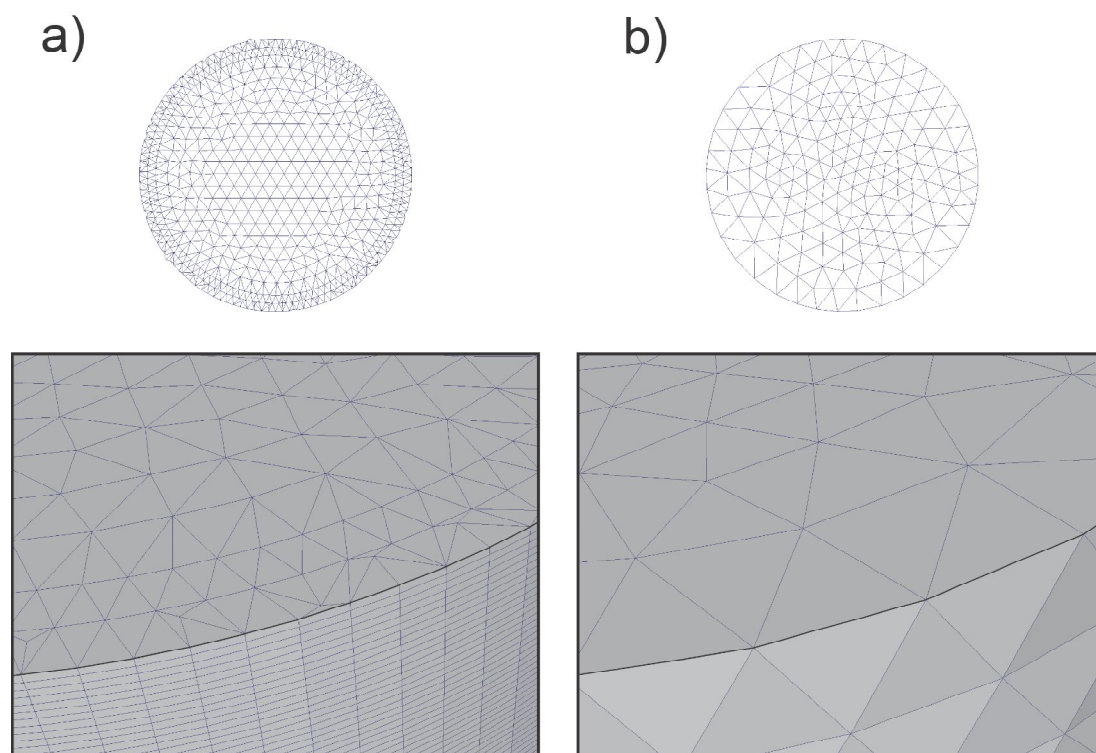


Fig. 5.3. Vista comparativa de la discretització de la malla molt fina (a) i de la malla definitiva (b)

Per tal d'assegurar la validesa de la malla definitiva, es va comprovar que la inversió amb la malla definitiva de les respostes del model homogeni de $10 \Omega \cdot m$ calculades amb la malla molt fina convergia, amb una diferència entre els valors de resistivitat dels models inferior al 6.3% (Figura 5.4), assumint un error relatiu d'un 2% en les respostes. La inversió de les mateixes respostes amb l'addició de soroll aleatori gaussià de $\bar{x} = 0$ i $\sigma = 0.033$ (aproximadament un 10% de variació màxima), va generar un model amb una diferència màxima del 9% (Figura 5.5).

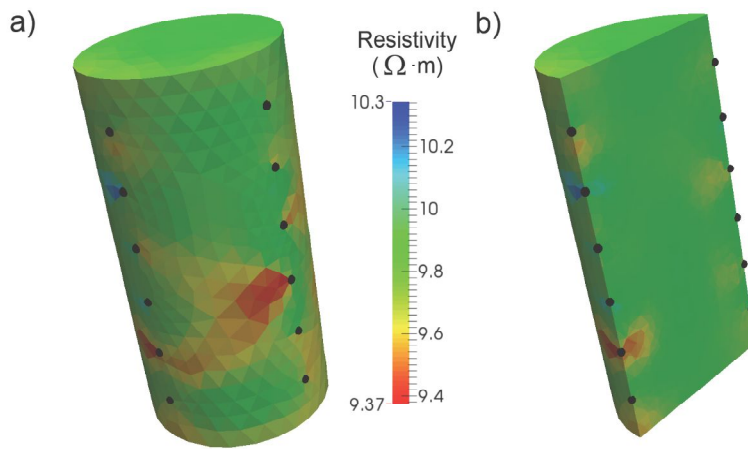


Fig. 5.4. Model obtingut de la inversió de les respostes generades amb la malla molt fina utilitzant la malla definitiva, assumint un 2% d'error a les respostes a) vista exterior b) tall diametral interior

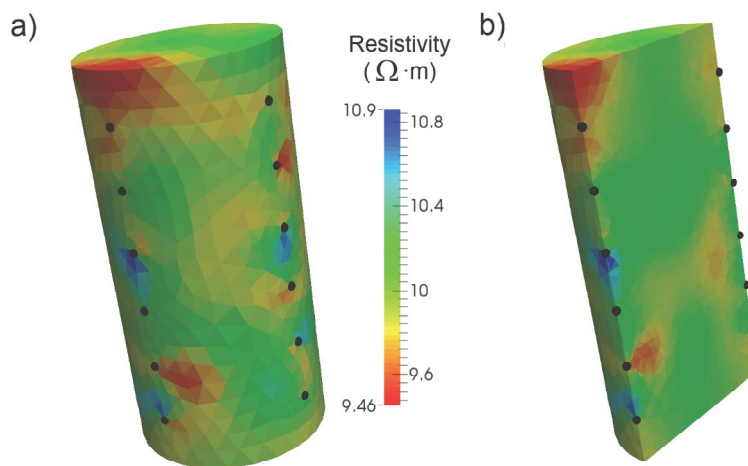


Fig. 5.5. Model obtingut de la inversió de les respostes generades amb la malla molt fina utilitzant la malla definitiva, havent inclòs soroll gaussià aleatori amb $\bar{x} = 0$ i $\sigma = 0.033$ (aproximadament un 10% de màxima variació) a les respostes a) vista exterior b) tall diametral interior

5.3.3 Modelització de la cel·la de confinament

El disseny inicial de la malla d'inversió no incloïa la cel·la metàl·lica ni el tub de Viton, sinó que només estava constituït pel cil·indre de roca. Al treballar amb dades reals adquirides amb el sistema experimental definitiu (veure Capítol 4), es va observar que els models obtinguts per inversió presentaven anomalies conductores a la part superior i inferior de la mostra, i anomalies resistives al centre de la mostra. Aquestes anomalies eren, de fet, artefactes. Si es modelitzava la cel·la, en canvi, aquests artefactes ja no apareixien. A la Figura 5.6 es demostra amb un exemple sintètic la necessitat d'incloure la cel·la. Es van invertir, amb una malla que no incloïa la cel·la, les respostes d'un model homogeni de $10 \Omega \cdot m$ generades a partir d'un model que sí que la incloïa. La inversió no va convergir ($\varepsilon_{RMS} = 1.19$), i el model obtingut queda totalment invalidat pels artefactes de la inversió (Figura 5.6a). Al modelitzar la cel·la, es recupera la resistivitat correcta (Figura 5.6b).

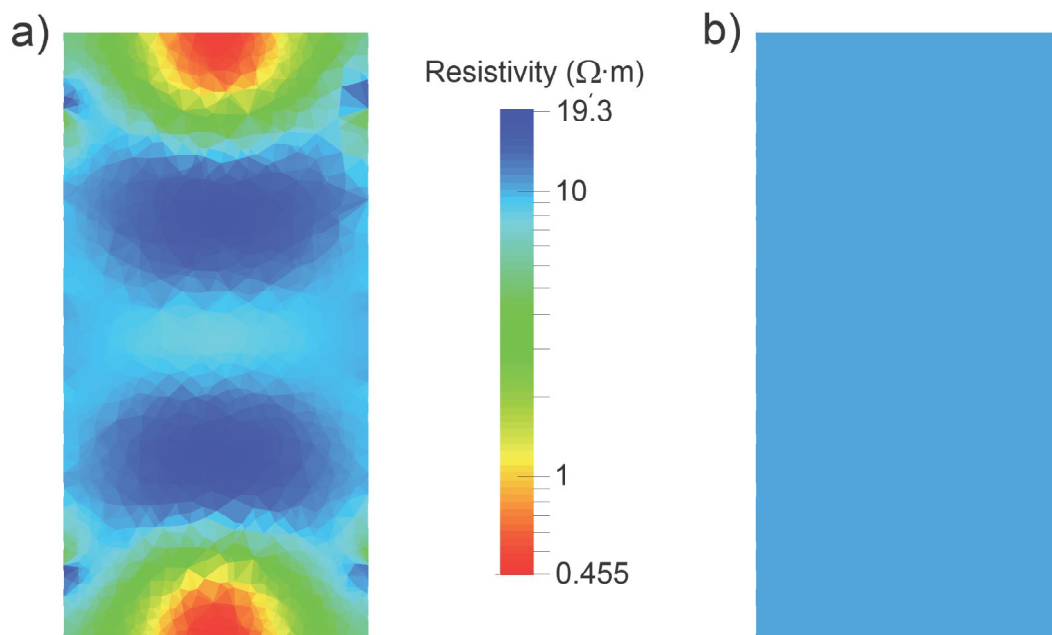


Fig. 5.6. Models recuperats invertint les respostes d'un model homogeni de $10 \Omega \cdot m$ que havien estat generades amb una malla que inclou la cella a) inversió amb una malla que no inclou la cella i b) inversió amb una malla que inclou la cella

5.3.4 Làmines de contacte

Quan es van invertir per primer cop les dades del cas 1 de l'experiment I (veure apartat 6.2), on la roca estava completament saturada de salmorra, es va observar que la inversió introduïa artefactes resistents als extrems superior i inferior del model (Figura 5.7a). Aquest no era un model acceptable, tot i presentar un ε_{RMS} inferior a 1. Els artefactes indicaven que el contacte entre la roca i la cel·la (molt conductora, $\rho = 7 \cdot 10^{-7} \Omega \cdot m$) no era perfecte, tal i com s'havia modelitzat (veure apartat 5.3.3). En canvi, es va comprovar que si s'introduïen dos subdominis d'inversió en forma de làmines fines (1 mm de gruix) entre la roca i la cel·la, es recuperava una resistivitat més homogènia d'acord amb el que s'esperaria per un cas totalment saturat de salmorra (Figura 5.7b). Els valors finals de resistivitat de les làmines superior i inferior es mostren a la Figura 5.7c. El valor de les làmines al model inicial era de $\rho_{làmines} = 100 \Omega \cdot m$, i el de la roca $\rho_{roca} = 10 \Omega \cdot m$. A l'Apèndix B es mostren els valors finals de resistivitat de les làmines pels quatre casos de l'experiment I.

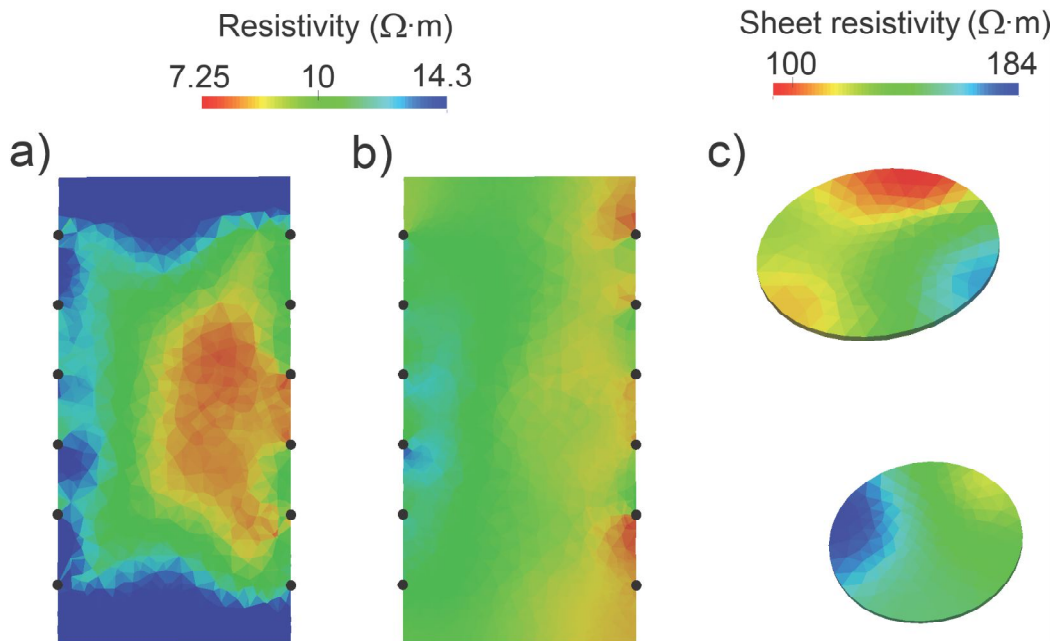


Fig. 5.7. a) Model recuperat pel cas 1 de l'experiment I sense incloure les làmines (contacte perfecte entre la roca i la cel·la); b) Igual que a) però inclouent les làmines; c) resistivitat final obtinguda per a les làmines

Per a determinar si el valor inicial de resistivitat de la roca i de les làmines tenien algun efecte significatiu en la inversió, es van provar diversos valors, llistats a la Taula 5.1. A la Figura 5.8a – e es mostren els talls verticals diametral dels models obtinguts, així com també les làmines (Figura 5.8f – j). En base als resultats, es poden descartar configuracions inicials amb $\rho_{roca}/\rho_{làmines} \geq 1$, ja que la resistivitat de les làmines assoleix valors no realistes. Per altra banda, sembla preferible iniciar amb $\rho_{roca}/\rho_{làmines} < 1$, perquè la inversió genera làmines de resistivitat semblant, tal com s'esperaria, perquè els circuits inferior i superior estan plens de salmorra. S'ha escollit la configuració del model a) perquè és el més homogeni i la resistivitat de les làmines és inferior a la del model b).

Taula 5.1. Models inicials considerats

Model	$\rho_{roca} (\Omega \cdot m)$	$\rho_{làmines} (\Omega \cdot m)$	$\rho_{roca}/\rho_{làmines}$
a	10	100	0.1
b	10	10	1
c	100	100	1
d	100	10	10
e	100	1000	0.1

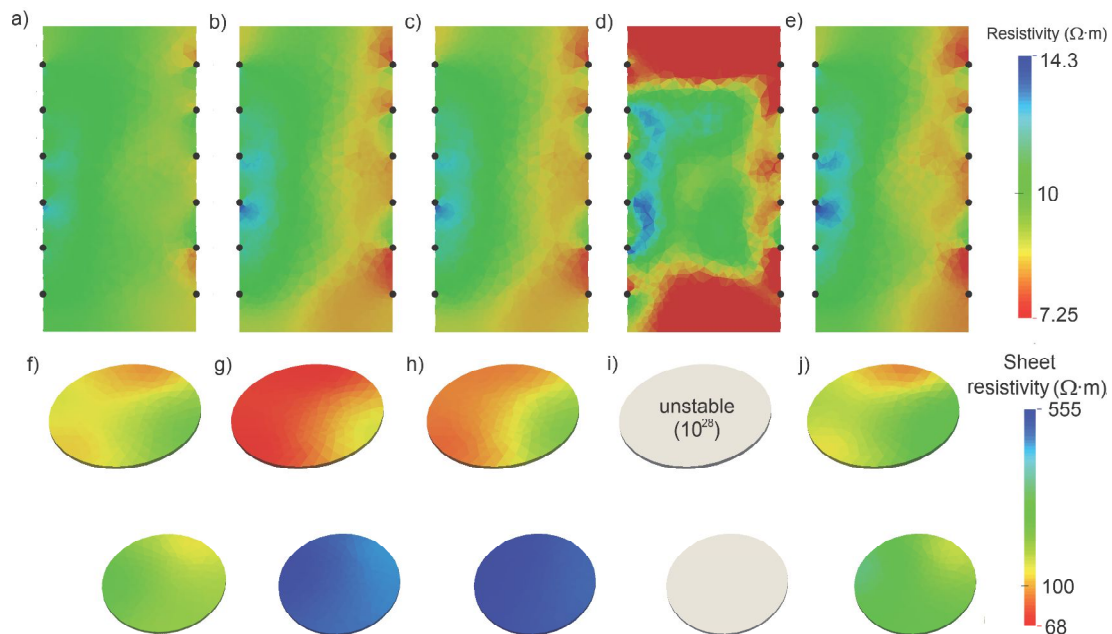


Fig. 5.8. a) – e) Talls verticals diametral dels models de la inversió les dades del cas 1 de l'experiment I amb diferents valors inicials de la roca i de les làmines superior i inferior (veure Taula 5.1); f) – j) resistivitat final de les làmines

5.4 Proves sintètiques

Un cop es disposava de la malla definitiva d'inversió, es va procedir a investigar una sèrie de casos sintètics amb un model representatiu d'una possible distribució de resistivitat dels experiments principals. La resistivitat de les làmines superior i inferior (veure apartat 5.3.4) es va mantenir fixada durant les inversions, amb un valor igual al de la cel·la ($7 \cdot 10^{-7} \Omega \cdot m$), simulant un contacte perfecte entre la roca i la cel·la.

El model considerat representa una roca parcialment saturada amb salmorra i CO_2 . Aquest s'ha injectat des de la part superior i ha percolat 2 cm al llarg de la mostra, tot saturant un 80% de la porositat. El 20% restant de la porositat de la zona on hi ha CO_2 està ocupat per salmorra (Figura 5.9a). S'han assignat valors realistes a la zona que conté CO_2 ($\rho_{z_1} = 250 \Omega \cdot m$) i a la zona completament saturada de salmorra ($\rho_{z_2} = 10 \Omega \cdot m$). A partir d'aquest model s'han considerat tres casos més (Figura 5.9b, c i d), resumits a la Taula 5.2. S'obtenen de variar els valors de resistivitat de les dues zones. Al cas 2 (Figura 5.9b), s'augmenta el percentatge de saturació de CO_2 (90%), de manera que la roca es torna més resistent ($\rho_{z_1} = 1000 \Omega \cdot m$). El cas 3 (Figura 5.9c), assumeix que part del CO_2 s'ha dissolt a la salmorra i aquesta ha disminuït la seva resistivitat ($\rho_{z_2} = 5 \Omega \cdot m$). El cas 4 (Figura 5.9d) s'obté de combinar les variacions d'aquests dos paràmetres.

Taula 5.2. Característiques dels casos considerats per a les proves sintètiques

Cas	Saturació de CO_2 (%)	Resistivitat de la zona amb CO_2 ($\Omega \cdot m$)	Resistivitat de la zona amb salmorra ($\Omega \cdot m$)	Quocient de resistivitats (ρ_{z_1}/ρ_{z_2})
1	80	250	10	25
2	90	1000	10	100
3	80	250	5	50
4	90	1000	5	200

Els models resultants de la inversió de les respostes dels models sintètics de la Figura 5.9a – d es mostren a la Figura 5.9e – h. El model inicial ha estat sempre un model homogeni amb una resistivitat de $100 \Omega \cdot m$, i el paràmetre de regularització α s'ha inicialitzat automàticament. Els models resultants mostren que la interfase salmorra- CO_2 s'ha detectat satisfactòriament en tots els casos. Aquesta presenta una gradació de la resistivitat, més acusada com més gran és el contrast de resistivitat entre les dues zones (veure Taula 5.2). Aquest fet és conseqüència d'aplicar la regularització al procés d'inversió, perquè d'aquesta manera es busca el model que presenta canvis menys bruscos de resistivitat. Els valors recuperats per a la zona 1 de cada model són, en general, lleugerament inferiors als del model de referència corresponent. Els de la zona 2 són en general correctes, exceptuant la zona propera a la interfase salmorra- CO_2 . També es poden observar petites anomalies resistives al voltant dels electrodes, que augmenten d'intensitat com més properes es troben de la interfase salmorra- CO_2 .

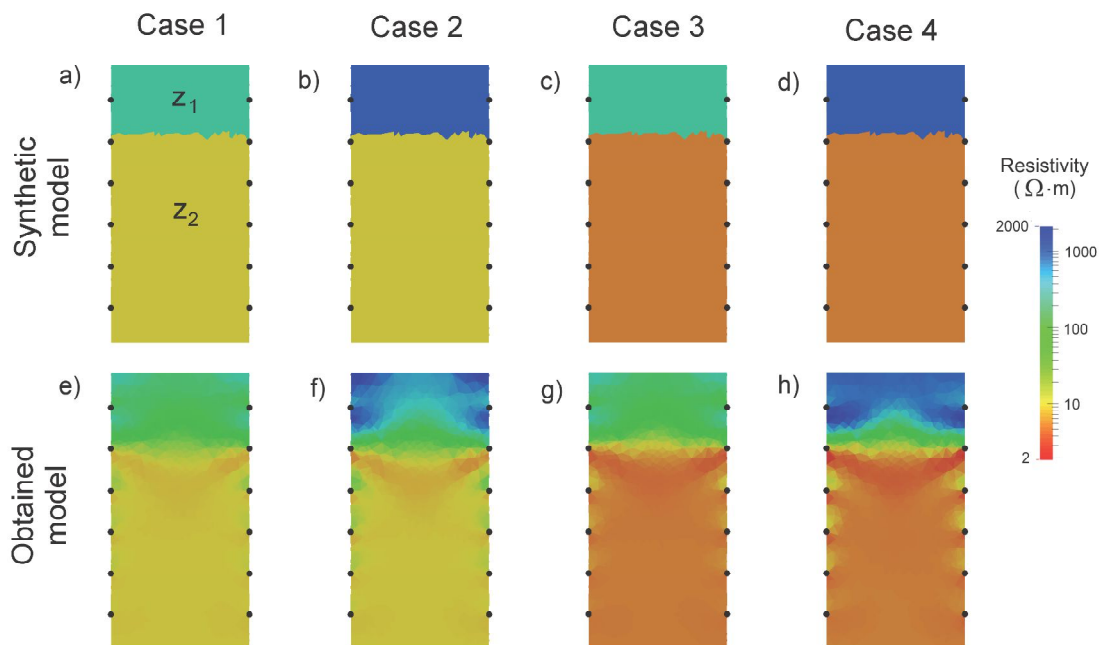


Fig. 5.9. a) – d) Models considerats per a les proves sintètiques (casos 1 a 4 de la Taula 5.2, respectivament). La porositat de la zona superior (z_1) conté CO_2 i salmorra (en proporcions diferents), i la de la zona inferior (z_2) conté exclusivament salmorra; Als models c) i d) hi ha hagut dissolució de CO_2 a la salmorra. e) – h): models corresponents a la inversió de les respostes generades pels models a) – d)

Un cop es va haver comprovat que la ERT generava models satisfactoris en simulacions d'experiments amb CO_2 , es va voler aprofundir en dos aspectes de la inversió: el valor inicial del paràmetre de regularització α i la resistivitat del model inicial. Per tal de determinar l'efecte del valor inicial d' α , es va comparar el model de la Figura 5.9e, que s'havia obtingut mitjançant una inversió on α havia estat inicialitzat automàticament ($\alpha_0 = 2758.7$), amb els models obtinguts mitjançant la inversió de les mateixes respostes, aquest cop inicialitzant α de tres maneres diferents: $\alpha_0 = 1$ (Figura 5.10b), $\alpha_0 = 10$ (Figura 5.10c) i $\alpha_0 = 100$ (Figura 5.10d). En un quart cas (Figura 5.10e), es van definir dos dominis de regularització (coincidents amb les dues zones del model de referència), on α s'inicialitzava automàticament i a la interfase entre zones no es requeria cap tipus de suavitat del model (és a dir, $\alpha = 0$ en la direcció perpendicular a la interfase). Aquestes cinc inversions es van repetir amb un model inicial de $10 \Omega \cdot \text{m}$, per a determinar si hi ha alguna relació entre aquestes dues característiques (Figura 5.10f – j).

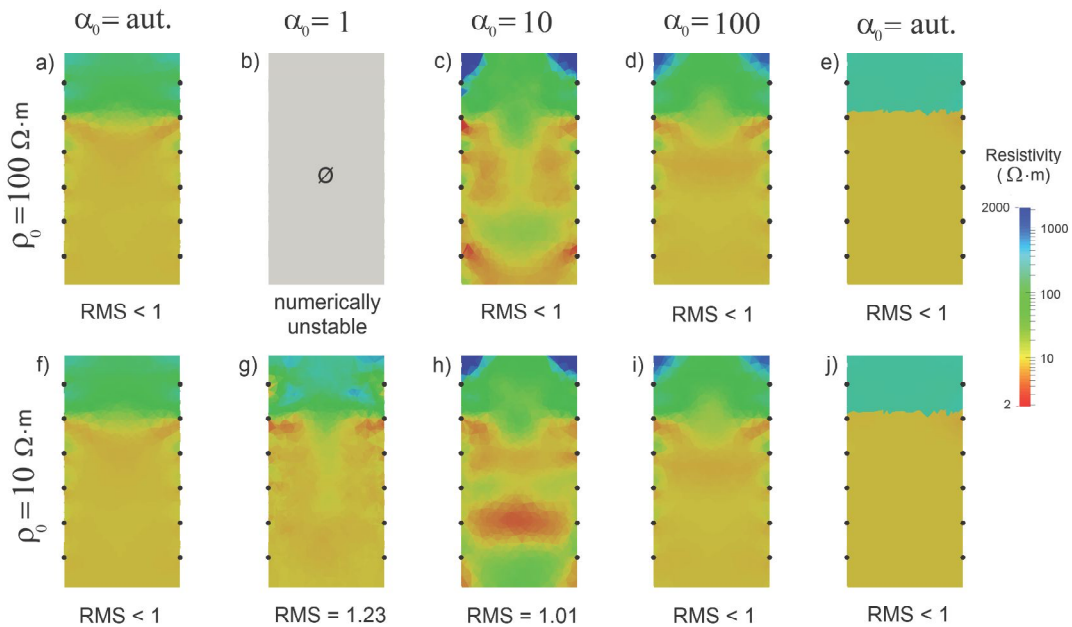


Fig. 5.10. Talls verticals dels models obtinguts mitjançant la inversió de les respostes del cas 1 (Fig. 5.9a) considerant diferents valors inicials del paràmetre de regularització α . a) – e): amb un model inicial de $100 \Omega \cdot \text{m}$, f) – j): amb un model inicial de $10 \Omega \cdot \text{m}$. El cas b) ha presentat inestabilitat numèrica

La Figura 5.10 suggereix que, en general, no és recomanable limitar el valor inicial d' α , ja que imposar menys suavitat entre els paràmetres del model permet molta més variació i, per tant, molts més models possibles que ajustin les dades. Les inversions amb $\alpha_0 = 1$ (Figura 5.10b i g), $\alpha_0 = 10$ (Figura 5.10c i h) i $\alpha_0 = 100$ (Figura 5.10d i 5.10i) suggereixen que, com més gran és α_0 , la solució depèn menys del model inicial. El cas de la Figura 5.10b ha presentat inestabilitats numèriques, amb alternança de valors extremament alts i baixos de resistivitat. Probablement, la inversió mostrada a la Figura 5.10g ha obtingut millors resultats que la de la Figura 5.10b perquè la zona 2 s'inicialitzava amb un valor de resistivitat correcte ($\rho_{z_2} = \rho_0 = 10 \Omega \cdot \text{m}$). Aquest cas, a més, ha recuperat el valor correcte de la major part de la zona 1, tot i presentar anomalies conductores importants al voltant dels electrodos del nivell 6. També mostra un contrast més brusc de resistivitats a la interfase entre les dues zones, degut a la menor suavitat imposada entre tots els paràmetres del model. Per altra banda, dividint la malla en dos dominis d'inversió i inicialitzant α de manera automàtica (Figura 5.10e i j), la inversió retorna uns valors molt propers als reals ($\rho_{z_1} = 293.8 \Omega \cdot \text{m}$ i $\rho_{z_2} = 8.4 \Omega \cdot \text{m}$), i no presenta cap gradació de resistivitats a la interfase ni cap artefacte al voltant dels electrodos. La resolució d'aquest cas ha implicat l'ús d'informació *a priori* sobre l'estructura elèctrica de la roca.

En base a les proves i resultats d'aquest capítol, de cara a la realització de les inversions de les dades dels experiments principals (veure Capítol 6) amb el programa R3t, s'ha establert el següent protocol: s'utilitzarà la malla definida a l'apartat 5.3, que inclou la cel·la metàl·lica, el tub de Viton i les làmines de contacte entre la roca i la cel·la. El paràmetre de regularització s'inicialitzarà automàticament, i el quocient entre la resistivitat de les làmines i la del model inicial serà inferior a 1, per tal d'assegurar l'estabilitat de la inversió.

6 Investigació del sistema roca–salmorra–CO₂

En aquest capítol es presenta la investigació principal d'aquesta tesi. S'ha aplicat la tècnica de la tomografia elèctrica, prèviament adaptada a escala de laboratori (veure Capítols 3 i 4), per explorar l'estructura elèctrica del sistema roca–salmorra–CO₂ en dos experiments amb característiques i objectius diferenciats (Taula 6.1).

L'experiment I (veure apartat 6.2) té com a objectiu la quantificació de la saturació de CO₂ dins la porositat de la mostra, per a quatre casos diferents, a pressió atmosfèrica. La salmorra que saturava la mostra era molt salina (Taula 6.1), anàloga a la que es podria trobar en un aquífer salí profund.

A l'experiment II (veure apartat 6.3) es monitoritzar el sistema durant vuit dies, amb la intenció de determinar l'efecte de la dissolució del CO₂ en la salmorra al llarg del temps. L'experiment pretén emular la invasió de CO₂ en un aquífer poc profund, amb una salmorra poc salina (Taula 6.1) i a una pressió realista.

Taula 6.1. Característiques dels experiments realitzats

Experiment	Fenòmen investigat	Pressió	Salmorra (salinitat)
I	Saturació de CO ₂ a la porositat	Atmosfèrica	A (30 g/l NaCl)
II	Dissolució de CO ₂ a la salmorra	40 bar	B (0.3 g/l NaCl)

6.1 Materials

A continuació es descriuen els components del sistema roca-salmorra- CO_2 , utilitzats als experiments principals.

Roca: consisteix en un cil·indre de 40 mm de diàmetre i 80 mm de llargada (Figura 6.1), perforat en una mostra provinent del dipòsit de gresos de Fontainebleau (conca de París, França). Aquest dipòsit és fruit de la cimentació d'un sistema dunar costaner constituït per sorres marines ben grano-seleccionades, en un context climàtic tropical (Estampià, Oligocè superior) [Zinszner and Pellerin, 2007].

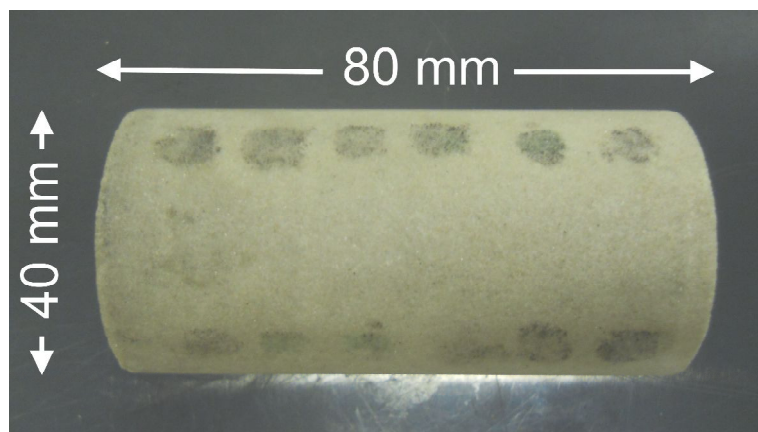


Fig. 6.1. Mostra de gres de Fontainebleau utilitzada en aquest treball. Les taques grises són una tinció residual superficial de la pintura de plata utilitzada en proves preliminars

Les mostres d'aquest jaciment presenten una homogeneïtat composicional i estructural ideal pel tipus d'estudi plantejat en aquest treball. A més, són exemples d'un tipus de roca factible per actuar com a reservori de CO_2 . El 99.8% de la seva composició química és sílice (principalment en forma de cristalls de quars), i la granulometria és molt homogènia (al voltant dels 200 μm [Cooper et al., 2009]), tot i que les mostres d'aquesta formació presenten una ampla variabilitat en la porositat (de 0.02 a 0.28 [Zinszner and Pellerin, 2007]).

A l'hora de realitzar els experiments principals, es va disposar d'una sola mostra de gres de Fontainebleau, per qüestions de protecció del jaciment. La roca va ésser cedida pel Laboratoire Geosciences Montpellier (Université Montpellier II).

Mitjançant la tècnica de la triple pesada (Taula 6.2), es va determinar que la mostra té una porositat de 0.110 ± 0.001 (veure Apèndix A.2 pel càlcul de l'error).

Taula 6.2. Valors utilitzats pel càlcul de la porositat amb el mètode de la triple pesada

Pes roca seca (48 h al forn a 40°C)	$w_{dry} = 233.3 \text{ g} \pm 0.1 \text{ g}$
Pes roca saturada	$w_{sat} = 244.2 \text{ g} \pm 0.1 \text{ g}$
Pes roca submergida	$w_{sub} = 145.1 \text{ g} \pm 0.1 \text{ g}$
Porositat	$\phi = \frac{w_{sat} - w_{dry}}{w_{sat} - w_{sub}} = 10.9 / 99.1 = 0.110 \pm 0.001$

Salmorra: per tal d'emular l'aigua que saturaria els aquífers dels experiments principals, es van preparar dues dissolucions de clorur de sodi en aigua purificada (en aquest cas, aigua Milli-Q[®] de l'empresa Merck Millipore, amb una resistivitat especificada pel fabricant de 18.2 MΩ·cm a 25 °C). Les propietats d'interès de les salmorres preparades es llisten a la Taula 6.3. La diferència entre ambdues és la salinitat; la salmorra A té una salinitat propera a la de l'aigua de mar (que val aproximadament 35 g/l), i seria típica d'aquífers salins profunds. La salmorra B té una baixa salinitat, representativa d'aquífers somers [Börner *et al.*, 2013].

Taula 6.3. Característiques de les salmorres utilitzades als experiments

Salmorra	Salinitat	Resistivitat ¹	Tipus d'aquífer
A	30 g/l NaCl	$0.230 \pm 0.001 \text{ } \Omega \cdot \text{m}$	Profund
B	0.3 g/l NaCl	$17.90 \pm 0.09 \text{ } \Omega \cdot \text{m}$	Somer

¹ Valors experimentals obtinguts amb un conductímetre CRI3560.99 kit cm 35+

CO₂: s'ha utilitzat diòxid de carboni de qualitat industrial en estat gasós, subministrat per l'empresa Air Liquide en una bombona tipus B20 (pressió interna: 50 bar).

6.2 Experiment I: Quantificació de la saturació de CO₂ a pressió atmosfèrica

En aquest experiment es va emular una petita fracció d'un aqüífer salí profund, saturat amb una salmorra molt salina (veure Taula 6.1). Es van plantejar tres objectius. En primer lloc, observar l'efecte que la presència del CO₂ té sobre les dades de tomografia elèctrica (veure apartat 6.2.2). En segon lloc, determinar la distribució de resistivitats dins la mostra mitjançant la inversió de les dades adquirides (veure apartat 6.2.3) i, finalment, quantificar la saturació de CO₂ a partir de la comparació dels models (veure apartat 6.2.4). Aquests tres passos es van realitzar per a quatre casos, cadascun amb una fracció de volum de CO₂ diferent i coneguda (Taula 6.4).

Taula 6.4. Casos investigats a l'experiment I

Cas	Fracció de volum de CO ₂ (V_{CO_2}/V_ϕ)
1	0%
2	35%
3	55%
4	71%

6.2.1 Protocol de l'experiment I

A continuació es llisten els passos seguits per a la realització de l'experiment I. Cada cas (veure Taula 6.4) es va preparar de nou i no a partir del cas anterior, per tal de mantenir un bon control de la quantitat de salmorra present a l'interior de la mostra i per a intentar tenir una distribució del CO₂ el més senzilla possible. L'única diferència en la preparació dels diferents casos era la quantitat de salmorra (i, per tant, de CO₂) que s'injectava a la mostra.. Per tal de seguir millor el procediment, es recomana consultar l'esquema del sistema experimental (veure Figura 4.1).

- 1- Assecar la mostra al forn a 40°C durant unes hores per a reduir la humitat que hi pugui haver a la porositat.
- 2- Col·locar la mostra dins la cel·la, tancar P1 i P2, aplicar la pressió de confinament (N₂ a 25 bar), obrir V1, V2, V3 i V4 i engegar la bomba de buit (VAC). Fer el buit al sistema al menys durant 24 hores. Tancar V2.
- 3- Carregar la xeringa amb salmorra i acoblar-la a P2. Obrir P2 i permetre que la mostra es satori completament de salmorra.
- 4- Retirar la xeringa de P2 i obrir P1. A continuació, drenar la mostra amb aire, injectant-lo manualment amb una xeringa des de P1, fins que no es pugui extreure més aigua de la roca.
- 5- Despressuritzar la cel·la, treure la mostra i pesar-la per a determinar la quantitat d'aigua residual que ha quedat dins la roca.
- 6- Repetir el pas 2, aquest cop fent el buit al sistema durant 3 hores.
- 7- Carregar una xeringa amb CO₂, tot evitant que s'escapi amb l'ajuda d'una vàlvula Luer-Lock™. Acoblar la xeringa a P1 (sense obrir-la).
- 8- Repetir el pas 3, tot tancant P2 quan hagi entrat el volum desitjat de salmorra dins la mostra (dependrà del cas que s'estigui preparant). Immediatament, obrir P1 i deixar que el buit restant xucli el CO₂ de la xeringa acoblada a P1. Un cop hagi entrat tot, fer una mica de pressió amb la xeringa per acabar de dissoldre possibles bombolles d'aire i a continuació tancar P1. Retirar les xeringues de P1 i P2.
- 9- Efectuar la mesura de tomografia elèctrica (durada aproximada: 20 min).
- 10- Un cop acabada la mesura, obrir P1 i P2 i fer passar aigua purificada a través de la mostra amb una xeringa (des de P1) per tal de desplaçar i diluir progressivament la salmorra.
- 11- Un cop la roca només contingui gairebé exclusivament aigua purificada, drenar-la (igual que al pas 4) i, tot seguit, posar-la al forn durant un mínim de 48 hores a 40°C per a deixar-la seca.

El procés complet de preparació i mesura dura aproximadament 78 hores.

6.2.2 Efecte del CO₂ en les dades d'ERT

A la Figura 6.2 es mostren les dades adquirides per als quatre casos investigats. Les Figures 6.3 – 6.6 presenten cada conjunt de dades a pàgina completa. Els punts es corresponen a les mesures normals i els cercles a les recíproques, en color negre les que han estat seleccionades per a la inversió i en vermell les que n'han estat excloses seguint els criteris de qualitat establerts a l'apartat 3.2 ($Dev \leq 5\%$, $I > 0.1 \text{ mA}$ i/o $\varepsilon \leq 10\%$). Durant l'adquisició pels casos 2 i 3, l'electrode 6 va fer mal contacte i, per tant, les seves dades no s'han utilitzat.

El cas 1 (Figura 6.2a), on la roca estava completament saturada de salmorra, presenta dades molt semblants a les respostes calculades per a un model homogeni de $10 \Omega \cdot \text{m}$ (veure Figura 3.5). Es poden observar els diferents ordres de magnitud que adopta la resistència mesurada en funció del tipus de configuració d'electrodes utilitzada, així com també es poden identificar els diferents patrons de la seqüència de mesures. També es pot comprovar que la majoria de dades era de bona qualitat (els errors recíprocs individuals i el percentatge d'error acumulat per a cada cas es poden consultar a l'Apèndix C.1).

Els casos 2 i 3 (Figures 6.2b i 6.2c, respectivament), on s'havia injectat un 35% i un 55% de CO₂ dins la mostra, respectivament, presenten una resistència més gran que el cas 1. Aquest augment de la resistència no és constant al llarg de tot el conjunt de dades, però, sinó que depèn de cada secció d'adquisició. Per exemple, les regions corresponents al cicle D de la seqüència de mesures (veure Figura 3.5) presenten un augment progressiu de la resistència, associat a la obertura del dipol de mesura. El patró del cicle D no és simètric, com al cas 1.

Les dades del cas 4 (Figura 6.2d), en el qual la mostra només contenia salmorra residual i la resta de la porositat (un 71%) estava plena de CO₂, són molt semblants a les del cas 1, però aproximadament un ordre de magnitud superior.

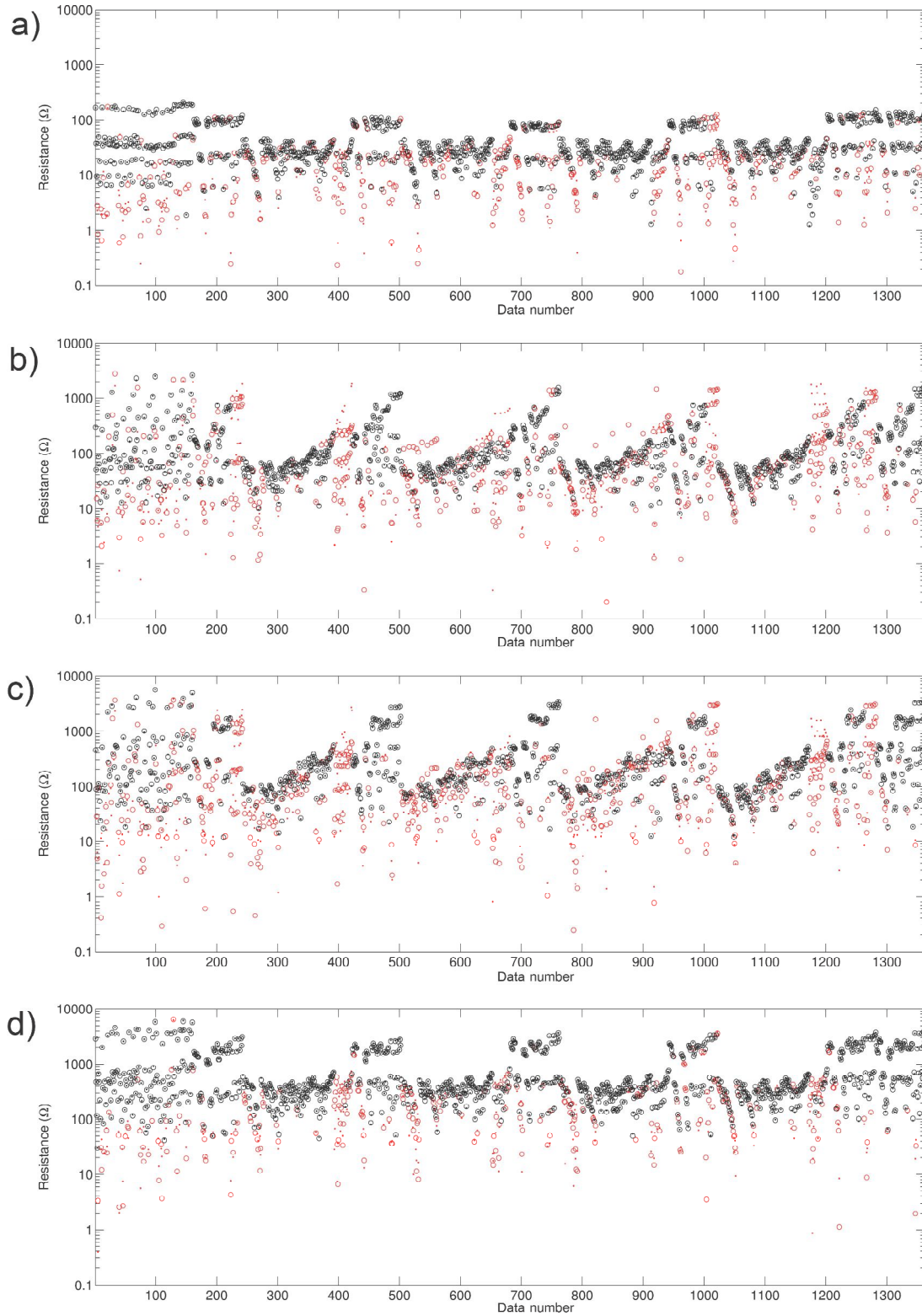


Fig. 6.2. Dades dels casos investigats a l'experiment I. Els punts es corresponen a les mesures normals i els cercles a les recíproques, en color negre les que han estat seleccionades per a la inversió i en vermell les que n'han estat exclòs. a) cas 1 (0% CO₂), b) cas 2 (35% CO₂), c) cas 3 (55% CO₂), d) cas 4 (71% CO₂)

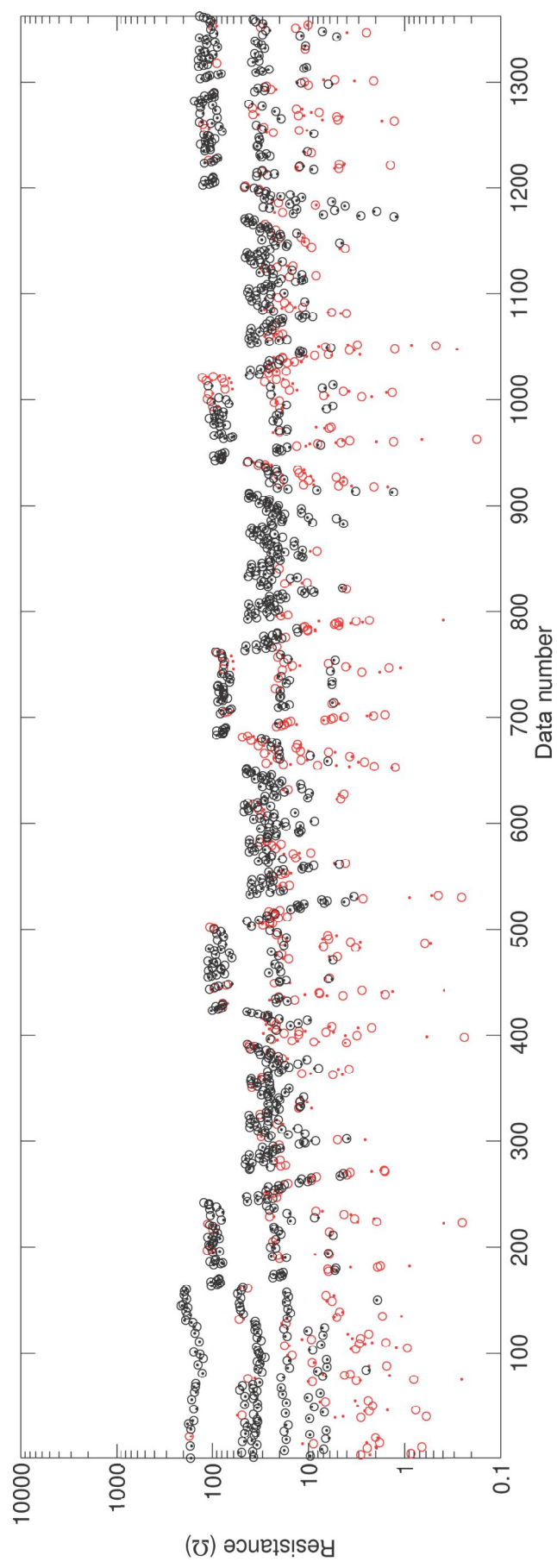


Fig. 6.3. Dades del cas 1 (0% CO_2) de l'experiment I. Els punts es corresponen a les mesures normals i els cercles a les recíproques, en color negre les que han estat seleccionades per a la inversió i en vermell les que n'han estat excloses

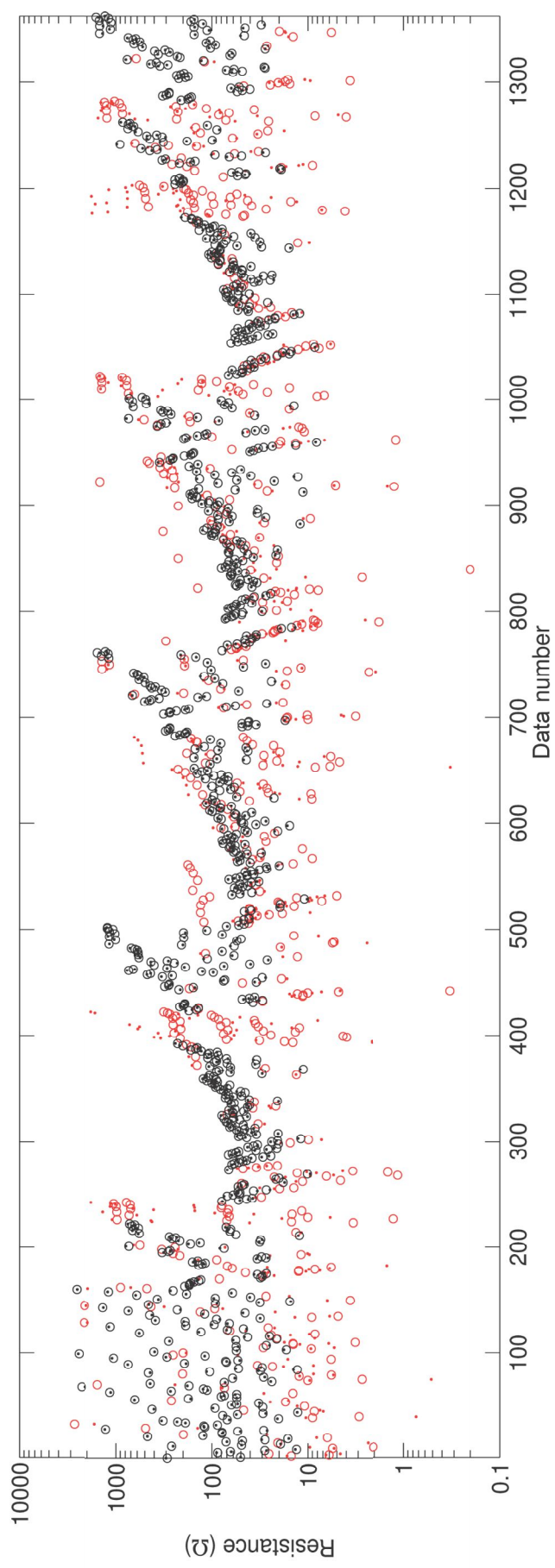


Fig. 6.4. Dades del cas 2 (35% CO_2) de l'experiment 1. Els punts es corresponen a les mesures normals i els cercles a les recíproques, en color negre les que han estat seleccionades per a la inversió i en vermell les que n'han estat excloses

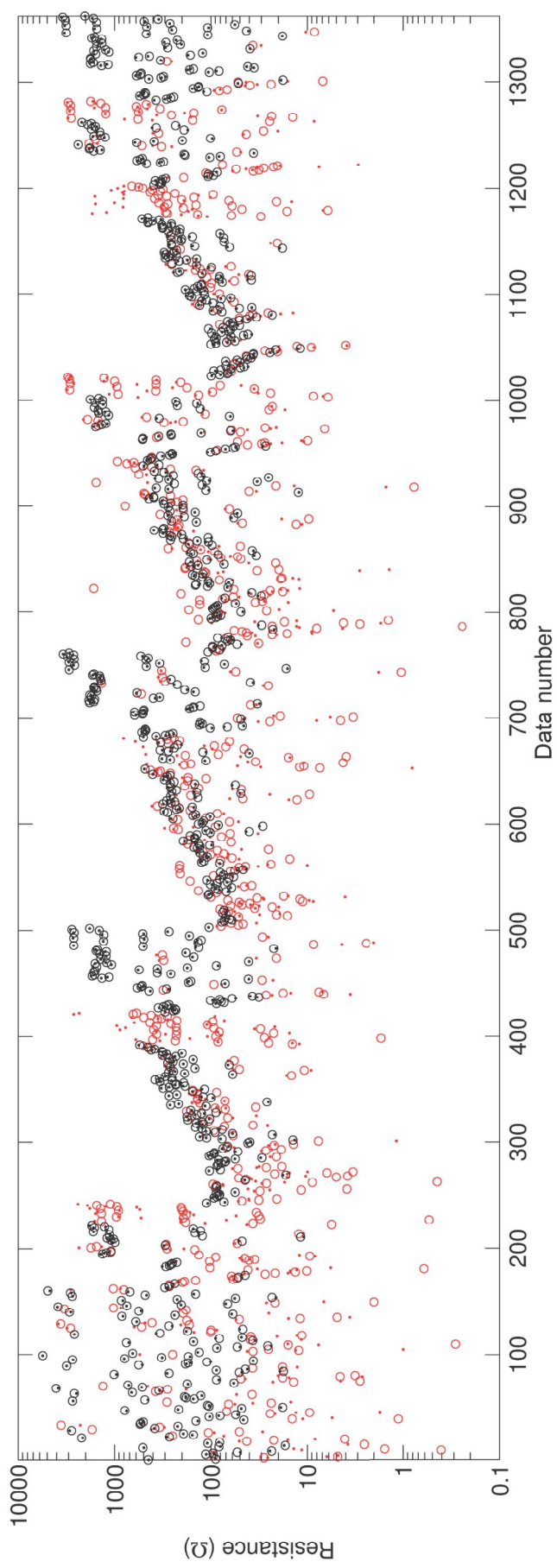


Fig. 6.5. Dades del cas 3 (55% CO_2) de l'experiment 1. Els punts es corresponen a les mesures normals i els cercles a les recíproques, en color negre les que han estat seleccionades per a la inversió i en vermell les que n'han estat excloses

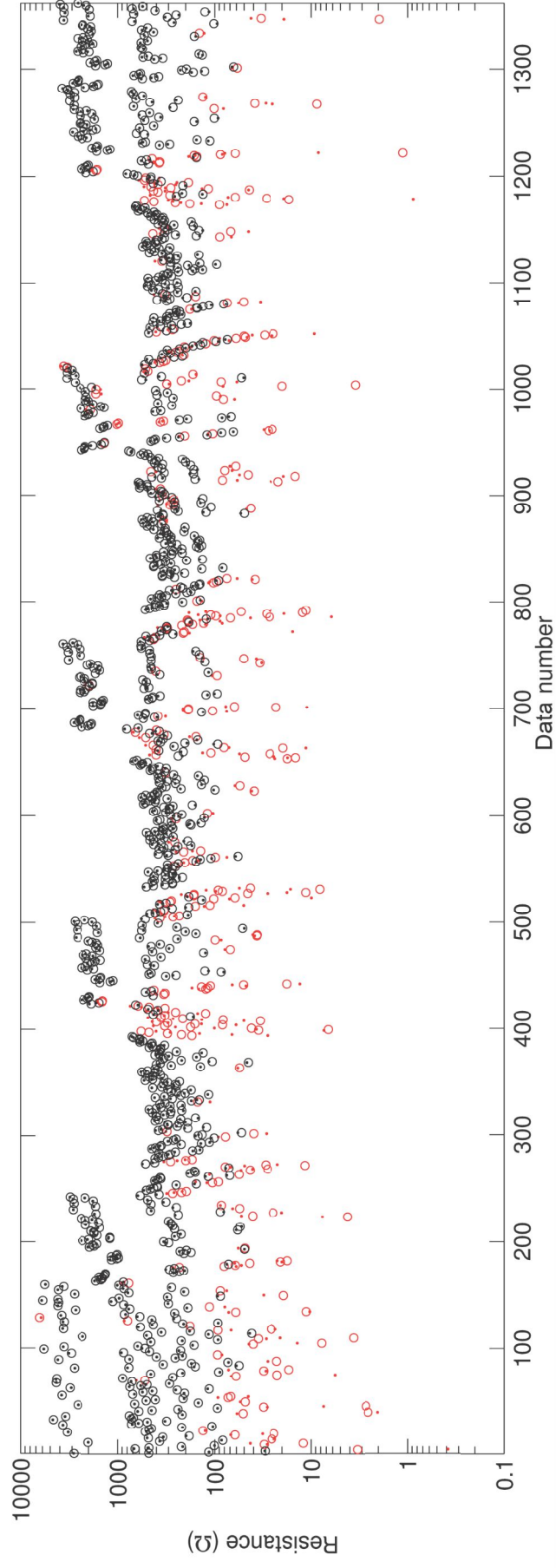


Fig. 6.6. Dades del cas 4 (71% CO_2) de l'experiment I. Els punts es corresponen a les mesures normals i els cercles a les recíproques, en color negre les que han estat seleccionades per a la inversió i en vermell les que n'han estat excloses

A la Figura 6.7 es superposen les resistivitats aparents de les dades acceptades dels quatre casos, calculades utilitzant els factors geomètrics obtinguts numèricament a l'Apèndix D. Es pot comprovar que el cas 1 (0% CO₂) presenta una homogeneïtat remarcable en la resistivitat aparent, amb valors al voltant de 10 Ω·m. A la Figura 6.2 s'havia identificat que el cas 1 presenta unes dades molt semblants a les respostes d'un model homogeni de 10 Ω·m (veure Figura 3.5). Amb aquesta informació, es pot utilitzar l'equació modificada del factor de formació (veure equació 2.4), sabent que la porositat val 0.11 (veure Taula 6.2), que la resistivitat de la salmorra val 0.23 Ω·m (veure Taula 6.3) i assumint que la resistivitat efectiva de la roca és 10 Ω·m i que, pels gresos de Fontainebleau, la porositat de percolació val 0.02 [Revil *et al.*, 2014]. Amb aquests valors es pot calcular l'exponent de cimentació $m^* = -\log(10/0.23)/\log(0.11-0.02) = 1.57 \pm 0.04$ (pel càlcul de l'error veure Apèndix A.3). El resultat és proper al valor teòric ($m^* = 1.5$) segons la teoria del medi efectiu per a grans esfèrics.

La resistivitat aparent del cas 2 és superior a la del cas 1 però inferior a la del cas 3, la qual, al mateix temps, és inferior a la del cas 4, tal com s'esperaria, ja que el cas 1 i el cas 4 són els dos extrems de l'espectre de saturacions. Les resistivitats aparents dels casos 2 i 3 mostren una gran dispersió de valors degut al contrast de resistivitat associat a la distribució de les fases. Com que el CO₂ es va injectar a través del circuit superior (veure apartat 6.1), aquesta estava majoritàriament saturada de CO₂. La part inferior de la roca estava completament saturada de salmorra, ja que aquesta s'havia injectat a través del circuit inferior.

El cas 4 mostra uns valors de resistivitat aparent un ordre de magnitud més alts que els dels casos 2 i 3, ja que només conté salmorra residual i la major part de la porositat es troba omplerta amb CO₂. La variabilitat relativa de la resistivitat aparent és inferior a la dels casos 2 i 3, suggerint que la seva estructura elèctrica és més homogènia.

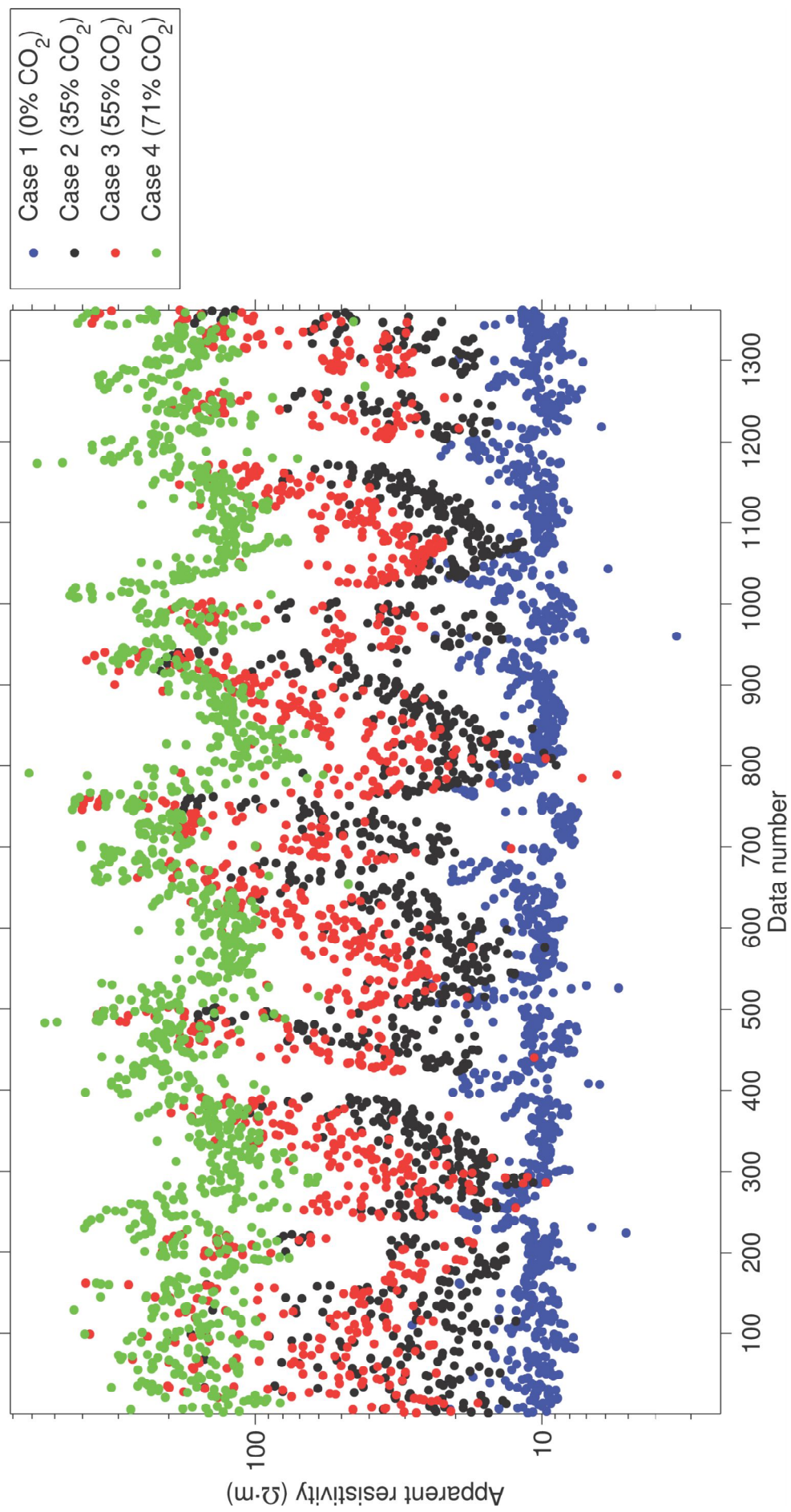


Fig. 6.7. Resistivitats aparents de les dades dels quatre casos investigats (cas 1: 0% CO₂; cas 2: 35% CO₂; cas 3: 55% CO₂; cas 4: 71% CO₂)

Per intentar visualitzar espacialment la qualitat de les dades, s'ha computat el *percentatge d'ocupació* de cada electrode (Figura 6.8). Del total de configuracions a les quals pertany cada electrode, s'ha comptabilitzat quin percentatge n'ha estat seleccionat. En base als resultats, es pot deduir que les configuracions amb electrodes al centre de la mostra produeixen dades de millor qualitat, tal com reflexa la morfologia cicloïdal del percentatge d'ocupació. La majoria de dades excloses de la inversió involucrava els electrodes superiors (6, 12, 18 i 24) i inferiors (1, 7, 13 i 19). Aquest fet suggereix l'existència d'alguna font d'error relacionada amb els extrems de la mostra (per exemple, efectes de vora i/o proximitat als extrems metàl·lics de la cel·la [Lee and Santamarina, 2010]).

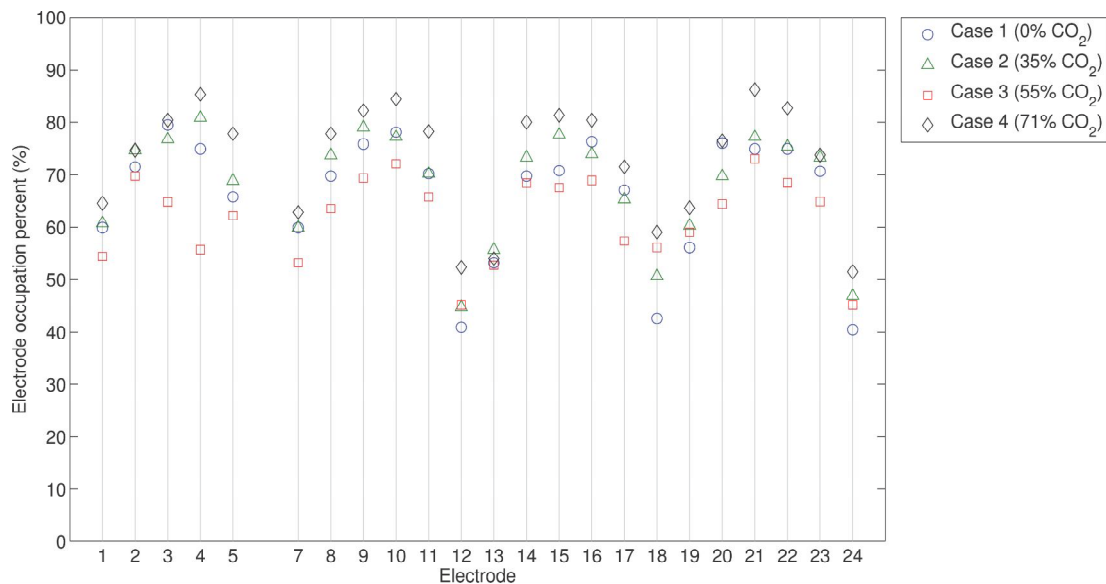


Fig. 6.8. Percentatge d'ocupació de cada electrode pels quatre casos investigats a l'experiment I. L'electrode 6 ha estat eliminat del càlcul perquè no feia bon contacte

Per tal d'interpretar espacialment l'efecte del CO₂ en les dades, a la Figura 6.9a s'han representat els pseudo-perfils de resistivitat aparent pels quatre casos investigats. Es representa la resistivitat aparent de quatre configuracions d'electrodes representatives de cada nivell d'electrodes (Figura 6.9b). Les dades dels nivells 1 i 6 no s'han inclòs perquè són massa properes als èmbols de la cel·la metàl·lica (veure Figura 6.8). El càlcul de l'error de la resistivitat aparent es detalla a l'Apèndix A.4.

El cas 1 de la Figura 6.9a presenta un pseudo-perfil molt constant al llarg de tota la mostra, amb valors propers a $10 \Omega \cdot m$. Anàlogament, el cas 4 mostra un pseudo-perfil proporcional al del cas 1 (d'un ordre de magnitud superior), suggerint que l'estructura elèctrica en ambdós casos podria ser semblant. Els casos 2 i 3, en canvi, revelen un pseudo-perfil variable, amb valors baixos al nivell 2, propers als del cas 1, i valors alts al nivell 5, propers als del cas 4. El nivell 5 del cas 2 presenta un valor intermig, probablement indicant que la zona no està saturada de CO₂. La resistivitat aparent del nivell 4 del cas 3, en canvi, és molt propera a la del cas 4, suggerint que aquella zona ja podria estar totalment saturada de CO₂. Cal tenir en compte que no es tracta d'autèntics perfils de resistivitat i, per tant, els valors de resistivitat aparent es troben influenciats per tota la distribució de resistivitats de la roca. Així, les dades del nivell 2 dels casos 2 i 3 també contenen informació de la presència del CO₂ a la part superior de la mostra, i probablement per aquest motiu presenten valors de resistivitat aparent superiors als del cas 1.

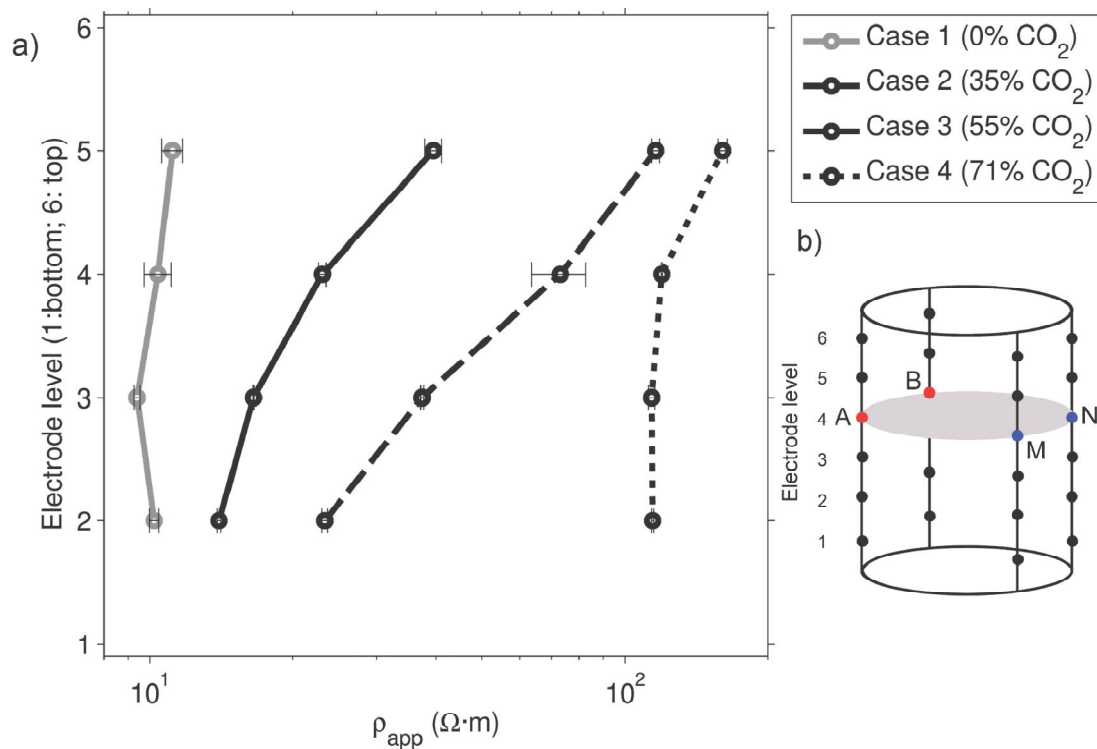


Fig. 6.9. a) Pseudo-perfils de resistivitat dels quatre casos de l'experiment I; b) esquema de la configuració d'electrodes seleccionada, exemplificada pel quart nivell d'electrodes

6.2.3 Models de resistivitat

Un cop s'havien adquirit i analitzat les dades pels quatre casos de l'experiment I, el següent pas consistia a obtenir les distribucions de resistivitat a l'interior de la mostra. Les dades es van invertir amb el programa R3t (veure Capítol 5), inicialitzant automàticament el paràmetre de regularització (veure apartat 5.4) i partint en tots els casos d'un model homogeni de $10 \Omega \cdot m$.

A les Figures 6.10 – 6.13 es presenten els models de resistivitat dels quatre casos investigats. A més de la vista exterior, per a cada model es mostren quatre seccions: tres talls verticals diametral (seccions AB, CD i EF) i una secció transversal que passa pel centre de la mostra (secció G).

El model del cas 1 (Figura 6.10) presenta una resistivitat força homogènia, amb un valor proper a $10 \Omega \cdot m$. El fet que no presenti cap heterogeneïtat elèctrica a l'escala de resistivitat utilitzada, implica que les variacions de resistivitat que s'observen als casos 2, 3 i 4 (Figura 6.11 – 6.13, respectivament) són degudes únicament a la presència de CO_2 .

Els casos 2 i 3 (Figures 6.11 i 6.12, respectivament) presenten una zona molt resistiva a la part superior del model, amb valors d'entre 100 i $700 \Omega \cdot m$. També es pot observar que el centre dels models és més conductor que el seu voltant, i es poden reconèixer els petits artefactes d'inversió entre els electrodos, identificats anteriorment a les proves sintètiques de l'apartat 5.4 (veure Figura 5.7).

El model del cas 4 (Figura 6.13) és, en general, molt resistiu, presentant valors de resistivitat compresos entre 100 i $700 \Omega \cdot m$, com la zona resistiva dels casos 2 i 3. També té un centre més conductor i artefactes als laterals.

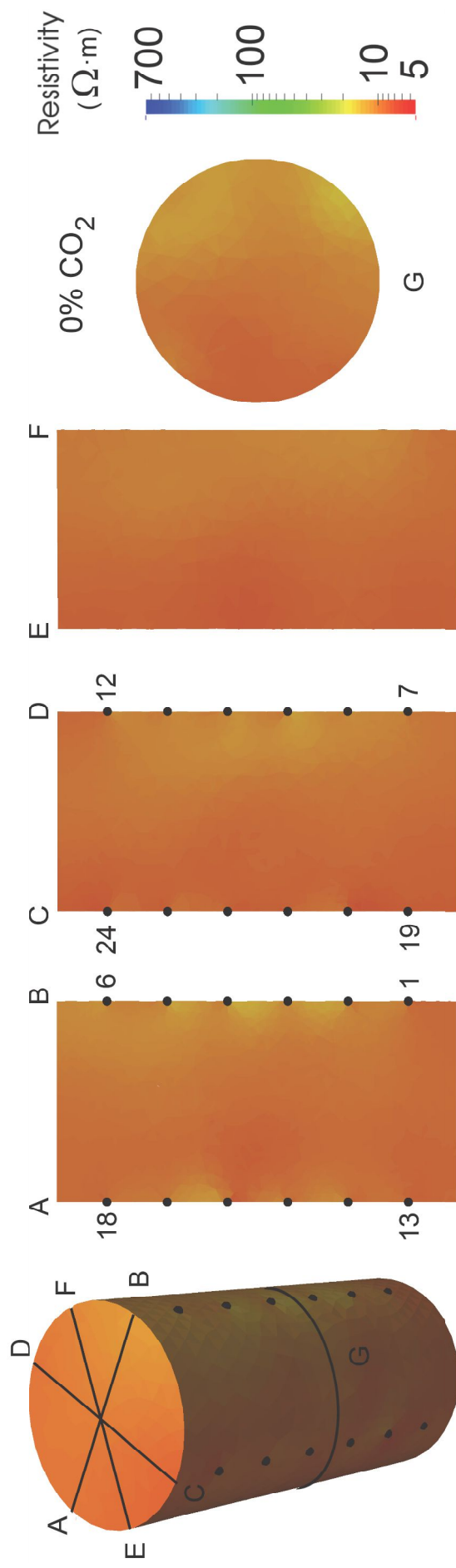


Fig. 6.10. Model de resistivitat obtingut pel cas 1 (0% CO₂) de l'experiment I. Als talls verticals (AB i CD) s'indica la posició dels electrodes

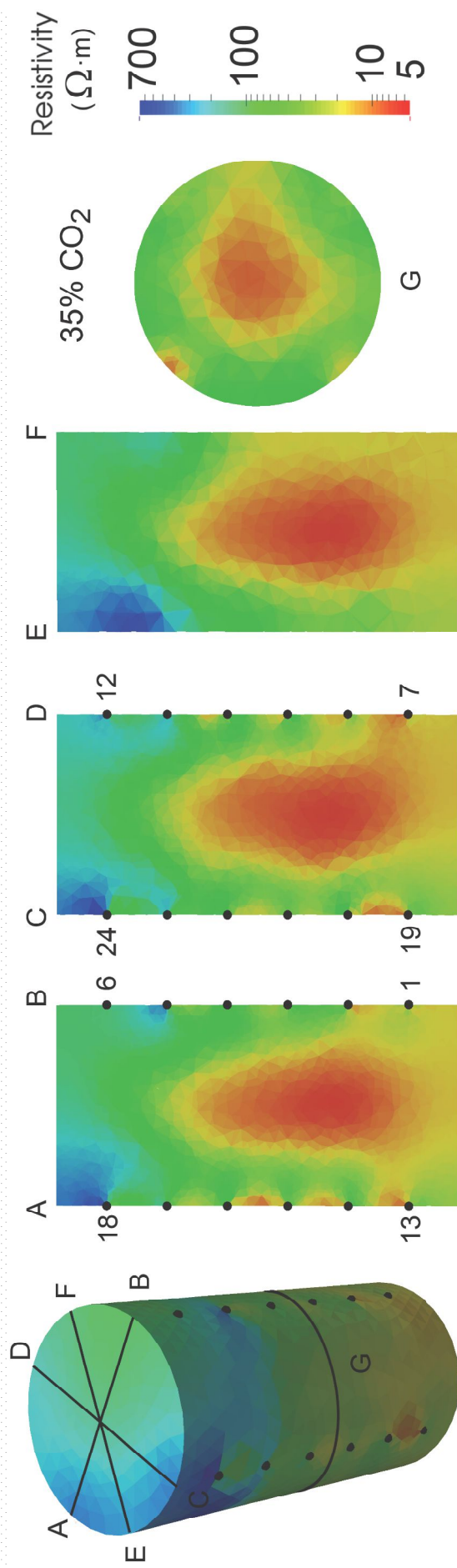


Fig. 6.11. Model de resistivitat obtingut pel cas 2 (35% CO₂) de l'experiment I. Als talls verticals (AB i CD) s'indica la posició dels electrodes

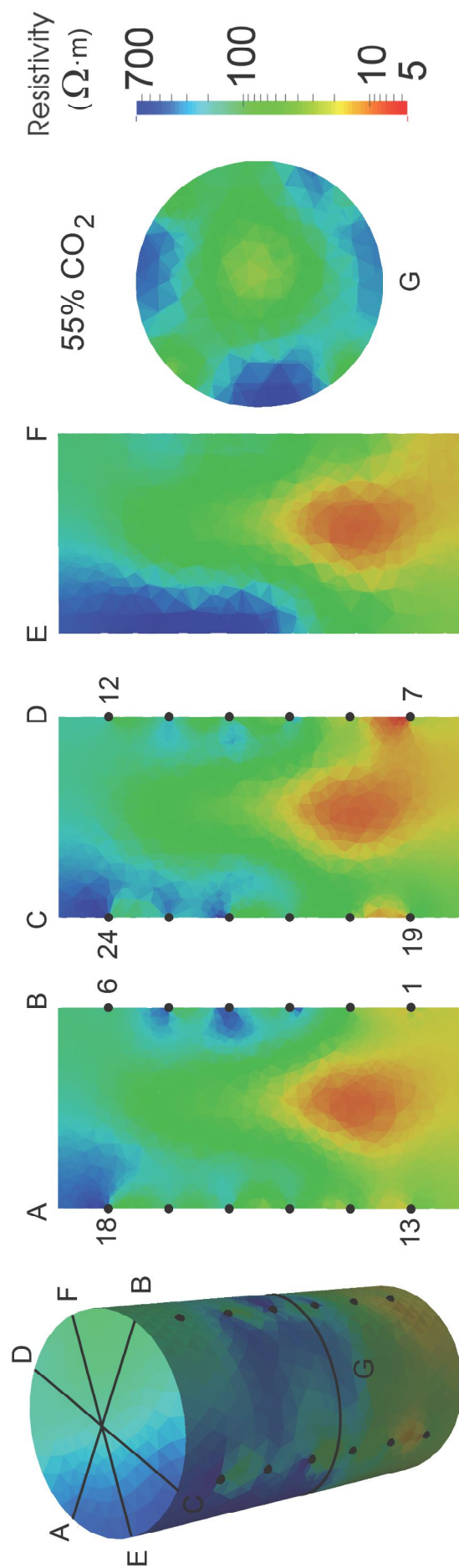


Fig. 6.12. Model de resistivitat obtingut pel cas 3 (55% CO₂) de l'experiment I. Als talls verticals (AB i CD) s'indica la posició dels electrodes

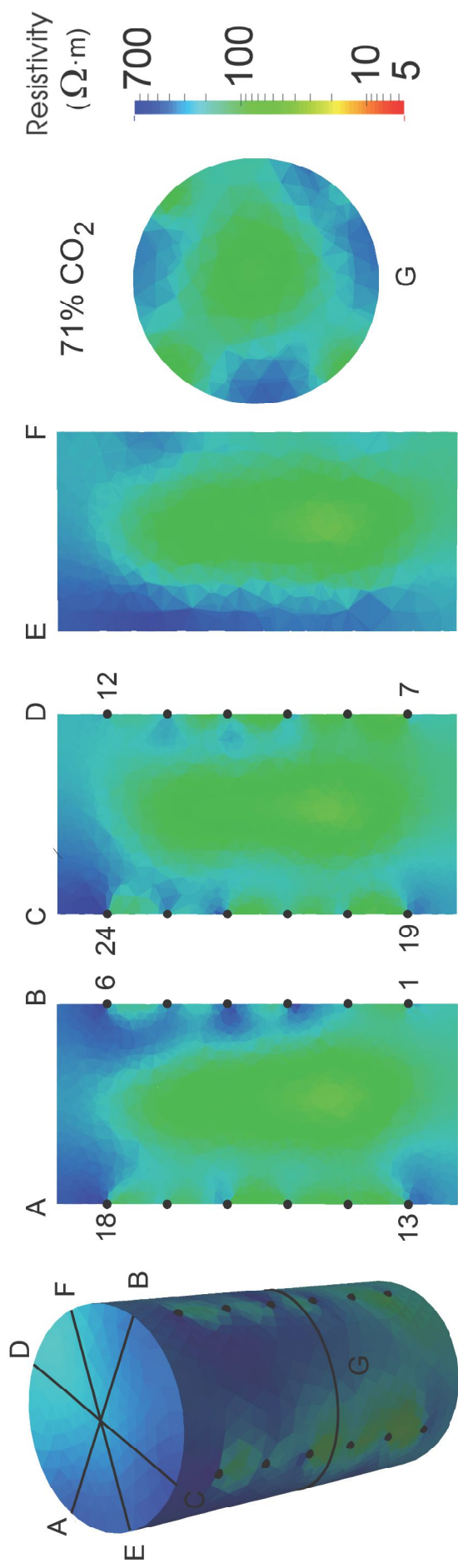


Fig. 6.13. Model de resistivitat obtingut pel cas 4 (71% CO_2) de l'experiment I. Als talls verticals (AB i CD) s'indica la posició dels electrodes

A la Taula 6.5 es llista l'RMS inicial i final, el nombre d'iteracions i el valor inicial automàtic del paràmetre de regularització per a les inversions de les dades dels quatre casos de l'experiment I. En tots ells la inversió ha convergit en tres o menys iteracions. Els valors d'inicialització automàtica d' α han estat semblants. Els valors de l' ε_{RMS} inicial presenten una correlació positiva amb la fracció de CO₂, tal com s'esperaria (com més CO₂ hi ha dins la roca, més diferent és aquesta d'un model homogeni conductor).

Taula 6.5. Paràmetres d'interès de les inversions de l'experiment I

Paràmetre	Cas 1 (0% CO ₂)	Cas 2 (35% CO ₂)	Cas 3 (55% CO ₂)	Cas 4 (71% CO ₂)
ε_{RMS} inicial ($\rho_0 = 10 \text{ } \Omega \cdot \text{m}$)	2.49	25.29	46.9	68.68
ε_{RMS} final	1.06	1.00	1.00	1.03
α_0 (automàtic)	35.79	29.3	35.69	50.41
Nº iteracions (Gauss-Newton)	1	3	3	2

A les Figures 6.14 – 6.17 es mostra l'ajust de les respostes (punts vermells) dels models de les Figures 6.10 – 6.13 a les dades (cercles verds), respectivament, pels quatre casos de l'experiment I. També es representa la diferència relativa individual entre les dades i les respostes (en %). En tots els casos l'ajust és molt satisfactori, amb una diferència relativa individual generalment inferior al 10%.

S'ha comprovat que, en general, les dades més difícils d'ajustar són les de resistència més baixa. De totes maneres, la fórmula de l' ε_{RMS} (veure equació 5.3) tolera una certa variabilitat a l'efectuar una mitjana de les contribucions individuals.

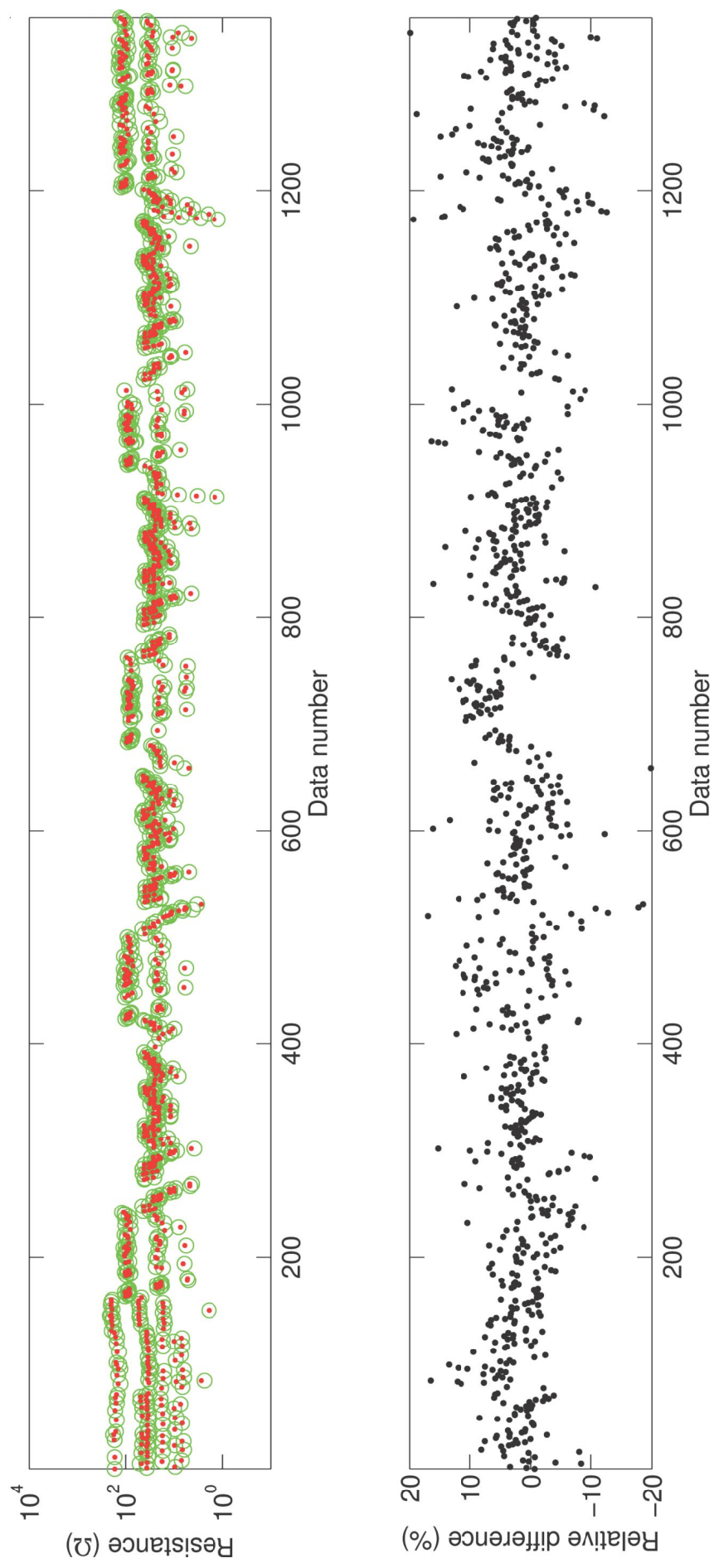


Fig. 6.14. Ajust de les respostes (punts vermells) del model a les dades (cercles verds) i diferència relativa entre respostes i dades (punts negres) pel cas 1 (0% CO_2) de l'experiment I

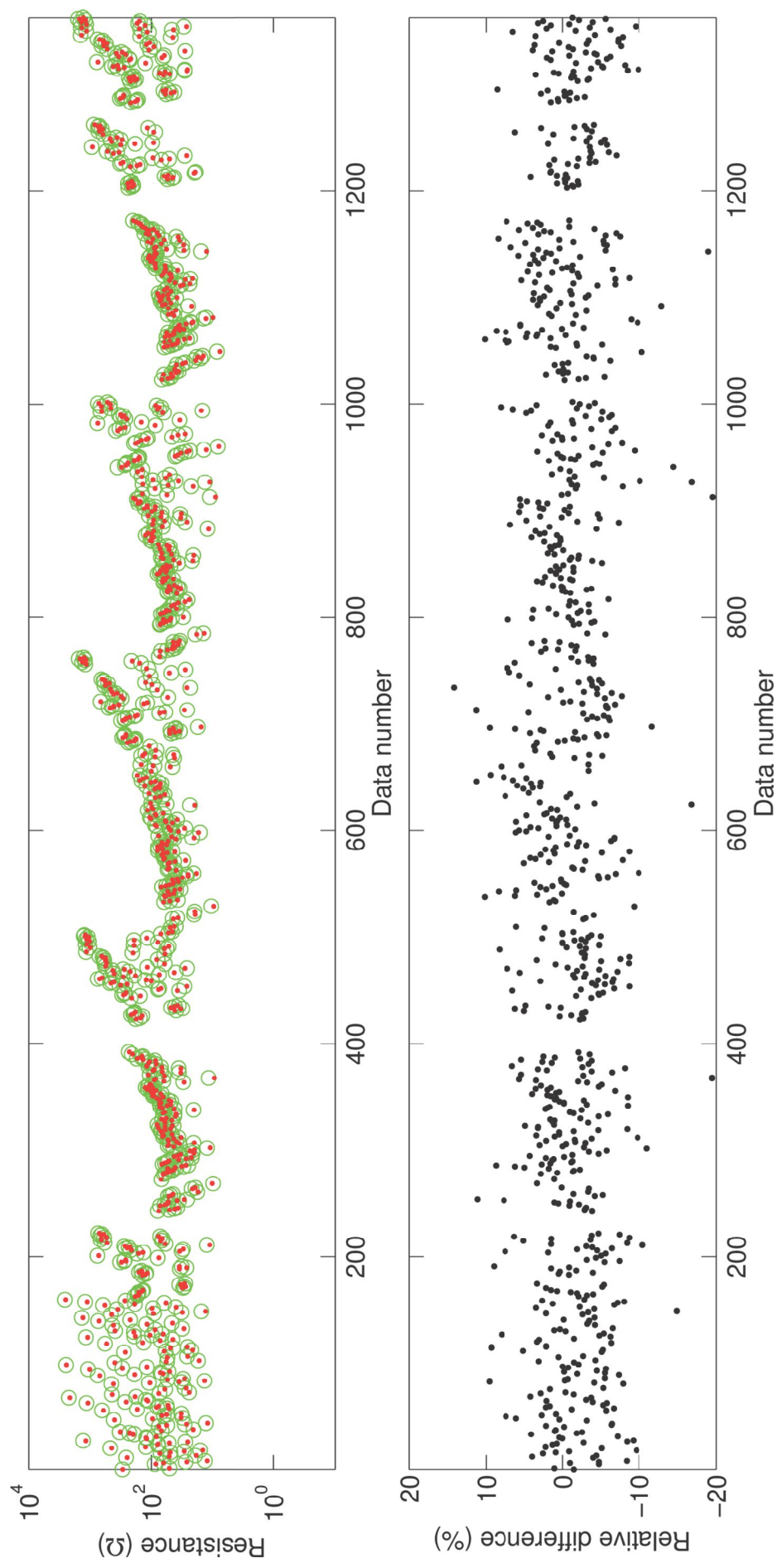


Fig. 6.15. Ajust de les respostes (punts vermells) del model a les dades (cercles verds) i diferència relativa entre respostes i dades (punts negres) pel cas 2 (35% CO_2) de l'experiment I

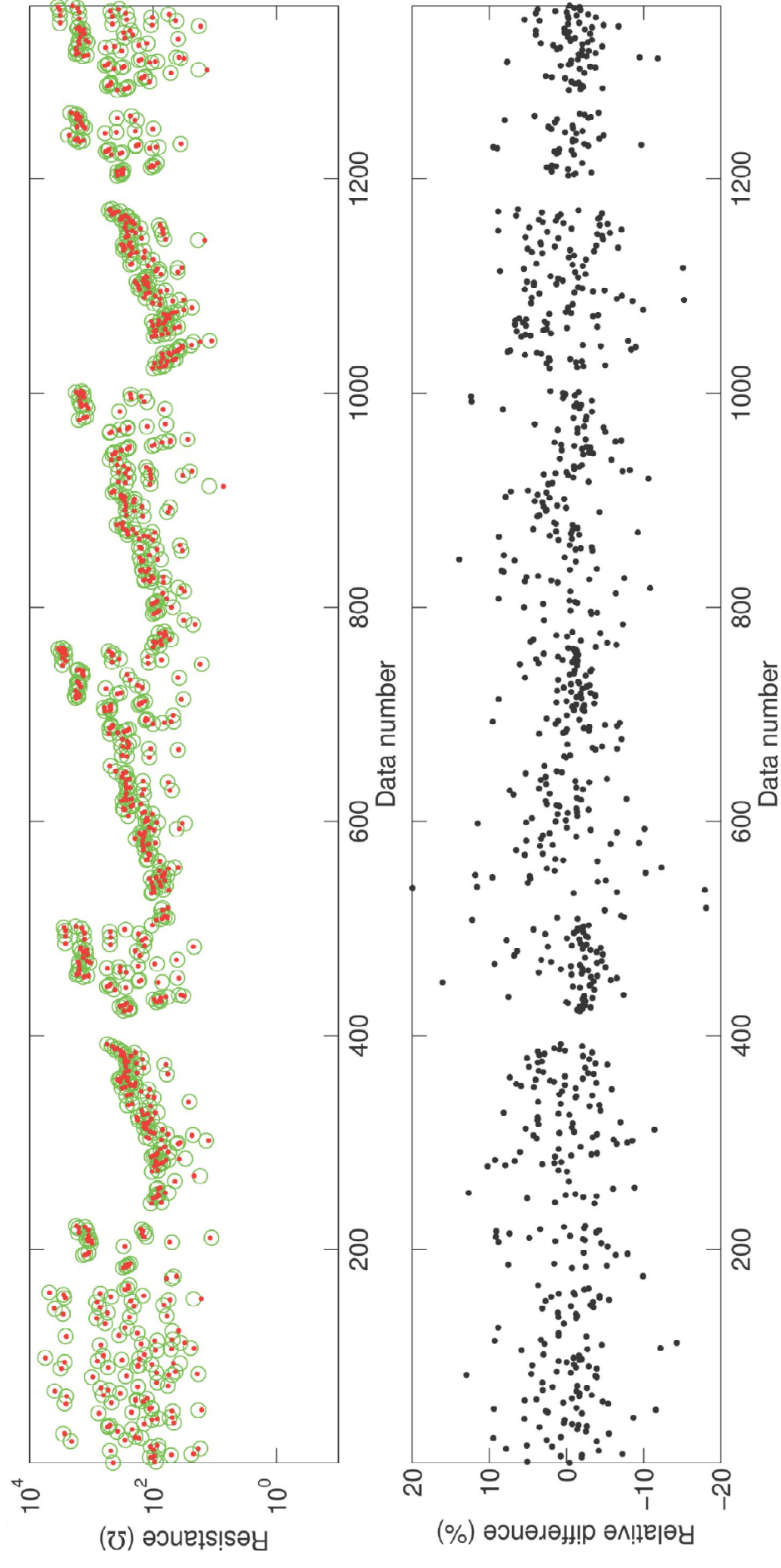


Fig. 6.16. Ajust de les respostes (punts vermells) del model a les dades (cercles verds) i diferència relativa entre respostes i dades (punts negres) pel cas 3 (55% CO_2) de l'experiment I

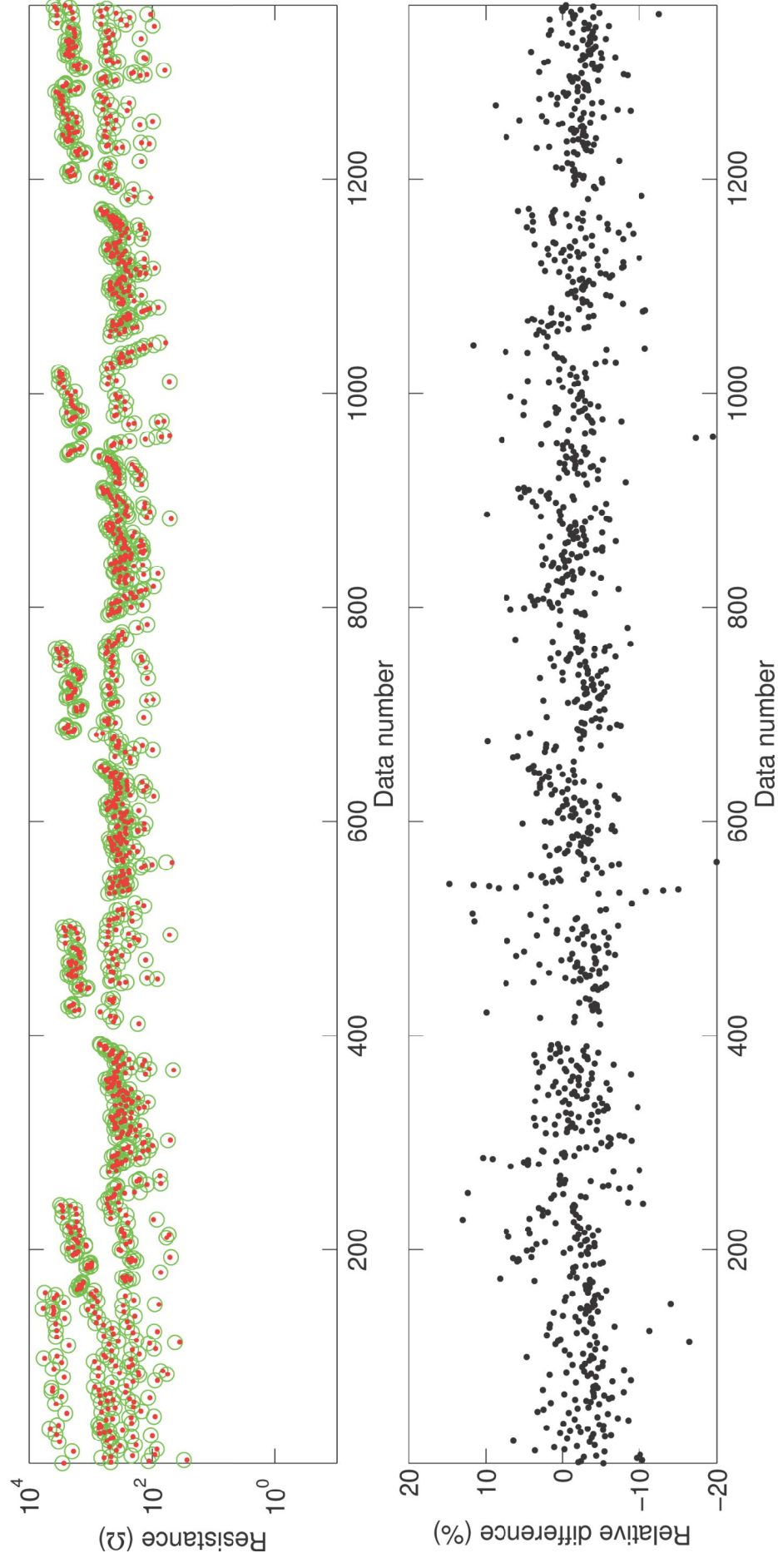


Fig. 6.17. Ajust de les respostes (punts vermells) del model a les dades (cercles verds) i diferència relativa entre respostes i dades (punts negres) pel cas 4 (71% CO_2) de l'experiment I

6.2.4 Quantificació de la saturació de CO₂

En aquest apartat, en primer lloc es determina l'exponent de saturació, necessari pel càlcul de la saturació de CO₂ a partir dels models de resistivitat (veure apartat 2.3.1). A continuació, es presenten els models de saturació de CO₂, que constitueixen els resultats principals de l'experiment I.

6.2.4.1 Càlcul de l'exponent de saturació

Per a determinar l'exponent de saturació, inicialment s'ha representat l'índex de resistivitat de la roca (Figura 6.18a), calculat pels valors de saturació de salmorra dels quatre casos de l'experiment I (100%, 65%, 45% i 29%, respectivament). S'ha assumit que la conductivitat de la salmorra és la mateixa als quatre casos, és a dir, que encara que es dissolgui una petita quantitat de CO₂ a la salmorra, aquesta és tan salina (30 g/l NaCl, veure Taula 6.1) que l'augment de la seva conductivitat és negligible (veure apartat 2.3.2). També era raonable assumir que l'efecte de la conducció superficial és negligible. Sota aquestes dues assumpcions, el pendent de la recta de regressió dels punts (S_{w_i}, RI_i) que passa per definició pel punt (1,1) ($S_w = 1 \Rightarrow RI = 1$), es correspon amb l'exponent de saturació.

Per a obtenir els valors de la resistivitat efectiva de la roca pels casos 1 a 4, s'ha utilitzat la configuració formada pels electodes AB = [8 20], MN = [11 23] (Figura 6.18b). Les raons per les quals s'ha escollit aquesta configuració s'exposen a continuació. 1) el pla determinat pels quatre electodes passa pel centre de la mostra; 2) els electodes estan prou lluny dels extrems superior i inferior de la roca per negligir algun possible efecte de proximitat a la cel·la metàl·lica i/o efectes de vora i 3) al mateix temps estan prou separats com per tenir sensibilitat a la quantitat de CO₂ de tota la roca.

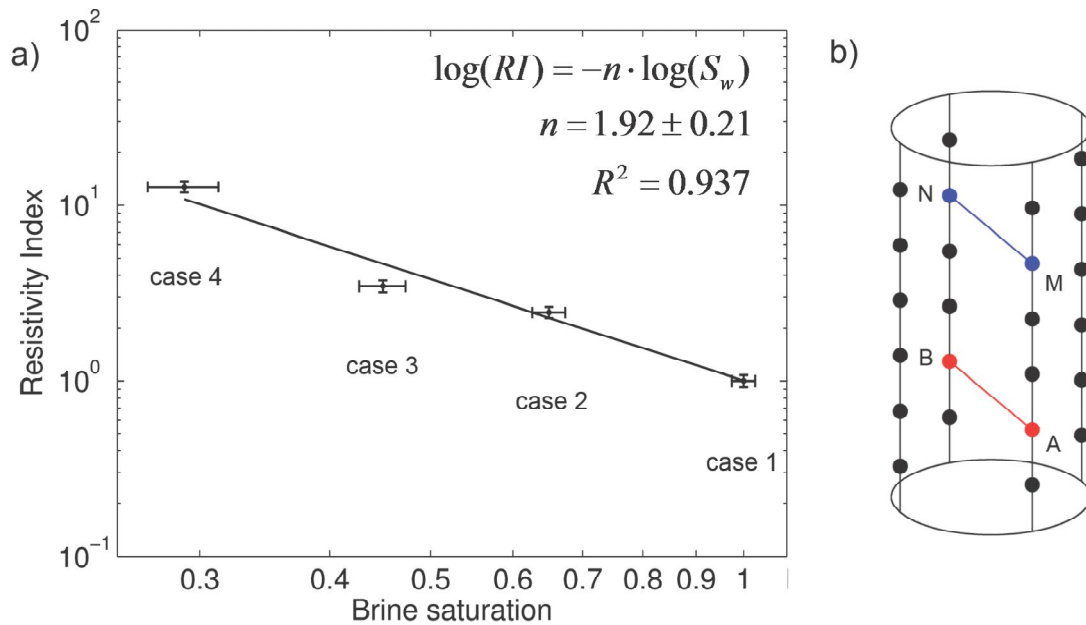


Fig. 6.18. a) Representació gràfica de l'índex de resistivitat en funció de la saturació de salmorra i de la recta de regressió que passa pel punt (1,1) utilitzada per a determinar l'exponent de saturació (veure Apèndix E) b) configuració utilitzada per a estimar la resistència efectiva de la roca

Per a la mostra de gres de Fontainebleau utilitzada en aquest treball, s'ha determinat un valor de $n = 1.92 \pm 0.21$ (el càlcul de la recta de regressió i de l'error de l'exponent es detallen a l'Apèndix E). Aquest resultat és coherent amb els valors de l'exponent de saturació determinats a la bibliografia [Durand, 2003; Knackstedt et al., 2007; Han et al., 2009; Revil et al., 2014].

6.2.4.2 Models de saturació de CO₂

L'obtenció de models de saturació de CO₂ era un dels objectius principals de l'experiment I. El valor de la resistivitat de cada element del model s'ha transformat a saturació de CO₂ mitjançant l'equació de l'índex de resistivitat (veure equació 2.12), utilitzant com a valor de l'exponent de saturació $n = 1.92$. A les Figures 6.19 – 6.21 es mostren els models de saturació de CO₂ calculats pels casos 2, 3 i 4 (veure Taula 6.4),

En tots els casos, a la part superior de la mostra (a partir del nivell 5), es detecta una zona amb alts valors de saturació de CO_2 , d'entre el 70 i el 90%. En base al protocol de preparació de la mostra (veure apartat 6.1), es pot afirmar que la zona superior de la roca, pels casos 2, 3 i 4, contenia exclusivament salmorra residual i la resta de la porositat estava plena de CO_2 .

Pel cas 2 (Figura 6.19), la zona d'alta saturació de CO_2 s'extén des de l'extrem superior de la mostra fins aproximadament el cinquè nivell d'electrodes (una percolació aproximada del 30% de la llargada de la mostra), mentre que, pel cas 3 (Figura 6.20), aquesta arriba fins aproximadament el tercer nivell (una percolació del 60%). Els models d'ambdós casos indiquen que al centre de la mostra hi ha una acumulació de salmorra que satura totalment la porositat.

Als laterals de la mostra (fins el nivell 5 pel cas 2 i fins el nivell 3 pel cas 3), es llegeixen valors de saturació de CO_2 d'aproximadament el 50%. Prop dels electrodes s'identifiquen les anomalies associades als artefactes de la inversió.

Les meitats superiors dels casos 3 i 4 (Figura 6.20 i 6.21, respectivament) són força semblants, tal com s'esperaria, ja que, en principi, en aquella zona la mostra només conté salmorra residual.

El cas 4 presenta clarament una situació de saturació total de CO_2 , encara que el model suggereix que hi hauria una quantitat no menyspreable de salmorra residual (un 50%) acumulada al centre de la mostra.

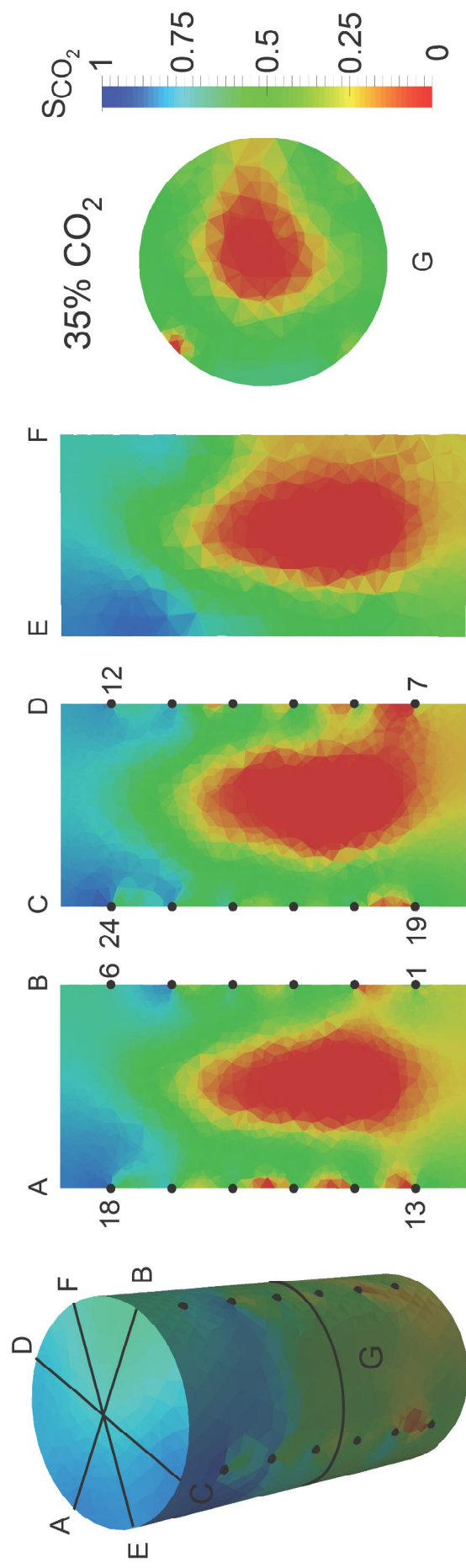


Fig. 6.19. Model de saturació de CO₂ obtingut pel cas 2 (35% CO₂) de l'experiment I, en base als models de les Figures 6.6 i 6.7. Als talls verticals (AB i CD) s'indica la posició dels electrodes

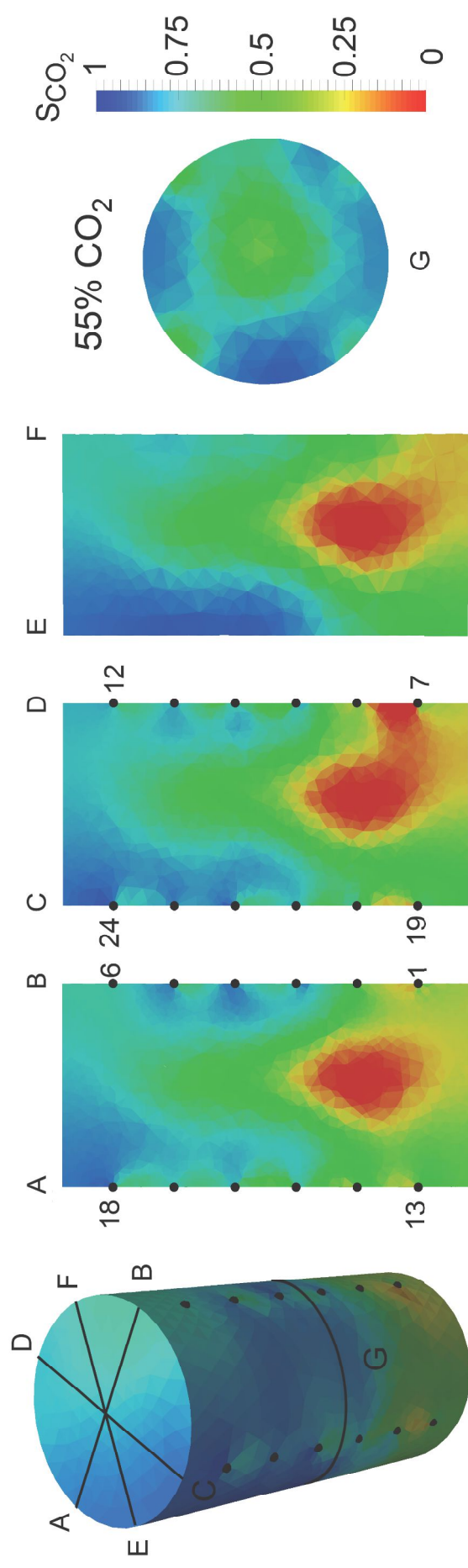


Fig. 6.20. Model de saturació de CO₂ obtingut pel cas 3 (55% CO₂) de l'experiment I, en base als models de les Figures 6.6 i 6.8. Als tall verticals (AB i CD) s'indica la posició dels electrodos

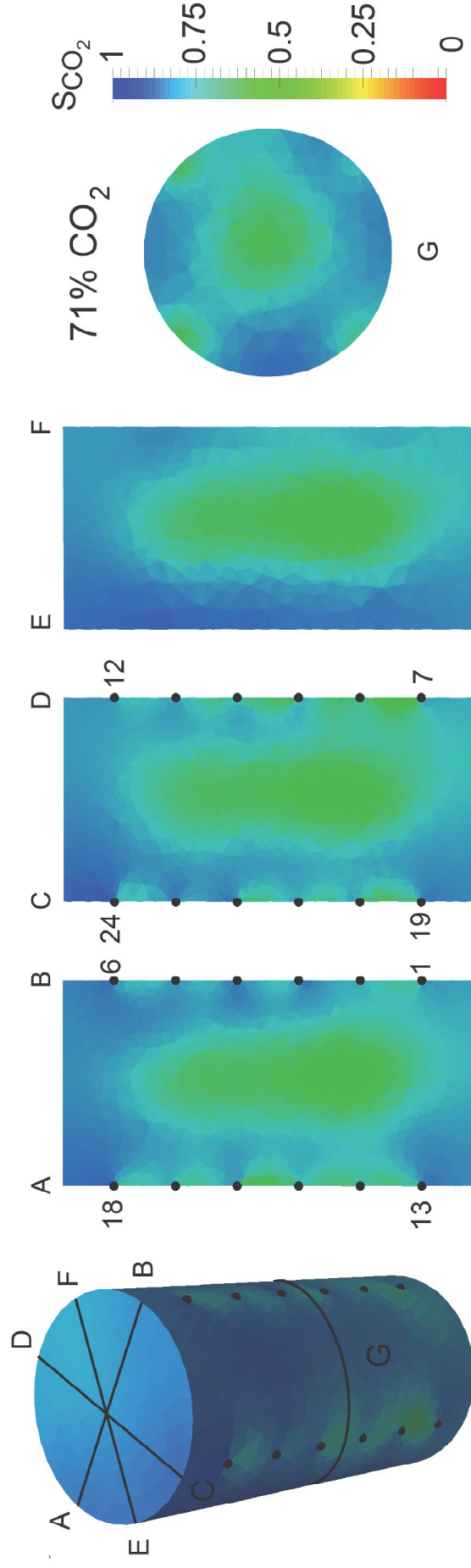


Fig. 6.21. Model de saturació de CO₂ obtingut pel cas 4 (71% CO₂) de l'experiment I, en base als models de les Figures 6.6 i 6.9. Als tall verticals (AB i CD) s'indica la posició dels electrodes

6.2.5 Discussió

Tot assumint que la mostra utilitzada en aquest experiment és homogèniament permeable (el gres de Fontainebleau té una distribució de mida de gra molt estreta [Revil *et al.*, 2014]), el protocol de saturació de salmorra i CO_2 seguit (veure apartat 6.2.1) perseguia obtenir, pels casos 2 i 3 (35 i 55% de saturació de CO_2 , respectivament), una interfase entre la salmorra i el CO_2 amb una orientació aproximadament horitzontal. Els resultats obtinguts mitjançant la inversió de les dades i el càlcul de la saturació de CO_2 suggereixen que la realitat és diferent i manifesten dues característiques a priori no esperades:

1. Pels casos 2, 3 i 4, el centre dels models és més conductor que el seu entorn.
2. Pels casos 2 i 3, la zona central inferior dels models, corresponent a una zona predominantment saturada de salmorra, és més conductora que la zona equivalent del cas 1.

A continuació es discuteixen algunes hipòtesis sobre les causes d'aquests resultats.

6.2.5.1 Laterals resistents dels models

L'explicació més probable al fet que, pels casos 2, 3 i 4, l'entorn sigui més resistent que el centre dels models, és que a la superfície dels electrodos es genera gas degut a les reaccions electrolítiques induïdes pel pas del corrent elèctric durant la mesura. Tres observacions recolzen aquesta hipòtesi: en primer lloc, durant la determinació de la resistència a la corrosió dels diferents materials constitutius dels d'electrodos (veure Taula 3.1), es va observar que, a més de produir-se el fenomen de la corrosió, durant la injecció de corrent es generaven bombolles de gas dins del fluïd. En una dissolució d'aigua i NaCl, aquest procés es

veu molt afavorit i el conjunt de reaccions electrolítiques que tindria lloc generaria gas clor a l'ànode i hidrogen al càtode.

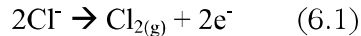
En segon lloc, durant la mesura de tomografia del cas 1 (0% CO₂), es va observar un increment gradual de la pressió (de fins a 7 bar) al circuit que conté la roca (veure Figura 4.1). Contràriament, pels casos 2, 3 i 4 no es va detectar cap augment significatiu de la pressió. Tenint en compte que, pel cas 1 tot el circuit estava ple de salmorra, és raonable pensar que la generació de bombolles a la salmorra que està en contacte amb els electrodos provoqués un augment de la pressió, ja que l'aigua té un coeficient de compressibilitat molt baix. Per contra, quan el circuit superior està ple de CO₂, la generació d'una quantitat semblant de gas provocarà un augment de la pressió molt inferior, perquè el CO₂ en estat gasós es pot comprimir molt més fàcilment que la salmorra líquida. La baixa compressibilitat de la salmorra també explicaria perquè el cas 1 no mostra un centre tant conductor en relació als laterals –potser es van generar menys bombolles i/o aquestes ocupaven menys volum que per la resta de casos, degut a l'increment de la pressió. Les bombolles de gas generat, a mesura que s'acumulessin, desplaçarien part de la salmorra cap al centre de la mostra i cap amunt, tal i com es pot observar als casos 2, 3 i 4. Pels casos 2 i 3, la salmorra empesa pel gas migraria també cap amunt perquè el circuit inferior de sortida està ple de salmorra i aquesta és incompressible; en canvi, el CO₂ que omple el circuit superior no oferiria tanta resistència a la compressió causada pel desplaçament ascendent de la salmorra. Possiblement per aquesta raó la zona central conductora arriba tant amunt al cas 3, tot i que la salmorra només ocupa un 45% del volum de la porositat de la mostra. A les zones que només contenen salmorra residual (com són la part superior del cas 2 i 3 i tot el cas 4), el gas generat als electrodos la concentraria cap al centre de la mostra.

En tercer lloc, les inversions de les dades obtingudes dels cil·lindres d'argila durant els experiments de validació (veure apartat 3.31), no mostren aquest

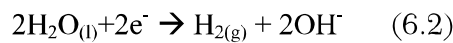
contrast de resistivitat entre el centre de la mostra i els laterals, cosa que reforça la hipòtesi que, pel gres de Fontainebleau, aquest pot estar causat principalment per la interacció del corrent amb el fluïd que satura la mostra.

També hi ha evidència de l'electròlisi a la literatura. A Breen *et al.* [2012], es notifica la presència de bombolles de gas al voltant dels electrodes, en un experiment de monitoreig amb tomografia elèctrica 2D d'una ploma d'aire en un tanc transparent ple de sorra saturada amb salmorra. La presència del gas és confirmada, paral·lelament, mitjançant l'adquisició d'imatges amb una càmera digital i aplicant tècniques de visualització quantitativa. En aquell cas, però, la mida del tanc en relació a la mida dels electrodes és molt més gran que en el nostre cas, i l'impacte a la imatge final és mínim.

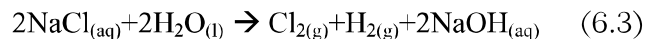
A continuació es presenta una estimació del volum de gas generat per electròlisi durant una mesura, utilitzant les lleis de Faraday de l'electròlisi. A l'ànode es produeix la reacció



Per altra banda, al càtode es produeix la reacció



La reacció general seria



L'aparell de tomografia efectua entre 2 i 4 stacks de mesures, tenint en compte que el procés de stacking comença a partir del tercer pols d'injecció. Així doncs, s'emeten entre 5 i 7 polsos per cada injecció. Cada pols dura 250 ms, de manera

que, coneixent el nombre de *stacks* i la intensitat, es pot calcular per una mesura concreta el nombre total de mols d'electrons que van circular per la mostra:

$$n_e = \frac{t}{F} \cdot \sum_{j=1}^N (3 + s_j) \cdot I_j, \quad (6.4)$$

on N és el nombre d'injeccions, t és la durada dels polsos d'injecció ($t = 0.25$ s), F és la constant de Faraday, s_j és el nombre de *stacks* de la injecció j -èssima i I_j és la intensitat mesurada per a la injecció j -èssima.

Un cop es coneix el nombre de mols d'electrons que han circulat durant tota la mesura, a partir de les semi-reaccions d'oxidació i reducció (veure equacions 6.1 i 6.2), es pot estimar el nombre de mols de gas generats. En resulta

$$n_{Cl_2} = n_{H_2} = \frac{n_e}{2}, \quad (6.5)$$

on n_{Cl_2} és el nombre de mols de clor, n_{H_2} és el nombre de mols d'hidrogen i n_e és el nombre de mols d'electrons. A les condicions experimentals, pel cas 2 el nombre total de mols de gas generat ocupa aproximadament 0.67 cm^3 , corresponent a un 6.1% del volum de la porositat. Pel cas 3, el volum de gas generat representa un 3.9%, mentre que pel cas 4 és un 2.4%. Pel cas 1, seria un 2.8%, tenint en compte que la pressió a l'interior de la cel·la, causada per la generació de gas, va augmentar fins a 8 bar. Per a tenir una referència en termes de volum del model, si s'assumeix que el gas s'acumula en regions esfèriques adjacents als electrodes, el seu diàmetre oscil·laria entre els 6 i els 8 mm. Per tant, el volum de gas generat per electròlisi calculat de manera teòrica, ocuparia un volum detectable als models.

Paral·lelament al fenomen de l'electròlisi, també s'ha de tenir en compte que, a causa de l'ús de corrent continu, la polarització del fluid al voltant dels electrodos (els ions més propers als electrodos es desplacen cap a ells) pot causar una pèrdua de càrrega i augmentar la seva resistivitat [Stacey, 2006]. Una possible solució seria utilitzar una font d'alimentació amb corrent altern d'alta freqüència, però implicaria l'aparició d'efectes de capacítàcia que s'haurien de tenir en compte per a poder calcular la resistivitat real [Bagotskii, 1993].

Degut al fet que hi ha una diferència de pressió entre l'interior i l'exterior del tub de Viton, el nitrogen que aplicava la pressió de confinament podria permear cap a l'interior a través de l'estructura del tub de Viton. Segons les lleis de Fick de la difusió, el flux estacionari de gas que permea a través d'una membrana amb superfície A i gruix d donada una diferència de pressió constant ΔP entre ambdós costats de la membrana s'expressa com [Sturm, 2004]

$$F = K \frac{A \Delta P}{d}, \quad (6.6)$$

on K és el coeficient de permeació del gas. El coeficient de permeació del N_2 en Viton a les condicions experimentals val, aproximadament, $5 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{bar}^{-1}$ [Peacock, 1980]. Si la pressió de confinament amb N_2 era de 25 bar i a l'interior de la mostra hi havia pressió atmosfèrica (~ 1 bar), coneixent les mides del tub de Viton ($h = 12.4 \text{ cm}$, $r = 2.9 \text{ cm}$, $d = 0.9 \text{ cm}$) s'ha estimat un flux estacionari màxim de $3 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$. En les 4 hores que durava fer el buit, saturar la mostra i efectuar una mesura de tomografia, haurien permeat, aproximadament, 0.028 cm^3 de N_2 , un 0.26% del volum de la porositat. Aquest resultat permet descartar la permeació del N_2 com a font principal de gas als laterals de la mostra.

6.2.5.2 Variació aparent de la conductivitat de la salmorra

El fet que als casos 2 i 3 el centre del model sigui més conductor que pel cas 1, podria ser degut, en primer lloc, a la variació de la temperatura o la pressió. Es descarta l'efecte de la temperatura perquè les quatre mesures es van efectuar a una temperatura ambient al voltant de 18°C. A la Figura 6.22 es representa la variació relativa de la resistivitat de la salmorra (i, per tant, la de la roca) en funció de la temperatura, segons l'equació empírica de Bigelow [1992]

$$\rho_w = \left(0.0123 + \frac{3647.5}{c_{NaCl}^{0.955}} \right) \cdot \frac{45.43}{T + 21.54}, \quad (6.7)$$

on c_{NaCl} és la concentració de NaCl en solució (en ppm), i T la temperatura (en °C).

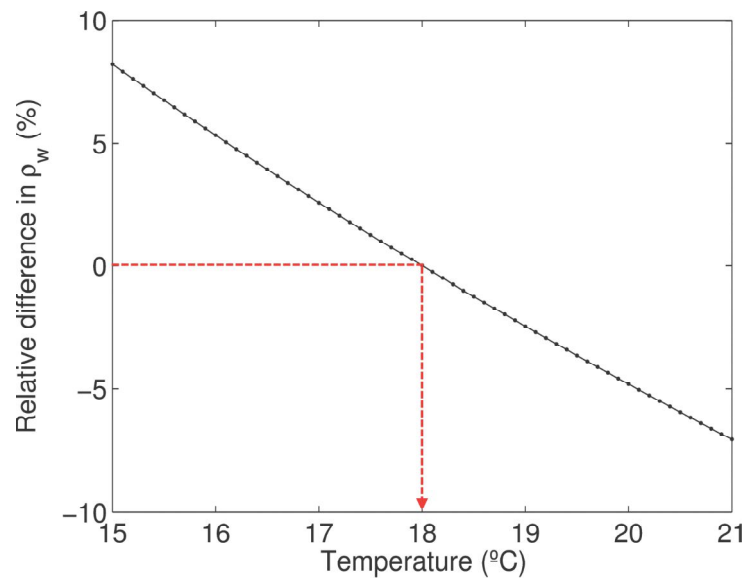


Fig. 6.22. Variació relativa de la resistivitat de la salmorra A (30 g/l NaCl) en funció de la temperatura respecte a la resistivitat corresponent a la temperatura de l'experiment (18°C)

A la Figura 6.22 es pot comprovar que, al voltant de la temperatura de l'experiment, l'efecte de la temperatura en la resistivitat de la salmorra i, per tant, de la roca, no seria prou important per explicar les diferències entre models.

Pel que fa a la pressió, convé recordar que la mesura del cas 1 es va fer a una pressió més alta que la dels casos 2 i 3 (8 bar enfront d'1 bar, respectivament). Se sap que la conductivitat de la salmorra augmenta amb la pressió [Quist and Marshall, 1969], així que s'hauria d'haver observat l'efecte contrari.

Per tal d'investigar si la diferència de conductivitats és deguda al procés d'inversió, s'ha efectuat un estudi sintètic per a quatre models semblants al cas 2, als quals s'assumeix que hi ha acumulació de gas a prop dels electrodos amb una morfologia vertical (Figures 6.23a – d). S'ha investigat la sensibilitat de la inversió a la resistivitat de la salmorra i dels laterals de la mostra (Taula 6.6). Els valors assignats a la làmina inferior ($\rho_{\text{làmina inf}} = 150 \text{ } \Omega \cdot \text{m}$) i superior ($\rho_{\text{làmina sup}} = 1000 \text{ } \Omega \cdot \text{m}$) s'han escollit semblants als recuperats pel cas 2 (veure Figura B.1). El model inicial era homogeni, amb $\rho_0 = 10 \text{ } \Omega \cdot \text{m}$, i la resistivitat de les làmines era la mateixa que la del model de partida. Durant la inversió no s'ha permès variar el valor de resistivitat de les làmines.

Taula 6.6. Característiques dels casos considerats per a les proves sintètiques

Model	$\rho_{z_1} \text{ (} \Omega \cdot \text{m)}$	$\rho_{z_2} \text{ (} \Omega \cdot \text{m)}$	$\rho_{z_3} \text{ (} \Omega \cdot \text{m)}$
a	250	10	250
b	250	10	60
c	250	5	250
d	250	5	60

A les Figures 6.23e – h es mostren els models resultants de la inversió de les respostes calculades per a cada model. Aquests confirmen que la presència de cossos resistents verticals als laterals del model fa que la resistivitat del centre del model sigui inferior al valor real en tots els casos. Les Figures 6.23f i 6.23h mostren que la inversió és sensible a la resistivitat de la zona 3, ja que en recupera valors de resistivitat més baixos que per les Figures 6.23e i 6.23g. Les Figures 6.23g i 6.23h posen de manifest que la inversió també n'és sensible.

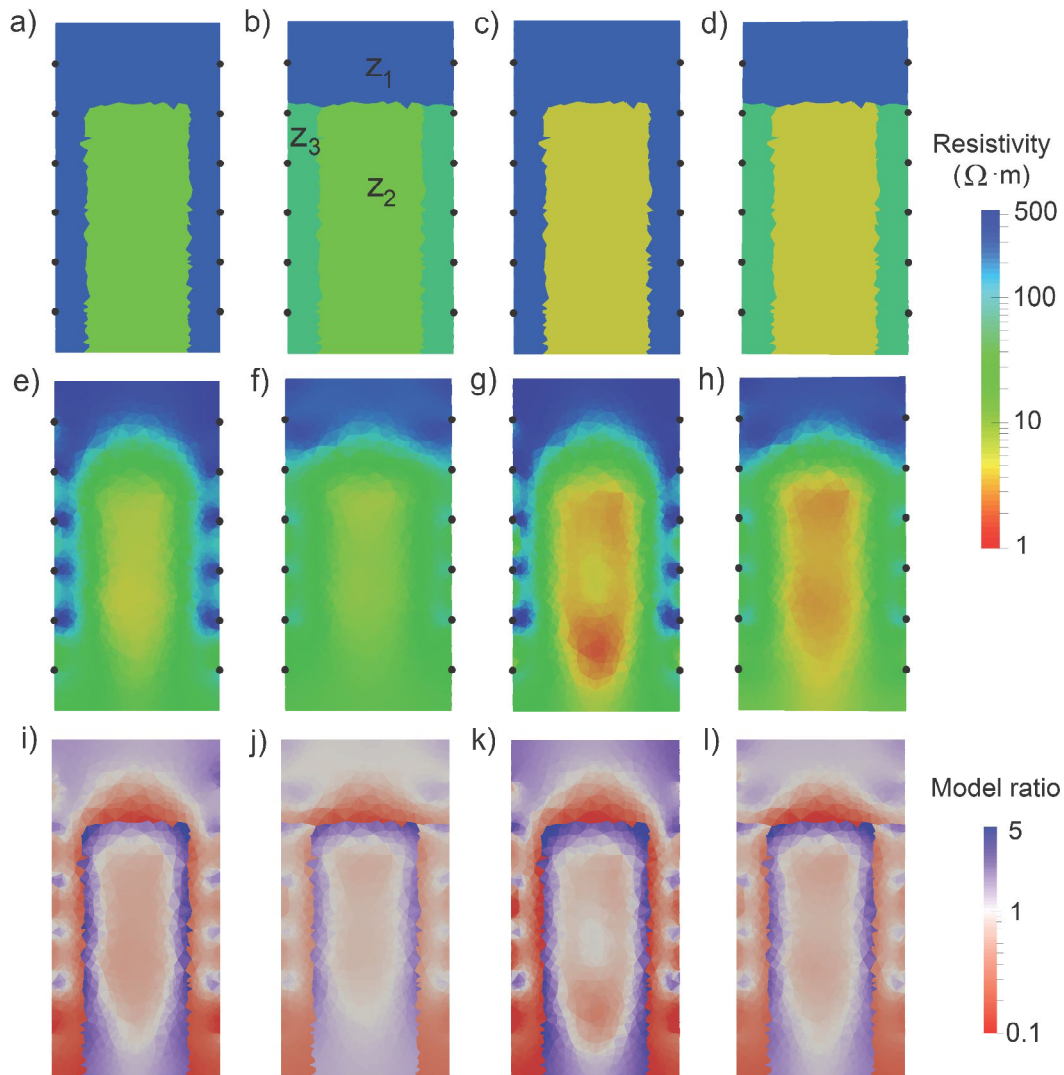


Fig. 6.23. a) – d) Models de partida; e) – h) models recuperats mitjançant la inversió de les respostes calculades a partir dels models de partida; i) – l) quocient de models (e/a, f/b, g/c i h/d)

A les Figures 6.23i – l es presenta el quocient (element a element) entre els models obtinguts per inversió (Figures 6.23e – h) i els models de partida (Figures 6.23a – d). Es poden ordenar segons el grau de subestimació de la resistivitat de la salmorra, prenent com a indicador els valors del quocient. En ordre decreixent: 3, 1, 4, 2. Aquest ordre coincideix amb l'ordre decreixent del quocient de resistivitats entre les zones 3 i 2: 50 (250/5), 25 (250/10), 12 (60/5) i 6 (60/10).

Com a resum d'aquest apartat i sense pretendre implicar causalitat, a la Figura 6.24 es compara el model de la Figura 6.23b, el model de la Figura 6.23f i el model corresponent al cas 2 de l'experiment I (veure Figura 6.11 –tall AB). A la Figura 6.24b es pot observar un “ascens” de la zona conductora central allà on la interfase hauria de ser horitzontal. Per altra banda, també es comprova que, a la zona inferior dels laterals del model de la Figura 6.24b, la resistivitat presenta valors inferiors als reals, indicant que, probablement, aquesta es troba emmascarada per la proximitat a la cel·la metàl·lica. La gran semblança entre les Figures 6.24b i c suggereix que la Figura 6.24a podria resultar una descripció vàlida de la realitat del cas 2 de l'experiment I.

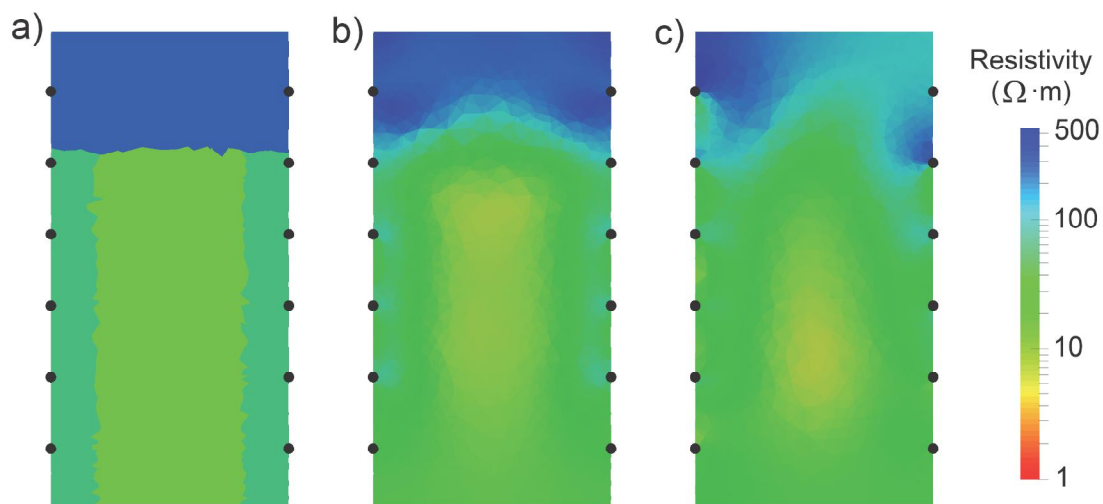


Fig. 6.24. a) Model de la Figura 6.23b; b) model de la Figura 6.23f i c) model obtingut pel cas 2 de l'experiment I (veure Figura 6.11 –tall AB)

La conclusió d'aquest estudi sintètic és que la presència de cossos resistents laterals no només és un tret robust dels models sinó que, a més, explica la subestimació sistemàtica de la resistivitat de la salmorra del centre de la mostra.

6.2.6 Conclusions de l'experiment I

En aquest experiment s'ha aplicat la tomografia elèctrica a una mostra de gres de Fontainebleau per quantificar la distribució de salmorra i CO₂ en quatre casos amb saturacions diferents. Les dades adquirides són, en general, de bona qualitat (més del 80% presenta un error recíproc relatiu inferior al 10% pels casos 1 i 4, i més del 65% pels casos 2 i 3). La comparació dels conjunts de dades ha demostrat que aquestes són sensibles a la substitució de salmorra per CO₂.

S'han obtingut models de resistivitat mitjançant la inversió de les dades, permetent disposar d'imatges geoelèctriques de l'interior de la mostra. També s'ha establert com convertir la distribució de resistivitats a saturació de CO₂, cosa que ha requerit la determinació de l'exponent de saturació de la mostra. D'aquesta manera s'ha pogut caracteritzar la distribució de les fases, i ha quedat patent que la tomografia elèctrica és capaç de detectar i quantificar la saturació de CO₂.

S'han detectat cossos verticals resistents adjacents als electrodes. Vàries evidències experimentals i teòriques recolzen la hipòtesi que hi ha generació de gas a la salmorra en contacte amb la superfície dels electrodes a causa de l'electròlisi induïda pel pas del corrent a través de la salmorra. Aquest exemple posa de manifest les capacitats de la tomografia elèctrica de detectar la presència de gasos en medis porosos saturats.

També s'ha observat que la conductivitat del centre dels models pels casos 2, 3 i 4 és inferior a la del cas 1. S'ha descartat l'efecte de la temperatura o la pressió, i es creu que podria ser un efecte del procés d'inversió, conseqüència de la presència dels gasos generats per electròlisi als laterals de la mostra. Aquest fenomen es podria solucionar invertint les dades amb un programa que permeti limitar els valor mínim de la resistivitat. Només caldria realitzar la inversió imposant que no es poguessin assignar resistivitats inferiors a les del cas 1.

6.3 Experiment II: Monitoreig de la dissolució de CO₂ a alta pressió

Un possible escenari durant el procés d'emmagatzematge geològic de CO₂ és una fuga de CO₂ des del reservori a causa de l'augment de pressió [Birkholzer *et al.*, 2009]. Si el CO₂, arribés a un aquífer superior, es dissoldria a l'aigua subterrània, tot variant-ne la química i les interaccions entre aquesta, la roca i la biosfera (veure apartat 2.3.2). La conseqüència elèctrica immediata de la dissolució del CO₂ a l'aigua de l'aquífer és que en faria disminuir la seva resistivitat. En aquest apartat es presenten els resultats de dos experiments previs, el càlcul de la conductivitat superficial, el protocol experimental i, finalment, els resultats de l'experiment II, on es va monitoritzar amb tomografia elèctrica la dissolució de CO₂ a la salmorra poc salina que saturava la mostra de gres de Fontainebleau.

6.3.1 Experiments previs

Abans de realitzar l'experiment II, es van dur a terme dos experiments previs. En primer lloc, es va efectuar una mesura d'ERT amb la mostra completament saturada de salmorra B (0.3 g/l NaCl), a pressió atmosfèrica, com a control experimental. En segon lloc, es va realitzar un experiment preliminar de dissolució per comprovar l'estabilitat del sistema experimental a alta pressió.

6.3.1.1 Caracterització de la mostra totalment saturada amb salmorra B

En aquest experiment preliminar es va saturar la mostra amb la salmorra B (0.3 g/l NaCl), molt menys salina que la salmorra A (30 g/l NaCl). Tot i així, les dades adquirides (Figura 6.25a) van ser de molt bona qualitat. La resistència és aproximadament dos ordres de magnitud més gran que la del cas 1 de l'experiment I (Figura 6.6a). Es fa patent l'important efecte de la conductivitat del fluïd en les mesures de tomografia elèctrica.

Per altra banda, la resistivitat aparent (Figura 6.25b) presenta bastanta dispersió, però es pot llegir un valor predominant aproximat de $\rho = 750 \Omega \cdot m$. Com que la mostra estava completament saturada de salmorra, en principi es podria assumir que la resistivitat aparent es correspon amb la resistivitat efectiva. El model de resistivitats (Figura 6.25c), es pot observar que la resistivitat recuperada es troba entre 750 i 1000 $\Omega \cdot m$. Les anomalies conductores adjacents als electodes es veuen magnificades, probablement a causa de la regularització, que imposa una gradació suau entre les anomalies conductores i les zones resistents del centre i els extrems del model. També sembla que la part superior i inferior del model són més resistents del que s'esperaria, per a compensar el gran contrast de resistivitat entre la roca i la cel·la que les làmines no haurien pogut emmascarar del tot.

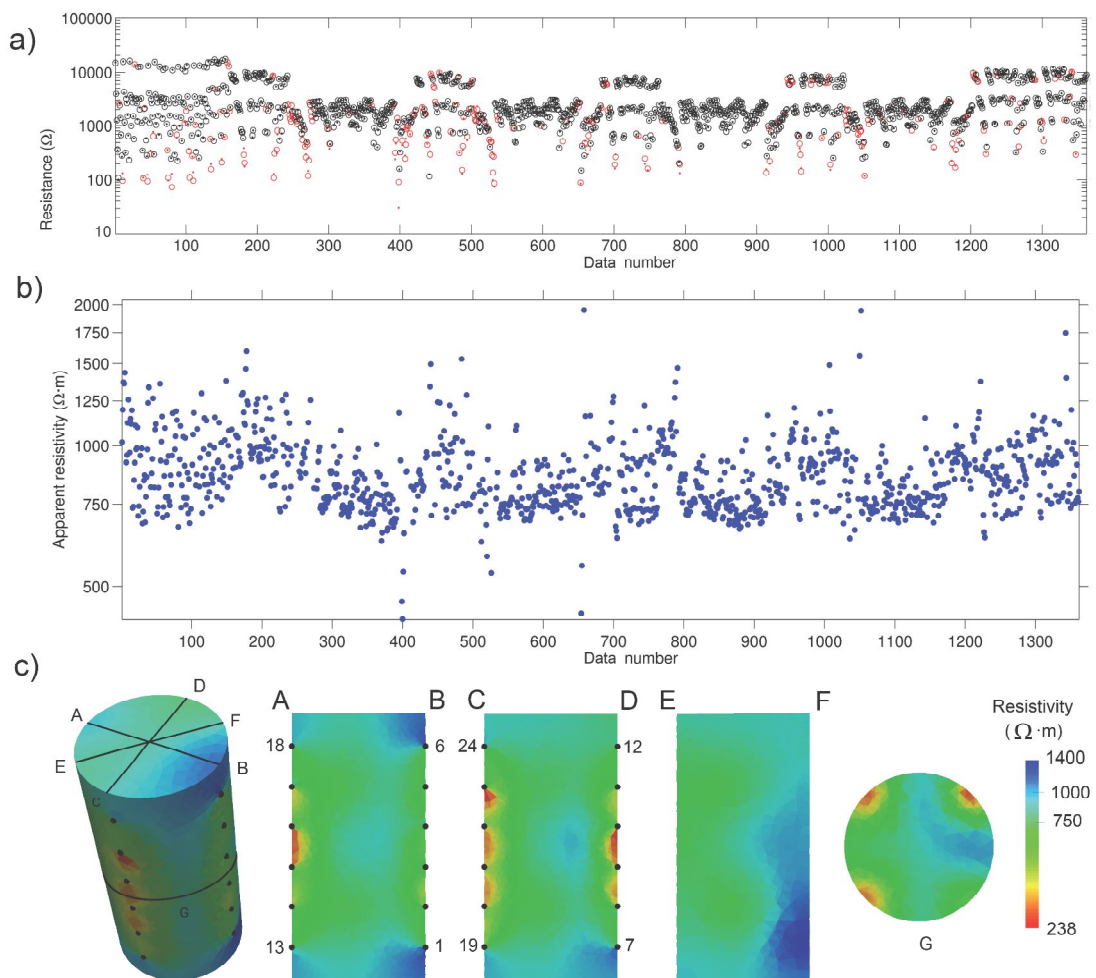


Fig. 6.25. a) Dades del cas amb la mostra totalment saturada de salmorra B (0.3 g/l NaCl); b) resistivitats aparents i c) model obtinguts per inversió

6.3.1.2 Determinació de la conductivitat superficial

A l'apartat 2.3.2 s'havia afirmat que, en algunes condicions, la conductivitat superficial no s'ha d'ignorar a l'hora d'efectuar anàlisis quantitatives de dades de tomografia elèctrica. Això passa quan la salmorra és poc conductora i/o quan la mostra està poc saturada de salmorra.

Als experiments de l'apartat 6.3 s'utilitza la salmorra B, molt poc salina (0.3 g NaCl/l). Per tant, és convenient determinar el terme de conductivitat superficial que apareix a l'equació 2.1. L'expressió teòrica s'explicita a l'equació 2.11. Utilitzant $Q_s = 0.64 \text{ C}\cdot\text{m}^2$ per a grans esfèrics de sílice [Revil *et al.*, 2014], considerant un diàmetre mitjà de $250 \mu\text{m}$ i calculant el valor teòric de la mobilitat iònica del Na^+ en aigua a 18°C amb l'expressió $\mu_{\text{Na}^+} = D_{\text{Na}^+} z_{\text{Na}^+} \Phi / RT$, utilitzant $D_{\text{Na}^+} = 1.13 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ [Yuan-Hui and Gregory, 1974], s'obté un valor de conductivitat superficial intrínseca de $\lambda_s = 6.18 \cdot 10^{-4} \text{ S}\cdot\text{m}^{-1}$. Aquest valor teòric és coherent amb el valor calculat a Revil *et al.*, [2014], $\lambda_s = 8.72 \cdot 10^{-4} \text{ S}\cdot\text{m}^{-1}$, perquè aquest valor es va calcular a 25°C , i els experiments d'aquest treball s'han realitzat al voltant dels 18°C (la conductivitat serà més baixa que a 25°C). El valor calculat de λ_s , és coherent amb el rang de valors determinat a partir de la Figura 6.25b, assumint que la resistivitat aparent es pot assimilar a la resistivitat efectiva, amb un valor comprès entre 700 i $750 \Omega\cdot\text{m}$. Així, per $\sigma = 1/700 \text{ S}\cdot\text{m}^{-1}$, $\lambda_s = 7.46 \cdot 10^{-4} \text{ S}\cdot\text{m}^{-1}$. Per $\sigma = 1/750 \text{ S}\cdot\text{m}^{-1}$, $\lambda_s = 2.87 \cdot 10^{-4} \text{ S}\cdot\text{m}^{-1}$.

A l'apartat 6.2.2, s'havia determinat l'exponent modificat de cimentació $m^* = 1.57$. Aquest paràmetre permet calcular el factor de formació $F = (\phi - \phi_p)^{m^*} = (0.11 - 0.02)^{1.57} = 43.84$. Finalment, es pot determinar la conductivitat superficial per la mostra de gres de Fontainebleau utilitzada en aquest treball, $\sigma_s = \lambda_s / (F\phi) = 6.18 \cdot 10^{-4} / (43.84 \cdot 0.11) = 1.28 \cdot 10^{-4} \text{ S}\cdot\text{m}^{-1}$.

L'equació que relaciona la conductivitat elèctrica efectiva d'una roca amb la saturació de salmorra es pot escriure com [Revil *et al.*, 2014]

$$\sigma = S_w^n \frac{1}{F} \sigma_w + S_w^{n-1} \frac{1}{F\phi} \lambda_s, \quad (6.8)$$

Pel cas de l'apartat 6.3.1.1 ($S_w = 1$), s'obté $\sigma_{el}/\sigma_s \approx 10$. En canvi, quan $S_w = 0.1$, $\sigma_{el} \approx \sigma_s$.

6.3.1.3 Experiment de dissolució preliminar a alta pressió

Per tal de determinar l'estabilitat del sistema experimental es va realitzar un experiment a alta pressió. A la mostra de gres de Fontainebleau, saturada amb un 65% de salmorra B (0.3 g/l NaCl), s'hi va injectar CO₂ fins a 49 bar (la màxima pressió de sortida de la bombona) i, tot seguit, es va tancar la vàlvula V1, de manera que no pogués entrar més CO₂ al sistema. Al llarg dels deu dies de durada de l'experiment, la pressió del CO₂ va disminuir progressivament, tal com mostra la Figura 6.26. La baixada de la pressió indicava que cada cop hi havia menys molècules de CO₂ al volum ocupat pel gas, suggerint que el CO₂ es dissolia a la salmorra.

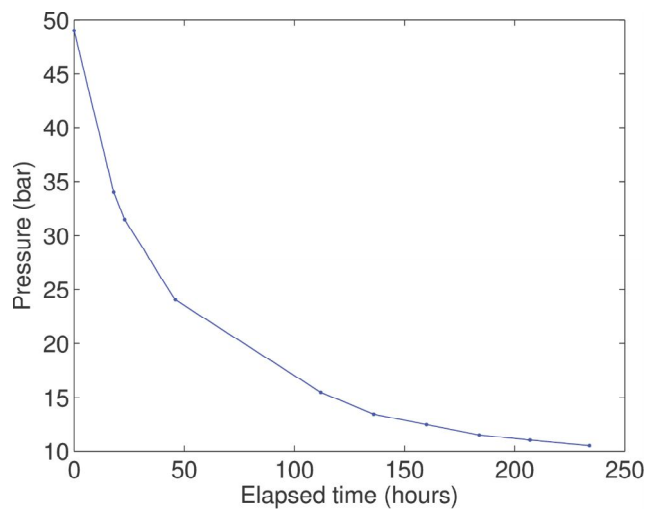


Fig. 6.26. Evolució de la pressió de CO₂ al llarg de l'experiment previ d'alta pressió

Es coneixia el volum que podia ocupar el CO_2 (el volum de la porositat no ocupada per salmorra més el volum dels tubs del circuit superior), la pressió i la temperatura i, per tant, el nombre de mols de CO_2 que ocupava el circuit superior quedava determinat,

$$n = \frac{PV_{\text{CO}_2}}{Z(P,T) \cdot RT}, \quad (6.9)$$

on $Z(P,T)$ és el factor de compressibilitat (la desviació del comportament de gas ideal) del CO_2 . Per aquest experiment, el nombre de mols injectats va ser $n_0 = 0.0212$.

La pressió final mesurada va ser de 10.5 bar. Aquesta dada permet calcular el nombre de mols de CO_2 gas encara presents al circuit superior ($n_f = 0.0034$), de manera que es podia calcular el nombre total de mols de CO_2 que s'havia dissolt a la salmorra, $n_d = n_0 - n_f = 0.0212 - 0.0034 = 0.0178$. Coneixent el volum de salmorra en el qual s'havien dissolt (la salmorra que saturava la mostra més la que omplia el circuit inferior), es podia determinar la concentració final de CO_2 aquós a la salmorra, $c_{\text{CO}_2} = 2.097 \text{ M}$. Aquest valor, però, entra en contradicció amb la solubilitat teòrica calculada per a les condicions del final de l'experiment amb l'aplicació online (calibrada amb dades experimentals) disponible a http://models.kl-edu.ac.cn/models/h2o_co2_nacl/ [Duan and Sun, 2003]. El valor teòric de la concentració era molt inferior, $c_{\text{CO}_2}^{\text{teòrica}} = 0.3923 \text{ m}$. La pressió final a la qual s'hauria hagut d'arribar, suposant que la salmorra es saturés en CO_2 respectant la solubilitat teòrica, seria $P_f = 43.5$ bar. La diferència de pressió observada implica que el CO_2 es dissolia també al Viton que envolta la mostra.

A partir de la corba d'evolució temporal de la pressió es podia determinar el coeficient de difusió del CO_2 en Viton, ja que la corba estava principalment

determinada per aquest procés, i no per la difusió en la salmorra. El mètode seguit està detallat a Civan and Rasmussen [2006]. El valor obtingut és d' $1.6 \cdot 10^{-8} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$, un valor proper al determinat a Kashefi *et al.* [2014], $2.02 \cdot 10^{-8} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$. Com a referència, el coeficient de difusió del CO₂ en aigua val $1.6 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ (un ordre de magnitud inferior).

A Börner *et al.*, [2013], es comenta que el CO₂ supercrític presenta una capacitat de dissolució important en materials polimèrics (com el Viton). També es comenta que en estat subcrític aquests efectes són negligibles, però aquest experiment preliminar suggereix que són significatius.

6.3.2 Protocol de l'experiment II

Per a determinar la pressió a la qual s'havia de realitzar l'experiment, es va assumir que un aquífer poc profund es trobaria com a màxim a 150 m sota el nivell del mar [Misstear, 2006]. El gradient geobàric a l'escorça continental, assumint una densitat mitjana de 2.7 kg/m^3 , val $\Delta P/\Delta z = 270 \text{ bar/km}$ [Best, 2003]. La pressió aproximada a l'aquífer seria, per tant, de $270 \cdot 0.15 = 40.5 \text{ bar}$.

Els protocol de preparació i saturació de la mostra de l'experiment II va ser el mateix que a l'experiment I (veure apartat 6.2.1), amb la diferència que la pressió de confinament i la injecció de CO₂ s'havien d'augmentar simultània i gradualment fins als valors desitjats. El CO₂ entrava al circuit superior directament des de la bombona (veure Figura 4.8a) i se n'anava augmentant la pressió amb l'ajut del regulador acoblat (veure Figura 4.8c). Al mateix temps, la pressió de confinament amb N₂ també s'havia d'incrementar (veure Figura 4.8b), tot mantenint-la sempre un 25% superior a la de CO₂ per assegurar que el Viton en tot moment estava en contacte amb la roca i que el CO₂ circulava exclusivament a través de la porositat de la mostra.

Durant tot l'experiment, el regulador de pressió del CO_2 s'havia de mantenir obert per assegurar que la pressió de CO_2 era constant a l'interior del circuit. Si no es fes així, aquesta disminuïria a mesura que el CO_2 es dissolgués a la salmorra i al Viton (veure Figura 6.26). L'esquema del sistema experimental es pot consultar a la Figura 4.1.

6.3.3 Efecte de la dissolució del CO_2 en les dades de l'experiment II

L'experiment II va consistir, inicialment, a saturar la mostra de gres de Fontainebleau amb un 65% de salmorra poc salina i un 35% de CO_2 a alta pressió (40 bar). El sistema es va monitoritzar amb tomografia elèctrica durant vuit dies, efectuant mesures cada dia. La pressió del CO_2 es va mantenir constant durant tot l'experiment. La pressió de confinament amb N_2 era de 50 bar.

Es va realitzar un total de 36 mesures. La densitat de mostreig va ser exponencialment decreixent, per tal d'intentar captar les variacions ràpides en les dades a l'inici de l'experiment. Un cop es va observar que els canvis tenien lloc a una escala temporal més gran, cada cop es van realitzar menys mesures al dia, amb el benefici afegit que, d'aquesta manera, es pertorbava el sistema el mínim possible.

A la Figura 6.27 es representen les dades de la primera i l'última mesura de l'experiment II. Es pot comprovar que, a l'última mesura, la roca oferia menys resistència al pas del corrent que a l'inici de l'experiment. Es pot avançar que aquesta diferència era deguda a l'augment progressiu de la conductivitat de la salmorra durant l'experiment, associat a la dissolució i dissociació del CO_2 a la salmorra. A l'Apèndix C.2 es poden consultar els errors recíprocs de les vuit mesures utilitzades per a la inversió (veure apartat 6.3.5).

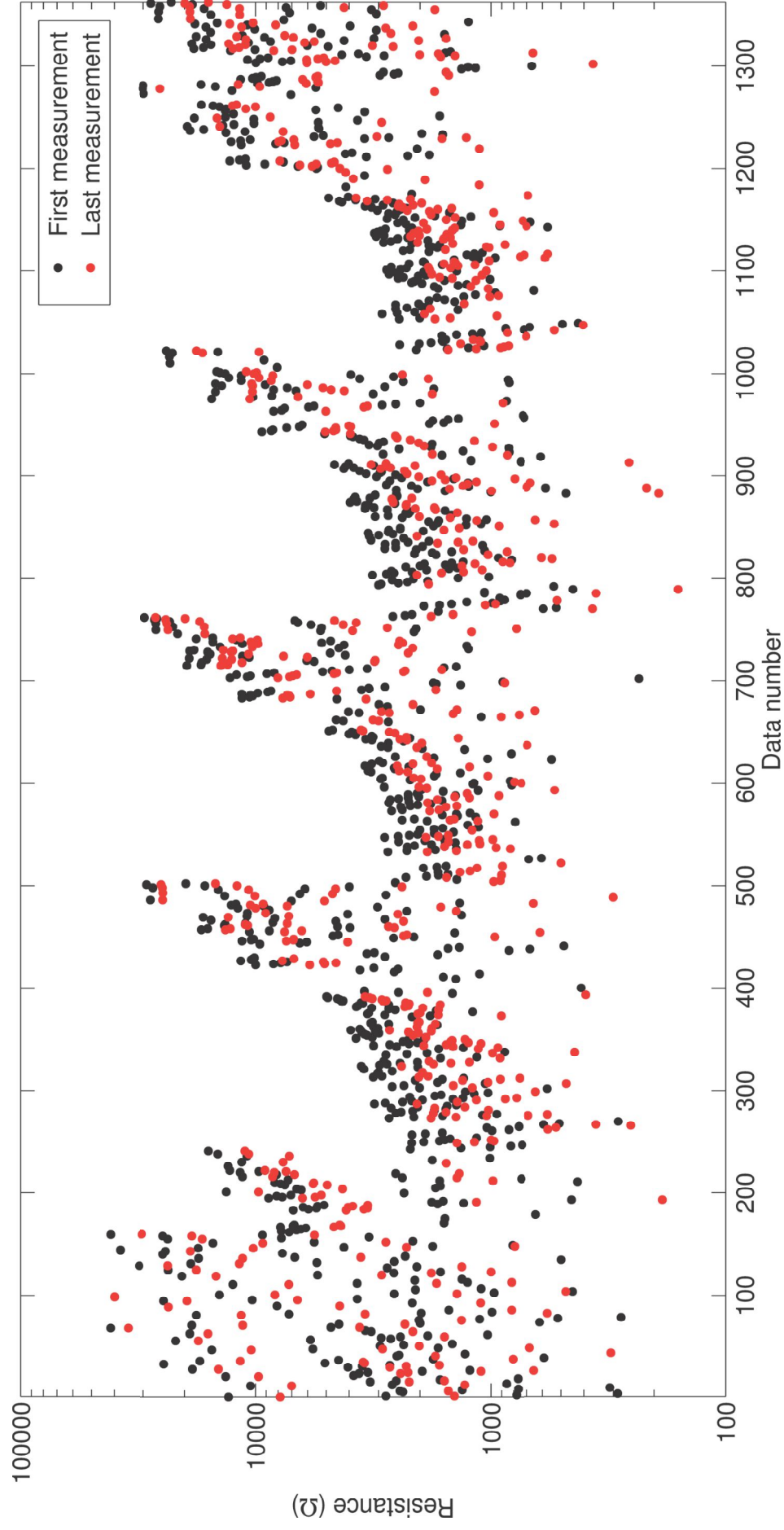


Fig. 6.27. Dades de la primera i l'última mesura de l'experiment II (35% CO₂). S'observa una clara disminució de la resistència entre l'inici i el final de l'experiment

A la Figura 6.27 s'havia observat que la resistència de l'última mesura havia disminuït, en general, respecte a la de la primera. En aquest apartat, s'analitzarà l'efecte de la dissolució i dissociació del CO_2 en les dades de tomografia elèctrica al llarg de l'experiment.

Es treballarà amb el quocient de resistències dada a dada, definit com

$$r_{i,m} \equiv d_{i,1} / d_{i,m}, \quad (6.10)$$

on $d_{i,1}$ és la i -èssima dada de resistència de la primera mesura de l'experiment i $d_{i,m}$ és la i -èssima dada de resistència de la mesura m .

A la Figura 6.28 es representa r per a les mesures efectuades durant el primer dia de l'experiment II. A la Figura 6.29 es mostra r per a la millor mesura de cada dia (el conjunt de dades de la qual presentava, de mitjana, el menor error recíproc d'entre tots els conjunts de dades d'aquell dia), representant l'evolució global de les dades durant tot l'experiment. Es pot observar una tendència clara del quocient de resistències a augmentar amb el temps, tant a petita escala temporal (Figura 6.28) com a més gran escala (Figura 6.29).

A les Figures 6.28 i 6.29 es poden distingir molt clarament els grups de dades corresponents als cicles de la seqüència de mesures. Es podrien agrupar en dos grans grups. El primer estaria compost per aquelles dades que presenten un valor del quocient força constant (cicle D de la Figura 3.5). El segon contindria els cicles que presenten valors del quocient molt variables (cicles A, B, C i E de la Figura 3.5).

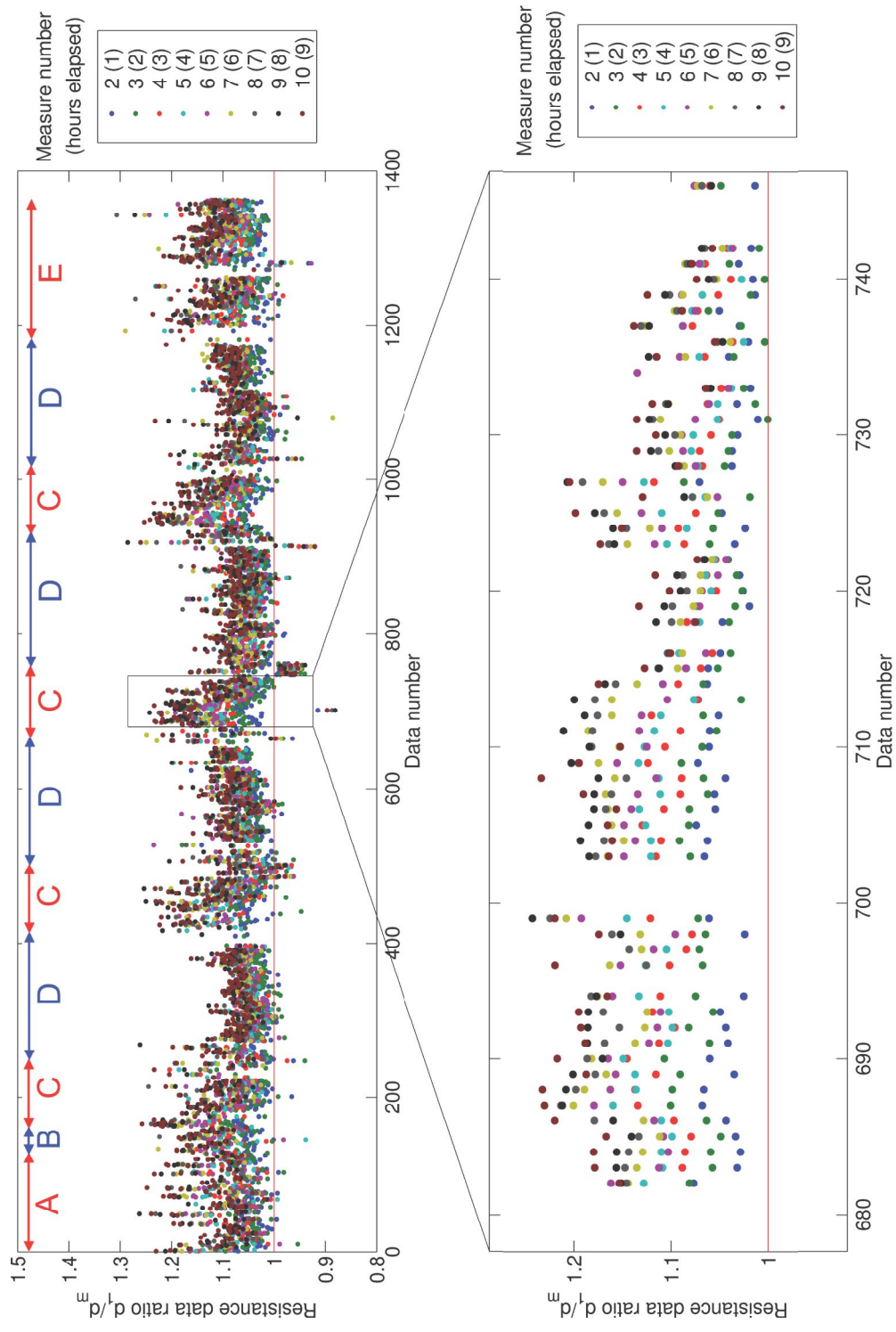


Fig. 6.28. Quocient de resistències per les nou mesures del primer dia de l'experiment II. Hi ha marcats els cicles de la seqüència de mesures. Es mostra una ampliació per poder apreciar la tendència del quocient a augmentar amb el temps. La línia vermella marca un valor del quocient igual a 1

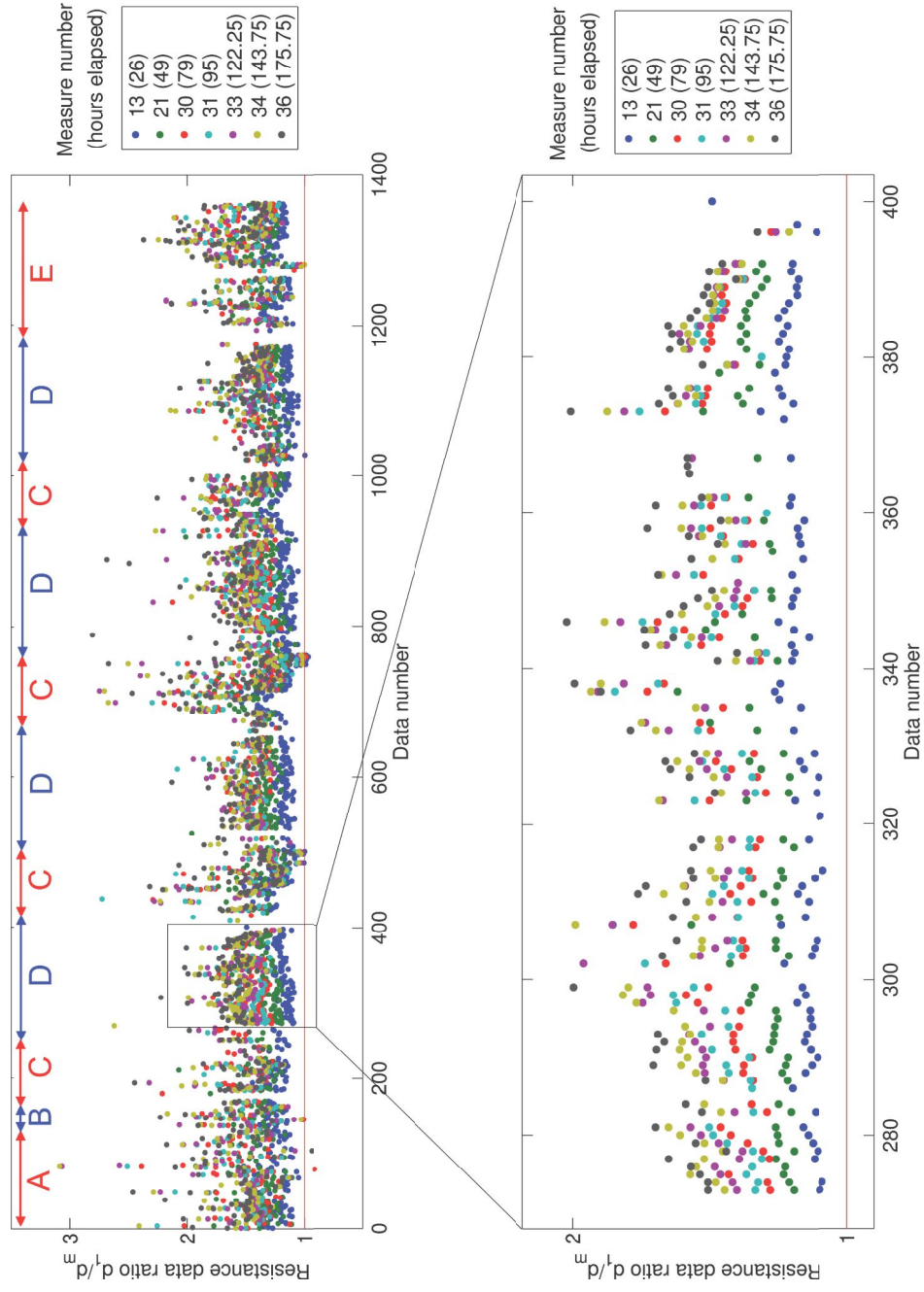


Fig. 6.29. Quocient de resistències per les set mesures representatives de l'experiment II (una cada dia). Hi ha marcats els cicles de la seqüència de mesures. Es mostra una ampliació per poder apreciar la tendència del quocient a augmentar amb el temps. La línia vermella marca un valor del quocient igual a 1

6.3.4 Quantificació del quocient de resistivitats de la salmorra

Per a intentar determinar la relació entre el quocient de resistències i el quocient de conductivitats de la salmorra, inicialment es va calcular el quocient de resistències teòric (Figura 6.30a) per a les respostes de dos models diferents (Figures 6.30b i 6.30c), anàlegs a la primera i l'última mesura de l'experiment II, respectivament. Pel model de la Figura 6.30b, $\rho_{z_1} = 2500 \Omega \cdot m$ i $\rho_{z_2} = 750 \Omega \cdot m$. Pel model de la Figura 6.30c, $\rho_{z_1} = 2500 \Omega \cdot m$ i $\rho_{z_2} = 500 \Omega \cdot m$. El quocient entre les resistivitats de la zona saturada val, per tant, $750 / 500 = 1.5$.

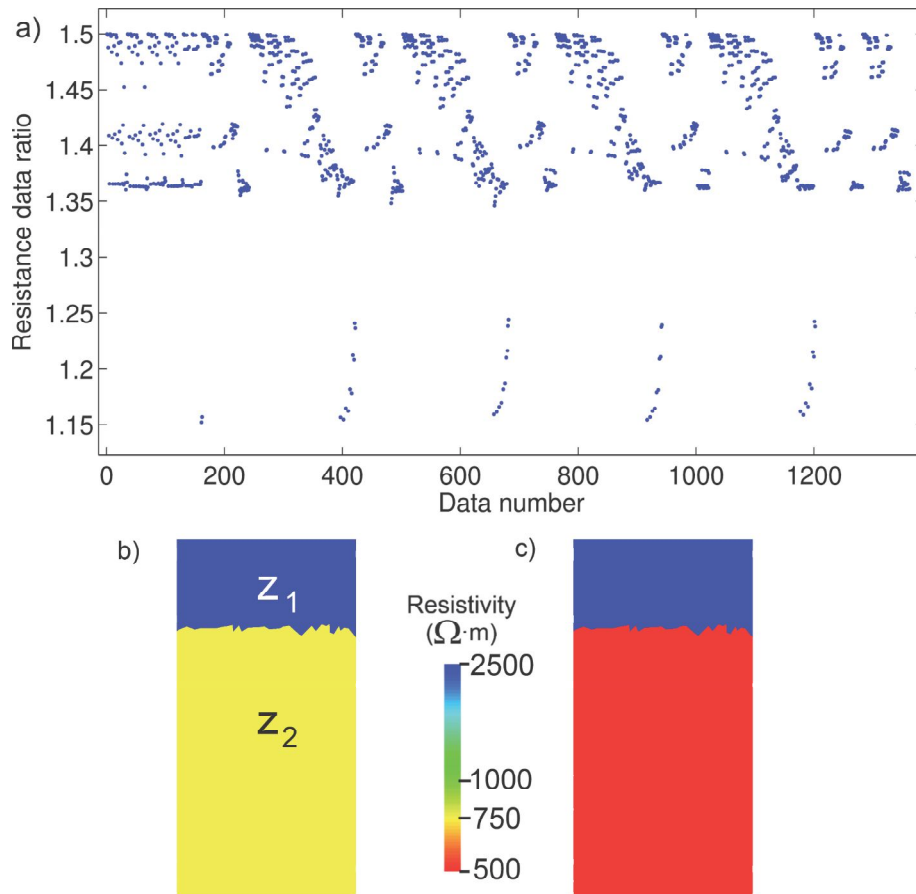


Fig. 6.30. a) Quocient de resistències calculat en base a les respostes dels models b) i c)

A la Figura 6.30a en primer lloc s'observa que, tal com s'esperaria, les dades no poden presentar quocients de resistències superiors al quocient de conductivitats de la salmorra. També es detecten valors del quocient anòmalament baixos

(inferiors a 1.3), pels quals s'ha comprovat que el dipol d'injecció està sempre situat al nivell 6.

Pel que fa a les dades que presenten un quocient de resistències molt proper al quocient de conductivitats dels elements de la zona saturada de salmorra ($r \geq 1.499$), s'ha comprovat que els dipols d'injecció de les seves configuracions no superen mai el nivell 3, i només en dos casos el dipol de mesura conté un electrode al nivell 4. Aquests resultats suggereixen que el quocient de resistències d'aquestes configuracions (66 en total) es podria utilitzar semi-quantitativament per a determinar el quocient de la resistivitat dels elements de la zona saturada.

A la Figura 6.31 es representa el quocient de resistències per aquelles configuracions, d'entre les 66 seleccionades prèviament, que presentaven un error del quocient inferior a un 2% en totes les mesures de l'experiment II (pel càlcul de l'error, veure Apèndix A.5). S'observa una certa dispersió que segurament reflexa el fet que la realitat no es correspon exactament amb els models utilitzats per a efectuar aquest anàlisi (veure Figura 6.30b i c).

A la Figura 6.31 també s'hi representa la mitjana geomètrica dels valors del quocient per a cada mesura, per tal d'obtenir una referència més estadísticament significativa. Per a l'última mesura, es llegeix $r = 1.458$. Segons l'anàlisi efectuat en aquest apartat, aquest valor correspondria al quocient de resistivitats efectives de la zona saturada de salmorra.

A la Figura 6.29, s'observen valors del quocient superiors a 1.458, que seria el màxim teòric segons la modelització de la Figura 6.30. S'ha comprovat que les dades que tenen valors grans del quocient solen ser dades amb valors de resistència petita, de manera que l'error experimental hi té més efecte que per a les dades amb altes resistències.

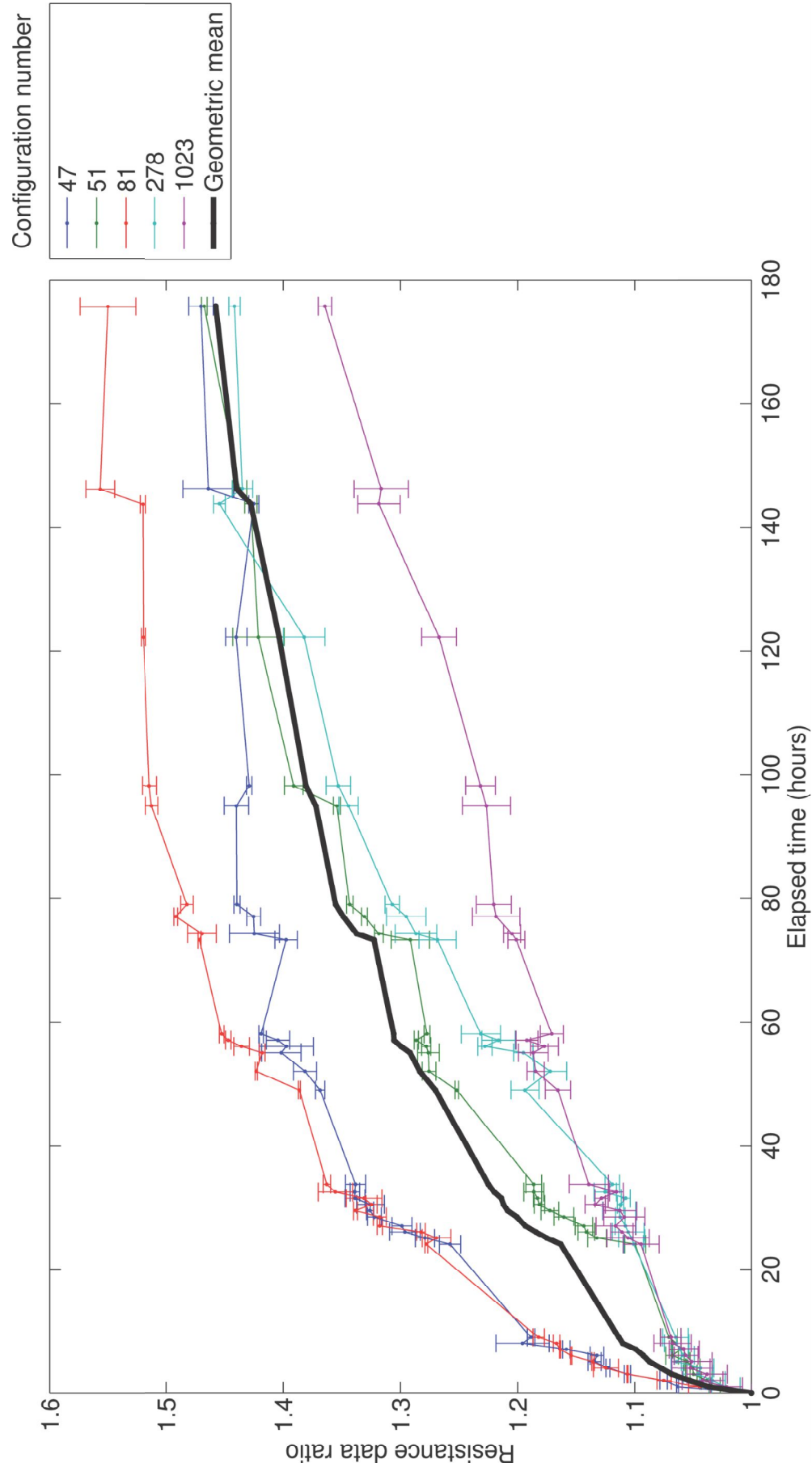


Fig. 6.31. Quocient de resistències de les configuracions que presentaven un error del quocient inferior al 2% en totes les mesures de l'experiment II. En negre es representa la mitjana geomètrica del quocient per a cada mesura.

El quocient de resistències de la Figura 6.31 no és exactament el quocient de resistivitats de la salmorra, perquè fins ara no s'ha considerat la conductivitat superficial. Assumint que el quocient de resistències és equivalent al quocient de resistivitats de la zona saturada de salmorra, mitjançant l'equació 6.8 s'obté

$$r \approx \frac{\rho_0}{\rho_t} = \frac{S_w^n \frac{1}{F} \sigma_{w_i} + S_w^{n-1} \frac{1}{F\phi} \lambda_s}{S_w^n \frac{1}{F} \sigma_{w_0} + S_w^{n-1} \frac{1}{F\phi} \lambda_s} = \frac{\phi \sigma_{w_i} + \lambda_s / S_w}{\phi \sigma_{w_0} + \lambda_s / S_w}, \quad (6.11)$$

on el sub-índex t es refereix a una mesura posterior a l'inici de l'experiment, i el sub-índex 0 indica la primera mesura de l'experiment. Si es defineix $q = \phi \sigma_{w_0} / \lambda_s$ i $k = \sigma_{w_i} / \sigma_{w_0}$, l'equació 6.11 es pot re-escriure com

$$r \approx \frac{kq + S_w^{-1}}{q + S_w^{-1}}, \quad (6.12)$$

A la Figura 6.32 es representa r en funció de k i de S_w segons l'equació 6.12.

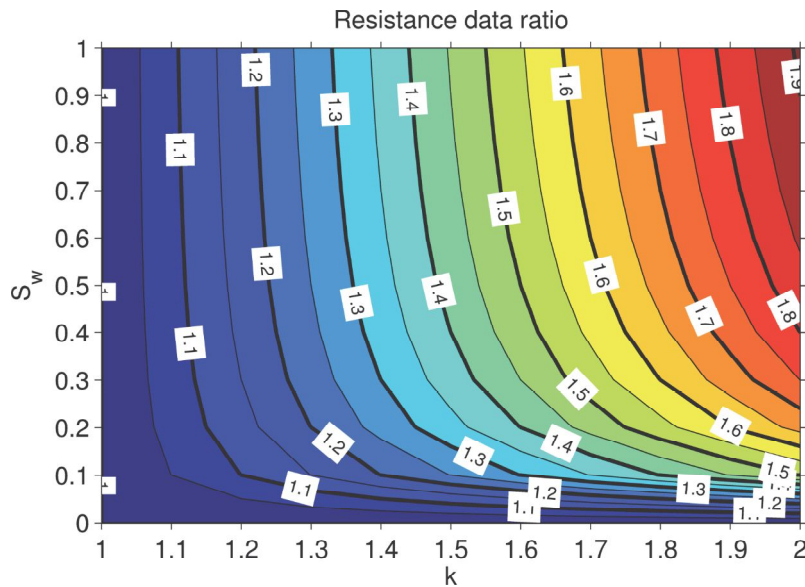


Fig. 6.32. Quocient de resistències local en funció de la saturació de salmorra i del quocient entre les resistivitats de la salmorra segons l'equació 6.12, assumint $q \approx 10$

Com a conclusió d'aquest anàlisi, si s'assumeix $S_w \approx 1$ per a la zona saturada de salmorra i $q \approx 10$ (veure apartat 6.3.1.2), amb l'equació 6.12 es pot calcular el valor del quocient de resistivitats de la salmorra al final de l'experiment II. A partir del valor del quocient de resistències de la Figura 6.31 s'obté, finalment, $k \approx (1.458 \cdot (10+1) - 1)/10 = 1.50$.

6.3.5 Models de resistivitat

La inversió de les dades analitzades a l'apartat 6.3.4 permet obtenir l'evolució temporal de la distribució de resistivitat de la roca al llarg de tot l'experiment II, tot caracteritzant l'efecte de la dissolució del CO₂ en la resistivitat de la roca. Amb propòsits comparatius, es van invertir les dades de les set mesures posteriors a la mesura 1 seguint tres estratègies d'inversió time-lapse diferents: la inversió independent, la inversió de la diferència i una versió modificada de la inversió del quocient (veure apartat 5.2) que s'introdueix a Doetsch *et al.*, [2012]. Aquesta versió multiplica el quocient de les dades per les respostes d'un model de referència d'un moment anterior del temps, en comptes de les respostes d'un model homogeni arbitrari,

$$d_i^* = (d_{t,i}/d_{0,i}) \cdot f_i(\mathbf{m}_0), \quad (6.13)$$

on $\mathbf{m}_0$ és el model de referència. En el nostre cas s'ha utilitzat el model obtingut de la inversió independent de les dades de la primera mesura de l'experiment II. L'error de les dades modificades de l'equació 6.13 s'ha re-calculat seguint la metodologia descrita a l'Apèndix A.6.

El model inicial de les inversions independents va ser un model homogeni de 100 $\Omega \cdot \text{m}$, amb una resistivitat de les làmines de 1000 $\Omega \cdot \text{m}$. Es va permetre variar la resistivitat de les làmines.

Pel que fa a la inversió de la diferència i la del quocient modificat, el model inicial va ser el que s'havia recuperat amb la inversió independent de la primera mesura. La resistivitat de les làmines es va fixar als valors del mateix model. D'aquesta manera s'evitava la possibilitat que la inversió ajustés les dades mitjançant la variació de la resistivitat de les làmines i s'obligava al programa d'inversió a modificar els valors de la roca.

A la Figura 6.33 es mostra un tall diametral vertical de tots els models obtinguts per a les vuit mesures representatives de l'experiment II, utilitzant les tres tècniques d'inversió introduïdes a l'apartat 5.2. La primera fila de models (Figures 6.33a – h) es correspon amb les inversions independents. La segona fila (Figura 6.33i – o) conté els models obtinguts mitjançant la inversió de la diferència i, finalment, la tercera fila (Figura 6.33p – v) mostra els models obtinguts amb la inversió modificada del quocient.

En general, s'observa que els tres tipus d'inversions recuperen models progressivament més conductors al centre i a la part inferior de la mostra. Al vuitè dia (175.75 h), la inversió independent resol un descens molt marcat de la resistivitat de la part inferior de la mostra.

Els models obtinguts amb la inversió de la diferència i amb la inversió modificada del quocient són molt semblants. En general, la inversió de la diferència recupera valors més resistents per a la zona saturada de CO₂. La inversió del quocient recupera una disminució, al llarg del temps, de la resistivitat de la part superior de la mostra.

Anàlogament als resultats obtinguts a l'experiment I, els tres tipus d'inversions han recuperat valors de resistivitat del centre dels models que probablement siguin inferiors als reals. A l'escala de color utilitzada, però, no es pot detectar cap franja vertical associada a l'acumulació de gasos.

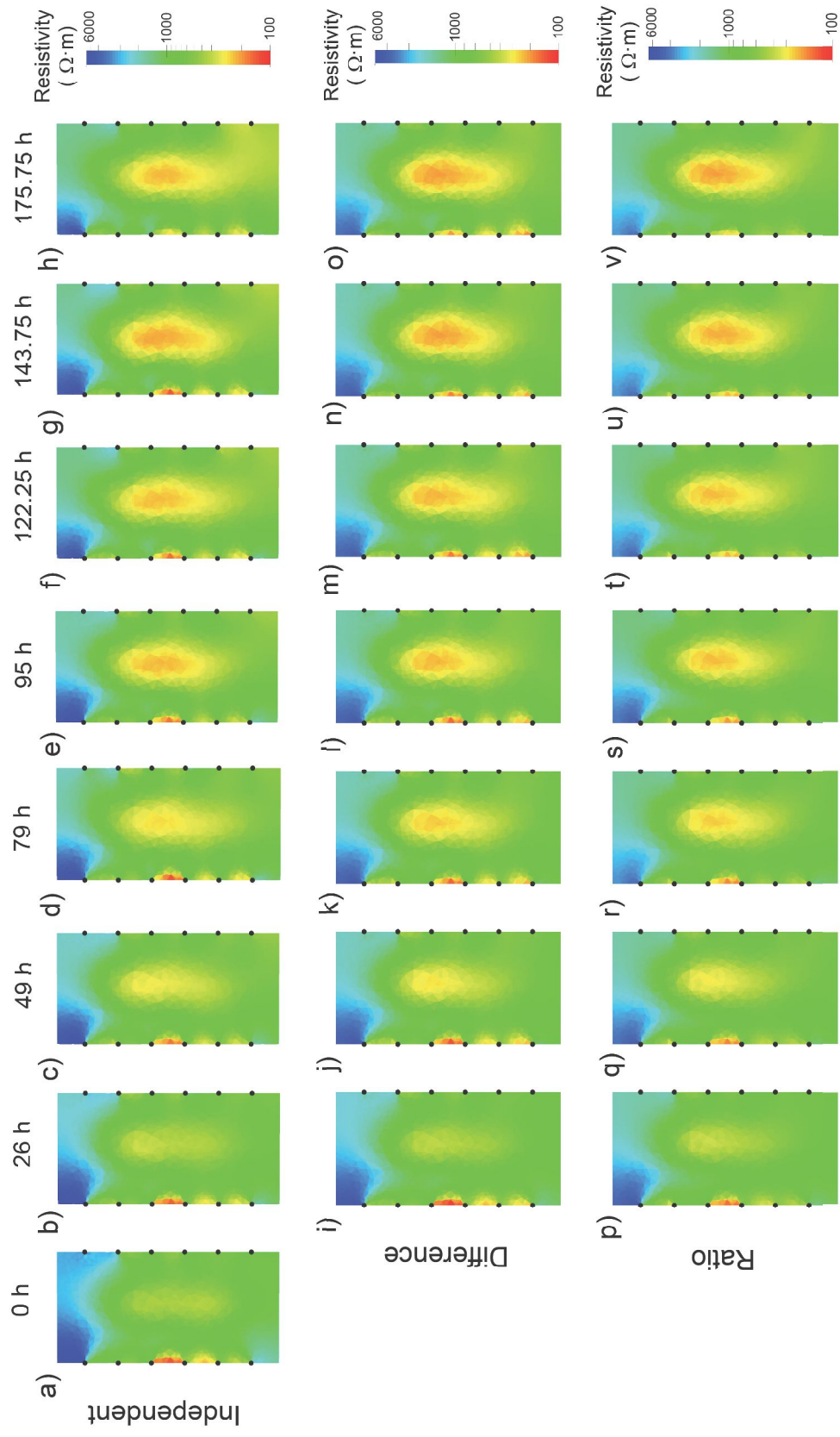


Fig. 6.33. Talls verticals diametral dels models de resistivitat per a les vuit mesures representatives de l'experiment II, pels tres mètodes d'inversió *time-lapse*: a) – h): inversions independents; i) – o): inversió de la diferència; p) – v): inversió modificada del quocient

Com que la variació entre els models de la Figura 6.33 és difícil d'apreciar, a la Figura 6.34 es presenta el quocient entre models (obtingut mitjançant el càlcul del quocient de resistivitats element a element, ρ_i/ρ_t), que ressalta les diferències de cada model respecte al model de la primera mesura. A més, aporta informació relacionada amb l'augment de la conductivitat de la salmorra al llarg del temps (veure apartat 6.3.4).

A la Figura 6.34 es pot observar que la inversió independent ha produït en general models poc realistes (Figures 6.34a – g), on no es detecta una evolució clara de la resistivitat i on s'assoleixen valors del quocient superiors a 3 a la part central i inferior. A l'apartat 6.3.4 s'havia determinat que la variació de la resistivitat de les zones saturades de salmorra era de l'ordre d'1.5 i, per tant, valors molt superiors no s'esperarien.

La inversió de la diferència ha produït resultats coherents (Figures 6.34h – n), en general coincidents amb les observacions experimentals. Un valor generalitzat d'1.5 s'assoleix al sisè dia (122.25 h) i, al setè dia (143.75 h), sembla que la part superior de la mostra es torni més resistent, un procés que no s'esperaria a priori.

Per altra banda, la inversió modificada del quocient (Figures 6.34o – u) presenta una evolució consistent del front de CO_2 dissolt a la salmorra, iniciant-se a la part superior, assolint valors de saturació (1.5) i propagant-se cap a la part inferior de la roca. Fins a l'últim dia no s'observen valors d'1.5 a tota la roca, en concordança amb els resultats del quocient de resistències (veure apartat 6.3.4).

El quocient de models posa de manifest que hi han franges verticals laterals que han experimentat una disminució del quocient (és a dir, un augment de la resistivitat) al llarg de l'experiment. Es poden identificar amb les zones d'acumulació dels gasos generats per electròlisi, deguda a la realització continuada de mesures d'ERT.

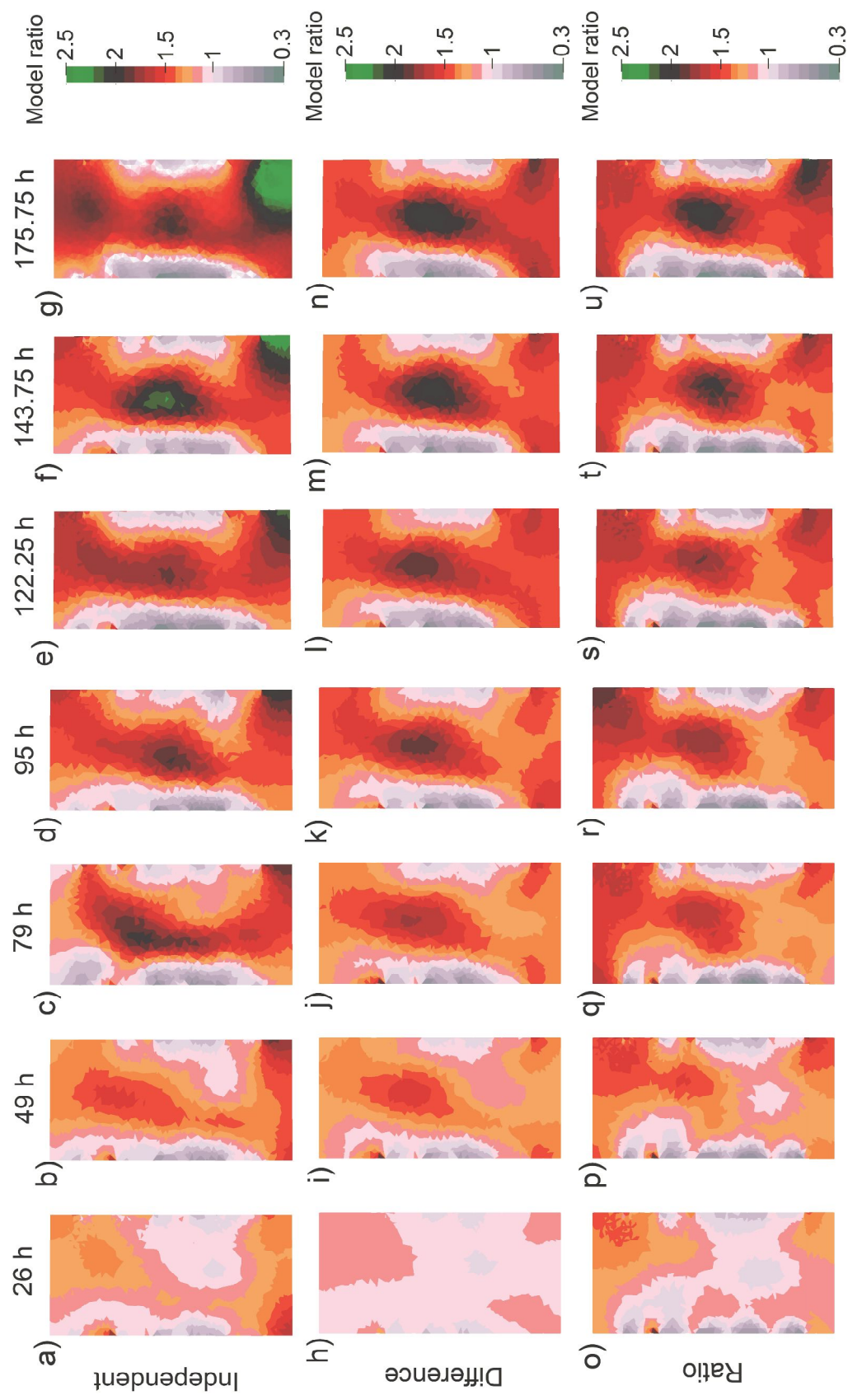


Fig. 6.34. Talls verticals diametral del quocient de models de l'experiment II, pels tres mètodes d'inversió *time-lapse*

A la Taula 6.7 es llista l' ε_{RMS} inicial i final, el valor inicial automàtic del paràmetre de regularització i el nombre d'iteracions de cada inversió de l'experiment II, pels tres tipus d'inversió utilitzats. L' ε_{RMS} inicial de la inversió independent augmenta amb el temps, indicant que cada cop la roca és més conductora, apropant-se al model inicial de 100 $\Omega\cdot\text{m}$. Per les altres inversions, en general l' ε_{RMS} inicial tendeix a augmentar amb el temps, reflexant el fet que cada cop la roca és més diferent respecte a l'inici de l'experiment.

Taula 6.7. Paràmetres d'interès de les inversions de l'experiment II

	Inversió independent				Inversió de la diferència				Inversió modificada del quocient			
Dia mesura	ε_{RMS} inicial	ε_{RMS} final	α_0	N	ε_{RMS} inicial	ε_{RMS} final	α_0	N	ε_{RMS} inicial	ε_{RMS} final	α_0	N
1	47.7	1.02	22.1	2	-	-	-	-	-	-	-	-
2	42.7	1.01	14.1	2	1.9	1.01	5.1	1	3.6	0.57	16.9	1
3	39.7	1.01	17.0	2	6.7	0.60	34.3	1	5.2	0.69	18.8	1
4	37.8	1.02	12.4	2	7.5	0.56	22.7	1	6.7	0.77	17.1	1
5	36.4	1.02	11.4	2	8.2	0.64	22.4	1	6.4	0.66	12.7	1
6	34.2	1.03	12.9	2	7.8	0.63	20.9	1	6.3	0.71	12.3	1
7	33.5	1.01	9.7	2	8.6	0.65	19.1	1	6.9	0.72	11.7	1
8	34.5	1.01	9.6	2	9.4	0.79	15.9	1	7.4	0.76	9.3	1

A les Figures 6.35 i 6.36 es mostra, com a referència, l'ajust de les dades de la primera i de l'última mesura pels models de la Figura 6.33a i 6.33v, respectivament. Es pot comprovar que l'ajust en general és satisfactori, tot i que a la Figura 6.36, hi ha un desajust sistemàtic (de l'ordre d'un 10%), suggerint que la roca seria més conductora que el model recuperat.

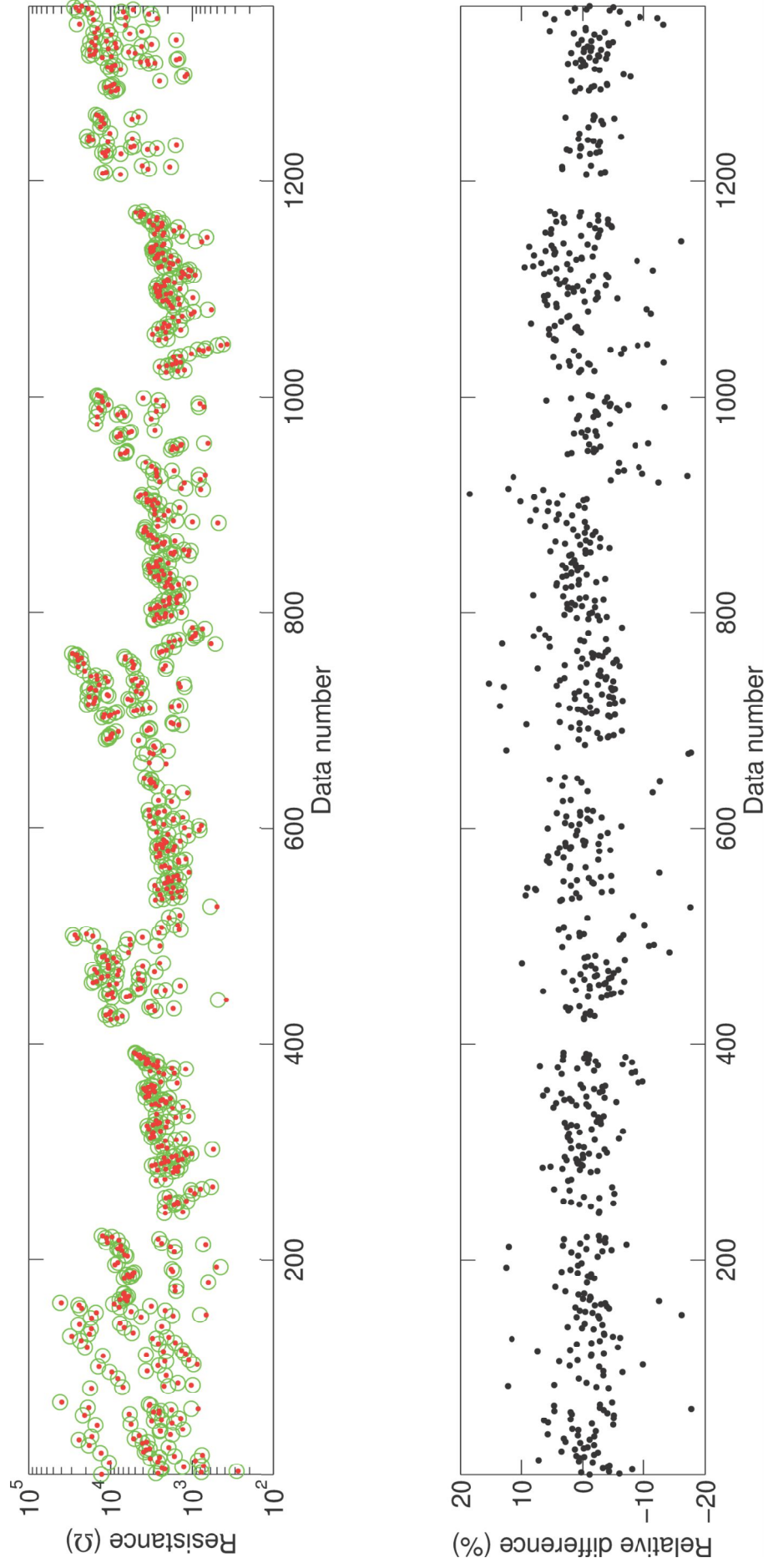


Fig. 6.35. Ajust de les respostes (punts vermells) dels models a les dades (cercles verds) i diferència relativa entre respostes i dades (punts negres) pels models obtinguts per a la primera mesura de l'experiment II

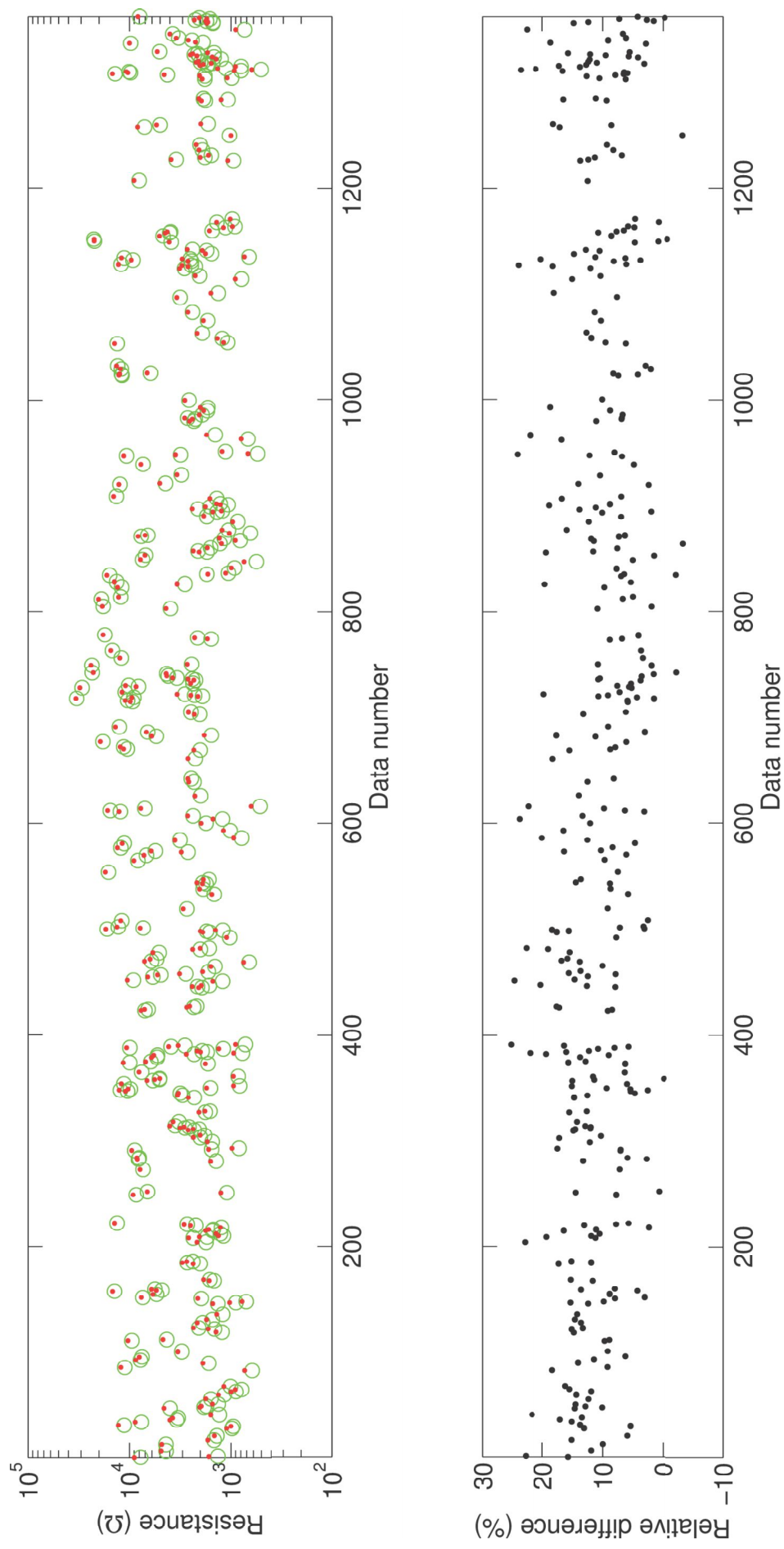


Fig. 6.36. Ajust de les respostes (punts vermells) dels models a les dades (cercles verds) i diferència relativa entre respostes i dades (punts negres) pels models obtinguts per a l'última mesura de l'experiment II

6.3.6 Discussió

De cara a monitoritzar una infiltració de CO₂ a un aquífer somer, la ERT pot aportar informació valuosa dels fenòmens físico-químics que tenen lloc al subsòl. A continuació es discuteixen dos aspectes fonamentals de l'experiment II:

- 1) La validesa del valor del quocient de resistivitats de la salmorra determinat a partir del quocient de resistències
- 2) Alguns factors que influeixen el resultat del monitoreig de CO₂ amb ERT

6.3.6.1 Quocient de resistivitats de la salmorra

Una de les hipòtesis en la qual s'ha centrat la interpretació de les dades de l'experiment II era que la resistivitat efectiva de les regions del model saturades de salmorra és proporcional a la resistivitat de la salmorra, de manera que la dissolució i dissociació del CO₂ provocarà canvis detectables en les mesures d'ERT.

A l'apartat 2.1 s'ha introduït l'equació 2.6, que permet calcular, per a baixes concentracions d'electròlits, la conductivitat d'una solució [Robinson and Stokes, 2002]. Amb l'ajuda de l'equació 2.6 i la consulta de valors tabulats (Taula 6.8), s'ha calculat la conductivitat teòrica de la salmorra a les dues condicions d'interès experimental, és a dir, a l'inici de l'experiment, quan encara no s'hi havia dissolt CO₂, i a una pressió constant de 40 bar.

Tal com s'indica a l'apartat 2.3, el sistema H₂O-NaCl-CO₂ conté, en equilibri, els ions següents: Na⁺, Cl⁻, CO₃²⁻ i HCO₃⁻, a més de les espècies producte de la dissociació de l'aigua, H⁺ i OH⁻. Al final de l'experiment II es va efectuar un anàlisi químic de la salmorra que va revelar l'existència de Ca²⁺ i K⁺ en solució en

concentracions no negligibles. Probablement provenien de la dissolució de calcita i/o de feldspats, ja que el gres de Fontainebleau conté petites quantitats d'aquests minerals.

A la Taula 6.8 es llisten les concentracions d'equilibri i els coeficients de difusió de les espècies llistades anteriorment. Les concentracions teòriques d'equilibri de les espècies derivades del CO_2 s'han obtingut amb l'aplicació online disponible a http://models.kl-edu.ac.cn/models/h2o_co2_nacl/ [Li and Duan, 2007]. Els coeficients de difusió de les espècies CO_3^{2-} i HCO_3^- es troben a Zeebe [2011]. Els de la resta d'ions es poden obtenir a Yuan-Hui and Gregory [1974].

Taula 6.8. Dades necessàries pel càlcul de la conductivitat de la salmorra

Espècie iònica	c_i (mol/kg) inici experiment	c_i (mol/kg) 40 bar	$D_i \cdot 10^{-10}$ ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$)
Na^+	$5.1 \cdot 10^{-3}$	$5.1 \cdot 10^{-3}$	11.3
Cl^-	$5.1 \cdot 10^{-3}$	$5.1 \cdot 10^{-3}$	17.1
CO_3^{2-}	-	$5.3 \cdot 10^{-11}$	7.8
HCO_3^-	-	$7.2 \cdot 10^{-4}$	8.5
H^+	$10^{-5.55^*}$	$7.2 \cdot 10^{-4}$	81.7
OH^-	$10^{-8.45}$	$9.6 \cdot 10^{-12}$	44.9
Ca^{2+}	-	$1.9 \cdot 10^{-4}$	6.73
K^+	-	$2.1 \cdot 10^{-4}$	19.6

*El valor del pH de l'aigua Milli-Q no és 7, sinó al voltant de 5.55, ja que el CO_2 de l'atmosfera s'hi dissol i l'acidifica

En primer lloc, s'ha comprovat que hi ha concordança entre el resultat del càlcul teòric de la resistivitat de la salmorra B a l'inici de l'experiment (sense CO_2 dissolt), $\rho = 17.94 \, \Omega \cdot \text{m}$, i la mesura de resistivitat efectuada amb el conductímetre, $\rho = 17.9 \, \Omega \cdot \text{m}$.

La resistivitat teòrica de la salmorra a 40 bar, assumint que aquesta estava saturada de CO_2 , presenta el valor $\rho = 11.91 \, \Omega \cdot \text{m}$. El quocient entre les dues resistivitats val $\rho / \rho^{40\text{bar}} = 1.51$, coincidint amb els resultats de l'anàlisi efectuat a l'apartat 6.3.4. Si aquest resultat es pogués validar experimentalment, confirmaria

que la salmorra va esdevenir saturada en CO₂, perquè pel seu càlcul s’han utilitzat concentracions d’equilibri. El fet que s’hagi arribat a aquesta situació en només vuit dies (la teoria de la difusió prediu un temps de difusió de l’ordre de 10³ dies), s’explicaria pel fenomen del *fingering*, és a dir, la convecció per densitat entre la salmorra saturada en CO₂ (a la interfase salmorra–CO₂) i la salmorra sense CO₂.

6.3.6.2 Aspectes rellevants del monitoreig de CO₂ amb ERT

L’objectiu final del monitoreig amb ERT és la quantificació del volum de fluids presents al subsòl, o la correlació de la resistivitat amb algun paràmetre físico-químic, com ara la salinitat. En qualsevol dels casos, per aquífers somers amb salmorres poc salines, cal tenir en compte, com a mínim, dos factors principals. El primer és la variació temporal de la conductivitat a mesura que s’hi dissol el CO₂. El segon factor rellevant és l’efecte de la conductivitat superficial en la resistivitat efectiva de la roca. Si s’inclouen explícitament aquests dos factors a l’equació del càlcul de la saturació de salmorra en base a l’índex de resistivitat, s’obté

$$S_w = (RI)^{-1/n} \cdot \left(\frac{\phi \sigma_{w_0} + \lambda_s}{\phi k \sigma_{w_0} + \lambda_s S_w^{-1}} \right)^{1/n}, \quad (6.14)$$

El càlcul de la saturació de salmorra s’haurà d’efectuar numèricament. Tot i així, es poden estimar els efectes d’ignorar algun dels dos paràmetres. Si no es considera l’augment de la conductivitat de la salmorra degut a la dissolució i s’assumeix $k = 1$, el càlcul sub-estimarà la saturació de CO₂, perquè la saturació de salmorra obtinguda serà més gran que si s’incloués k (perquè $k \geq 1$).

Per altra banda, el fet d’ignorar la conductivitat superficial també provocarà que es sub-estimi la saturació de CO₂. Com a regla general, a partir de resistivitats de salmorra superiors a 1 Ω·m, s’hauria de considerar la determinació de la conductivitat superficial [Weller *et al.*, 2013].

Finalment, també s'haurà de tenir en compte que la conductivitat de la salmorra és funció de la temperatura i la pressió i, per tant, s'haurà de considerar la seva dependència.

6.3.7 Conclusions de l'experiment II

En aquest experiment s'ha monitoritzat satisfactòriament, durant vuit dies, una mostra de gres de Fontainebleau saturada amb un 35% de CO_2 i un 65% de salmorra del tipus B, a una pressió constant de 40 bar. Ha estat decisiu per a consolidar la viabilitat del sistema experimental, ja que l'alta pressió posa a prova la resistència mecànica i química dels materials.

Un resultat experimental important és que les dades han demostrat ser sensibles a la variació de la conductivitat de la salmorra. A més, s'ha pogut determinar l'increment d'aquesta a partir de l'anàlisi del quocient de resistències, el qual ha proporcionat un valor d'1.5. De manera independent i mitjançant càlculs teòrics, s'ha recuperat el valor d'1.51, aportant així un argument de pes a favor del mètode utilitzat.

De les tres tècniques d'inversió aplicades (independent, de la diferència i del quocient), la inversió modificada del quocient és la que ha donat resultats més coherents amb el que *a priori* s'esperaria.

També s'ha determinat que, ignorar la disminució de la resistivitat de la salmorra i/o l'efecte de la conductivitat superficial, es tradueix en una sub-estimació sistemàtica del volum de CO_2 que satura la mostra, la qual cosa pot tenir conseqüències nefastes de cara a assegurar la viabilitat d'un projecte d'emmagatzematge de CO_2 .

7 Conclusions i perspectives futures

En aquesta tesi s'ha investigat el sistema roca-salmorra- CO_2 amb tomografia elèctrica (ERT) a escala de laboratori, en una sèrie d'experiments que emulen situacions reals de l'emmagatzematge geològic de CO_2 . Els objectius plantejats inicialment (veure apartat 1.3) s'han assolit satisfactòriament. Seguint l'estructura principal del treball, les conclusions finals s'organitzen en dos apartats. En primer lloc, es presenten les conclusions metodològiques relacionades amb el sistema experimental i la tècnica de la ERT. En segon lloc, s'exposen les conclusions sobre els resultats dels experiments principals. Finalment, es recullen algunes perspectives de treball futur.

Tomografia elèctrica a escala de laboratori

L'aplicació de la ERT a escala centimètrica és inusual i no està estandaritzada. Per tal de validar la seva aplicació, s'ha realitzat una sèrie d'experiments preliminars, utilitzant mostres artificials, constituïdes únicament d'argila, i mostres reals de gres. Aquestes proves han permès confirmar, en primer lloc, que es poden obtenir dades significatives i de bona qualitat en mostres de mida centimètrica, amb la configuració de paràmetres experimentals emprada (disposició dels electrodos, seqüència de mesures, diferència de potencial entre els dipols d'injecció, etc). En segon lloc, també s'ha comprovat que el programa

d'inversió (R3t), aplicat sobre les dades adquirides, és robust i ha proporcionat models precisos de la realitat investigada. Amb l'ajuda d'estudis sintètics s'han pogut explorar els efectes de diferents paràmetres de la inversió, com ara el model inicial o el paràmetre de regularització. Els experiments preliminars permeten concloure que la ERT és una tècnica adequada per a caracteritzar l'estructura elèctrica de mostres rocoses a escala centimètrica.

Per tal d'obtenir models més representatius de la realitat, és convenient poder realitzar mesures d'ERT a altes pressions i temperatures. Amb aquest objectiu s'ha dissenyat, muntat i provat intensivament un sistema experimental que, a part de poder contenir la mostra i els fluïds a alta pressió, també permet monitoritzar els experiments al llarg del temps sense haver d'interrompre'ls per a mesurar.

Mitjançant un procediment d'assaig i error, s'ha determinat una configuració d'elements i materials vàlida per a poder realitzar els experiments principals plantejats. L'únic requeriment és que la mostra ha de tenir una morfologia cil·lindrica (40 mm de diàmetre i 80 mm de llargada). El cil·indre de roca s'encaixa dins un tub de Viton que conté els electrodes (constituïts de titani), i el conjunt roca-Viton es col·loca dins una cel·la metàl·lica de tipus Hassler. Els èmbols superior i inferior, els quals subjecten la roca, estan perforats i permeten la circulació de fluïds pressuritzats a través de la mostra. A la cel·la s'hi injecta nitrogen en estat gasós per tal d'aplicar una pressió de confinament sobre el conjunt roca-Viton. Els cables dels electrodes estan connectats a una unitat d'adquisició de dades d'ERT (en aquest cas s'ha utilitzat una unitat Iris Syscal Pro Switch).

En general s'ha pogut minimitzar o controlar la majoria de fonts d'error. Pel que fa al procés de mesura, l'error associat a la posició dels electrodes s'ha minimitzat gràcies a l'ús del tub de Viton, ja que els electrodes s'hi troben fixats i han estat

posicionats amb un torn mecànic d'alta precisió. A més, el fet d'utilitzar electrodes de titani ha permès obtenir dades de bona qualitat, ja que té una alta resistència a la corrosió. Els errors associats al tractament de dades i la inversió s'han pogut controlar o estimar. Per exemple, els errors de les dades s'han estimat gràcies a l'assumpció d'un model global d'error construït a partir dels errors recíprocs relatius. Mitjançant proves sintètiques, s'ha pogut determinar que la inicialització del paràmetre de regularització és preferible que sigui automàtica. També s'ha comprovat que els errors de modelització deguts a la discretització de la malla són, en general, inferiors a un 2%. Finalment, s'ha modelitzat la cel·la metàl·lica i el seu efecte en les dades d'ERT, així com els contactes entre la roca i els èmbols superior i inferior de la cel·la. Tot això ha permès disposar d'un sistema experimental fiable i un procediment numèric precís.

Investigació del sistema roca-salmorra-CO₂

Els dos experiments principals realitzats són una de les contribucions més importants d'aquesta tesi. Mitjançant l'aplicació de la ERT, per primer cop es presenten experiments de saturació i monitoreig a escala centimètrica que involucren CO₂. La roca utilitzada en aquests experiments és una mostra de gres de Fontainebleau, essencialment composta de quars (SiO₂), de granulometria homogènia i molt permeable.

A l'experiment I s'ha emulat un petita fracció d'un aquífer salí profund en quatre estadis de saturació de CO₂ (0%, 35%, 55% i 71%, respectivament). La comparació de les dades adquirides ha demostrat que aquestes són clarament sensibles a la substitució de salmorra per CO₂. A més, s'ha pogut quantificar la saturació de CO₂ a la roca a partir dels models de resistivitat i del càlcul de l'exponent de saturació, havent assumit amb seguretat que el comportament

elèctric de la roca es pot descriure amb les lleis d'Archie perquè es tracta d'un gres porós i permeable, sense argil·les i saturat amb salmorra molt salina. També s'ha detectat l'acumulació de gas al voltant dels electrodos a causa de les reaccions electrolítiques que es produeixen durant el procés de mesura. Aquests resultats mostren que la ERT és capaç de detectar i quantificar, en tres dimensions, diferents graus de saturació de CO_2 en mostres centimètriques. Finalment, s'ha comprovat que possibles variacions petites de pressió i/o temperatura no tenen un efecte significatiu en la resistivitat de la salmorra i, per tant, de la roca.

A l'experiment II s'ha emulat la invasió de CO_2 en un aquífer somer. S'ha monitoritzat la roca durant vuit dies, mentre el CO_2 , a alta pressió (40 bar), es dissolia i dissociava dins la salmorra que saturava parcialment la roca. És el primer cop que es monitoritza un experiment com aquest amb tomografia elèctrica. El quocient de resistències ha proporcionat informació valuosa sobre l'augment de la conductivitat de la salmorra, el qual és degut a l'aportació d'ions per dissociació del CO_2 . L'increment mitjà de la conductivitat observat (50%) s'ha pogut reproduir independentment a partir de càlculs teòrics. Les dades adquirides s'han invertit utilitzant tres tècniques diferents: la inversió independent, la inversió de la diferència i la inversió modificada del quocient. Per a les dades d'aquest experiment, la inversió modificada del quocient ha resultat preferible, ja que els models resultants mostren una evolució coherent del front de difusió i presenten valors del quocient coincidents amb els valors teòrics. Cal tenir en compte, però, que en cas d'una invasió de CO_2 en aigua poc salina, els valors de saturació calculats amb l'índex de resistivitat tradicional no seran correctes, ja que se n'efectuaria una subestimació sistemàtica pel fet d'ignorar la disminució de la resistivitat de la salmorra amb el temps i la contribució de la conductivitat superficial.

Perspectives de treball

En base a l'experiència adquirida, es poden plantejar tres línies d'investigació. En primer lloc, es podrien millorar alguns aspectes del sistema experimental. Per exemple, els èmbols de la cel·la metàl·lica es podrien substituir per peces idèntiques fabricades amb PEEK, un plàstic amb una resistència química, mecànica i tèrmica molt alta. D'aquesta manera, probablement es milloraria la qualitat de les dades (ja que la circulació del corrent quedaria confinada majoritàriament dins la mostra) i, a més, s'evitaria haver de modelitzar la cel·la. Els electrodes es podrien fabricar en or o fins i tot platí, que presenten una resistència a la corrosió superior, per tal de minimitzar aquesta font d'error. També seria desitjable disposar d'algun mecanisme per extreure mostres a alta pressió (i temperatura), per tal de poder analitzar la química i la conductivitat de la salmorra a les condicions experimentals. A part d'aportar dades que validin els models existents, serviria com a control experimental a temps real. La durada de l'experiment es podria condicionar a l'evolució de la conductivitat de la salmorra, per exemple, o a la seva concentració de CO_2 dissolt. Pel que fa a la metodologia, convindria monitoritzar la variable temperatura, per tal de poder determinar experimentalment els seus efectes i corregir les dades.

Un segon camp a explorar és el de la inversió de les dades. Una de les limitacions del programa d'inversió utilitzat és que el valor de la resistivitat al centre dels models es troba afectat per la presència del gas als laterals, tal com han confirmat els estudis sintètics. Seria convenient, per tant, invertir les dades amb altres programes (per exemple, el software BERT [Günther *et al.*, 2010]) que permetin limitar els valors de la resistivitat durant la inversió. D'aquesta manera es podrien imposar restriccions raonables i comprovar si es modifica alguna altra zona del model, o si només es tracta d'una qüestió de baixa resolució a la zona central.

Finalment, es podrien plantejar nous experiments d'interès. Alguns exemples són el monitoreig de la dissolució de carbonats a causa de la circulació de CO_2 al llarg de fractures (caldrien voltatges significativament més alts perquè els carbonats en general no són porosos i no hi hauria un fluïd conductor que inter-connectés els electrodes), la realització d'estudis preliminars de monitoreig en diferents roques reservori de CO_2 o la quantificació de la saturació de CO_2 (o només de salmorra) en mostres amb presència d'argil·les. Hi ha una sèrie de reptes metodològics, a més, que obririen noves possibilitats, com ara l'addició d'una funda tèrmica, per tal de poder treballar a la temperatura desitjada, o l'acoblament de sensors de pressió i bombes d'injecció per a poder realitzar experiments dinàmics amb flux de fluïds. Un cop es disposés d'aquestes ampliacions, el següent pas consistiria en la realització d'experiments a condicions supercrítiques.

Referències

- Andrä, H. et al. (2013), Digital rock physics benchmarks—part II: Computing effective properties, *Comput. Geosci.*, 50, 33–43.
- Archie, G.E. (1942), The Electrical Resistivity Log as an Aid in Determining Some Reservoir Characteristics, *Pet. Trans. AIME*, 146, 54–62.
- Arora, T., and S. Ahmed (2011), Characterization of recharge through complex vadose zone of a granitic aquifer by time-lapse electrical resistivity tomography, *J. Appl. Geophys.*, 73(1), 35–44.
- Auken, E., J. Doetsch, G. Fiandaca, A. V. Christiansen, A. Gazoty, A. G. Cahill, and R. Jakobsen (2014), Imaging subsurface migration of dissolved CO₂ in a shallow aquifer using 3-D time-lapse electrical resistivity tomography, *J. Appl. Geophys.*, 101, 31–41, doi:10.1016/j.jappgeo.2013.11.011.
- Bagotskiĭ, V. S. (1993), *Fundamentals of electrochemistry*, Plenum, New York.
- Bellmunt, F., A. Marcuello, J. Ledo, P. Queralt, E. Falgàs, B. Benjumea, V. Velasco, and E. Vázquez-Suñé (2012), Time-lapse cross-hole electrical resistivity tomography monitoring effects of an urban tunnel, *J. Appl. Geophys.*, 87, 60–70, doi:10.1016/j.jappgeo.2012.09.003.
- Benson, R. C., Environmental Monitoring Systems Laboratory (Las Vegas, Nev.), and United States (1983), *Geophysical techniques for sensing buried wastes and waste migration*, Environmental Monitoring Systems Laboratory, Office of Research and Development, U.S. Environmental Protection Agency, Las Vegas.
- Bergmann, P., U. Lengler, C. Schmidt-Hattenberger, R. Giese, and B. Norden (2010), Modelling the geoelectric and seismic reservoir response caused by carbon dioxide injection based on multiphase flow simulation: Results from the CO₂SINK project, *Chem. Erde - Geochem.*, 70, 173–183, doi:10.1016/j.chemer.2010.05.007.
- Best, M. G. (2003), *Igneous and metamorphic petrology*, 2nd ed., Blackwell Publishers, Malden, MA.
- Beven, K. J. (1993), Estimating transport parameters at the grid scale: on the value of a single measurement, *J. Hydrol.*, 143(1-2), 109–123, doi:10.1016/0022-1694(93)90091-M.
- Bigelow, E. (1992), *Introduction to Wireline Log Analysis*, Western Atlas International, Inc., Houston, TX.
- Bing, Z., and S. A. Greenhalgh (2000), Cross-hole resistivity tomography using different electrode configurations, *Geophys. Prospect.*, 48(5), 887–912.

- Binley, A. (2014), R3t version 1.8. Software and user guide, in <http://www.es.lancs.ac.uk/people/amb/Freeware/R3t/R3t.htm>.
- Binley, A., G. Cassiani, R. Middleton, and P. Winship (2002), Vadose zone flow model parameterisation using cross-borehole radar and resistivity imaging, *J. Hydrol.*, 267(3), 147–159.
- Birkholzer, J., Q. Zhou, and C. Tsang (2009), Large-scale impact of CO₂ storage in deep saline aquifers: A sensitivity study on pressure response in stratified systems, *Int. J. Greenh. Gas Control*, 3(2), 181–194, doi:10.1016/j.ijggc.2008.08.002.
- Börner, J. H., V. Herdegen, J.-U. Repke, and K. Spitzer (2013), The impact of CO₂ on the electrical properties of water bearing porous media - laboratory experiments with respect to carbon capture and storage, *Geophys. Prospect.*, 61, 446–460, doi:10.1111/j.1365-2478.2012.01129.x.
- Breen, S. J., C. R. Carrigan, D. J. LaBrecque, and R. L. Detwiler (2012), Bench-scale experiments to evaluate electrical resistivity tomography as a monitoring tool for geologic CO₂ sequestration, *Int. J. Greenh. Gas Control*, 9, 484–494, doi:10.1016/j.ijggc.2012.04.009.
- Bussian, A. E. (1983), Electrical conductance in a porous medium, *Geophysics*, 48(9), 1258–1268, doi:10.1190/1.1441549.
- Carrigan, C. R. et al. (2013), Electrical resistance tomographic monitoring of CO₂ movement in deep geologic reservoirs, *Int. J. Greenh. Gas Control*, 18, 401–408, doi:10.1016/j.ijggc.2013.04.016.
- Cassiani, G., V. Bruno, A. Villa, N. Fusi, and A. M. Binley (2006), A saline trace test monitored via time-lapse surface electrical resistivity tomography, *J. Appl. Geophys.*, 59(3), 244–259, doi:10.1016/j.jappgeo.2005.10.007.
- Chambers, J. E., P. B. Wilkinson, A. L. Weller, P. I. Meldrum, R. D. Ogilvy, and S. Caunt (2007), Mineshaft imaging using surface and crosshole 3D electrical resistivity tomography: A case history from the East Pennine Coalfield, UK, *J. Appl. Geophys.*, 62(4), 324–337, doi:10.1016/j.jappgeo.2007.03.004.
- Chave, A. D., S. C. Constable, and R. N. Edwards (1991), Electrical exploration methods for the seafloor, in *Electromagnetic Methods in Applied Geophysics*, vol. 2, edited by M. N. Nabighian, pp. 931–966, Society of Exploration Geophysicists, Tulsa.
- Chávez, R. E., G. Cifuentes-Nava, J. Esteban Hernández-Quintero, D. Vargas, and A. Tejero (2014), Special 3D electric resistivity tomography (ERT) array applied to detect buried fractures on urban areas: San Antonio Tecómitl, Milpa Alta, México, *Geofísica Int.*, 53(4), 425–434, doi:10.1016/S0016-7169(14)70076-5.
- Civan, F., and M. L. Rasmussen (2006), Determination of Gas Diffusion and Interface-Mass Transfer Coefficients for Quiescent Reservoir Liquids, *SPE J.*, 11(01), 71–79, doi:10.2118/84072-PA.

- Comte, J.-C., and O. Banton (2007), Cross-validation of geo-electrical and hydrogeological models to evaluate seawater intrusion in coastal aquifers, *Geophys. Res. Lett.*, 34(10), doi:10.1029/2007GL029981.
- Cooper, M. R., J. Evans, S. S. Flint, A. Hogg, and R. Hunter (2009), Quantification of Detrital, Authigenic and Porosity Components of the Fontainebleau Sandstone: A Comparison of Conventional Optical and Combined Scanning Electron Microscope - Based Methods of Modal Analyses, in *Quartz Cementation in Sandstones: Special Publication 29 of the IAS*, p. 352, John Wiley & Sons, Chichester.
- Coscia, I., S. A. Greenhalgh, N. Linde, J. Doetsch, L. Marescot, T. Günther, T. Vogt, and A. G. Green (2011), 3D crosshole ERT for aquifer characterization and monitoring of infiltrating river water, *Geophysics*, 76(2), G49–G59, doi:10.1190/1.3553003.
- Coscia, I., N. Linde, S. Greenhalgh, T. Vogt, and A. Green (2012), Estimating traveltimes and groundwater flow patterns using 3D time-lapse crosshole ERT imaging of electrical resistivity fluctuations induced by infiltrating river water, *Geophysics*, 77(4), E239–E250, doi:10.1190/geo2011-0328.1.
- Dafflon, B., Y. Wu, S. S. Hubbard, J. T. Birkholzer, T. M. Daley, J. D. Pugh, J. E. Peterson, and R. C. Trautz (2013), Monitoring CO₂ Intrusion and Associated Geochemical Transformations in a Shallow Groundwater System Using Complex Electrical Methods, *Environ. Sci. Technol.*, 47(1), 314–321, doi:10.1021/es301260e.
- Dahlin, T., and B. Zhou (2004), A numerical comparison of 2D resistivity imaging with 10 electrode arrays, *Geophys. Prospect.*, 52(5), 379–398.
- Daily, W., and E. Owen (1991), Cross - borehole resistivity tomography, *Geophysics*, 56(8), 1228–1235, doi:10.1190/1.1443142.
- Daily, W., and A. Ramirez (1995), Electrical resistance tomography during in-situ trichloroethylene remediation at the Savannah River Site, *J. Appl. Geophys.*, 33(4), 239–249, doi:10.1016/0926-9851(95)90044-6.
- Daily, W., and A. L. Ramirez (2000), Electrical imaging of engineered hydraulic barriers, *Geophysics*, 65(1), 83–94, doi:10.1190/1.1444728.
- Daily, W., A. Ramirez, D. LaBrecque, and J. Nitao (1992), Electrical resistivity tomography of vadose water movement, *Water Resour. Res.*, 28(5), 1429–1442, doi:10.1029/91WR03087.
- David, C., M. Darot, and D. Jeannette (1993), Pore structures and transport properties of sandstone, *Transp. Porous Media*, 11(2), 161–177, doi:10.1007/BF01059632.
- Deceuster, J., J. Delgranche, and O. Kaufmann (2006), 2D cross-borehole resistivity tomographies below foundations as a tool to design proper remedial actions in covered karst, *J. Appl. Geophys.*, 60(1), 68–86, doi:10.1016/j.jappgeo.2005.12.005.

- Dewandel, B., J. C. Maréchal, O. Bour, B. Ladouche, S. Ahmed, S. Chandra, and H. Pauwels (2012), Upscaling and regionalizing hydraulic conductivity and effective porosity at watershed scale in deeply weathered crystalline aquifers, *J. Hydrol.*, 416-417, 83–97, doi:10.1016/j.jhydrol.2011.11.038.
- Doetsch, J., N. Linde, T. Vogt, A. Binley, and A. G. Green (2012), Imaging and quantifying salt-tracer transport in a riparian groundwater system by means of 3D ERT monitoring, *Geophysics*, 77(5), B207–B218, doi:10.1190/geo2012-0046.1.
- Doetsch, J., M. B. Kowalsky, C. Doughty, S. Finsterle, J. B. Ajo-Franklin, C. R. Carrigan, X. Yang, S. D. Hovorka, and T. M. Daley (2013), Constraining CO₂ simulations by coupled modeling and inversion of electrical resistance and gas composition data, *Int. J. Greenh. Gas Control*, doi:10.1016/j.ijggc.2013.04.011.
- Duan, Z., and R. Sun (2003), An improved model calculating CO₂ solubility in pure water and aqueous NaCl solutions from 273 to 533 K and from 0 to 2000 bar, *Chem. Geol.*, 193(3-4), 257–271, doi:10.1016/S0009-2541(02)00263-2.
- Durand, C. (2003), Improvement of fluid distribution description during floods by combined use of X-ray CT scan and continuous local resistivity measurements, *17th Int. Symp. Soc. Core Anal.*, 1–12.
- Fleury, M., and H. Deschamps (2008), Electrical Conductivity and Viscosity of Aqueous NaCl Solutions with Dissolved CO₂, *J. Chem. Eng. Data*, 53(11), 2505–2509, doi:10.1021/je8002628.
- De Franco, R. et al. (2009), Monitoring the saltwater intrusion by time lapse electrical resistivity tomography: The Chioggia test site (Venice Lagoon, Italy), *J. Appl. Geophys.*, 69(3-4), 117–130, doi:10.1016/j.jappgeo.2009.08.004.
- Giese, R., J. Henniges, S. Lüth, D. Morozova, C. Schmidt-Hattenberger, H. Würdemann, M. Zimmer, C. Cosma, and C. Juhlin (2009), Monitoring at the CO₂ SINK site: A concept integrating geophysics, geochemistry and microbiology, *Energy Procedia*, 1(1), 2251–2259.
- Glover, P. W. J., M. J. Hole, and J. Pous (2000), A modified Archie's law for two conducting phases, *Earth Planet. Sci. Lett.*, 180(3-4), 369–383, doi:10.1016/S0012-821X(00)00168-0.
- Grahame, D. C. (1947), The Electrical Double Layer and the Theory of Electrocapillarity, *Chem. Rev.*, 41(3), 441–501, doi:10.1021/cr60130a002.
- Guéguen, Y., and V. Palciauskas (1994), *Introduction to the physics of rocks*, Princeton University Press, Princeton, N.J.
- Günther, T., C. Rücker, J. Doetsch, N. Linde, M. Pessognelli, A. G. Green, and T. Gunther (2010), Boundless Electrical Resistivity Tomography (BERT) v. 2.0–Open Access Software for Advanced and Flexible Imaging, *Lead. Edge*, 75, F107–F114.

- Han, M., S. Youssef, E. Rosenberg, M. Fleury, and P. Levitz (2009), Deviation from Archie's law in partially saturated porous media: Wetting film versus disconnectedness of the conducting phase, *Phys. Rev. E*, 79(3), doi:10.1103/PhysRevE.79.031127.
- Hannis, S. D. (2013), Monitoring the geological storage of CO₂, in *Geological Storage of Carbon Dioxide (CO₂) Geoscience, Technologies, Environmental Aspects and Legal Frameworks*, pp. 68–96, Woodhead Pub, Philadelphia, PA.
- IPCC (2005), IPCC special report on carbon dioxide capture and storage, *Policy Stud.*, 2011, 2010.
- JCGM (2008), Evaluation of measurement data – Guide to the expression of uncertainty in measurement (GUM 1995 with minor corrections), *JCGM 100:2008*.
- Johnson, D., and P. Sen (1988), Dependence of the conductivity of a porous medium on electrolyte conductivity, *Phys. Rev. B*, 37(7), 3502–3510, doi:10.1103/PhysRevB.37.3502.
- Juanes, R., C. W. MacMinn, and M. L. Szulczewski (2010), The Footprint of the CO₂ Plume during Carbon Dioxide Storage in Saline Aquifers: Storage Efficiency for Capillary Trapping at the Basin Scale, *Transp. Porous Media*, 82(1), 19–30, doi:10.1007/s11242-009-9420-3.
- Karaoulis, M., P. Tsourlos, and J.-H. Kim (2012), Comparison of algorithms of Time-lapse ERT inversion, *Geoelectr. Monit.*, 93, 98–104.
- Karaoulis, M., P. Tsourlos, J.-H. Kim, and A. Revil (2014), 4D time-lapse ERT inversion: introducing combined time and space constraints, *Surf. Geophys.*, 12(2007), doi:10.3997/1873-0604.2013004.
- Kashefi, K., R. P. Mascarenhas, A. J. M. Vieira, and K. Rajagopal (2014), Carbon dioxide absorption and desorption on o-rings at high-pressure equipments, *X Encontro Brasileiro sobre Adsorção - Guarujá, SP*.
- Kaszuba, J. P., D. R. Janecky, and M. G. Snow (2003), Carbon dioxide reaction processes in a model brine aquifer at 200 °C and 200 bars: implications for geologic sequestration of carbon, *Appl. Geochem.*, 18(7), 1065–1080, doi:10.1016/S0883-2927(02)00239-1.
- Kemna, A. (2000), Tomographic inversion of complex resistivity - theory and application, Ph.D. Thesis, Bochum Rhur-univ., Germany.
- Kemna, A., B. Kulesa, and H. Vereecken (2002), Imaging and characterisation of subsurface solute transport using electrical resistivity tomography (ERT) and equivalent transport models, *J. Hydrol.*, 267(3), 125–146.
- Kiessling, D., C. Schmidt-Hattenberger, H. Schuett, F. Schilling, K. Krueger, B. Schoebel, E. Danckwardt, and J. Kummerow (2010), Geoelectrical methods for monitoring geological CO₂ storage: First results from cross-hole and surface-downhole measurements from the CO₂SINK test site at Ketzin (Germany), *Int. J. Greenh. Gas Control*, 4(5), 816–826, doi:10.1016/j.ijggc.2010.05.001.

- Kleinermann, F., N. J. Avis, and F. A. Alhargan (2000), Analytical solution to the three-dimensional electrical forward problem for a circular cylinder, *Inverse Probl.*, 16(2), 461–468, doi:10.1088/0266-5611/16/2/313.
- Knackstedt, M. A. et al. (2007), Pore scale analysis of electrical resistivity in complex core material, *21st Int. Symp. Soc. Core Anal.*, 33, 1–12.
- Koestel, J., A. Kemna, M. Javaux, A. Binley, and H. Vereecken (2008), Quantitative imaging of solute transport in an unsaturated and undisturbed soil monolith with 3-D ERT and TDR, *Water Resour. Res.*, 44(12), doi:10.1029/2007WR006755.
- Krüger, M. et al. (2011), Effects of elevated CO₂ concentrations on the vegetation and microbial populations at a terrestrial CO₂ vent at Laacher See, Germany, *Int. J. Greenh. Gas Control*, 5(4), 1093–1098, doi:10.1016/j.ijggc.2011.05.002.
- Kumar, M., R. Sok, M. A. Knackstedt, S. Latham, T. J. Senden, A. P. Sheppard, T. Varslot, C. Arns, and others (2009), Mapping fluid distributions in 3D at the pore scale: Quantifying the influence of wettability and saturation history on rock resistivity, in *SPWLA 50th Annual Logging Symposium*, Society of Petrophysicists and Well-Log Analysts.
- Kuras, O., J. D. Pritchard, P. I. Meldrum, J. E. Chambers, P. B. Wilkinson, R. D. Ogilvy, and G. P. Wealthall (2009), Monitoring hydraulic processes with automated time-lapse electrical resistivity tomography (ALERT), *Comptes Rendus Geosci.*, 341(10-11), 868–885, doi:10.1016/j.crte.2009.07.010.
- LaBrecque, D. J., and X. Yang (2001), Difference inversion of ERT data: a fast inversion method for 3-D in situ monitoring, *J. Environ. Eng. Geophys.*, 6, 83–90.
- LaBrecque, D. J., A. L. Ramirez, W. D. Daily, A. M. Binley, and S. A. Schima (1996), ERT monitoring of environmental remediation processes, *Meas. Sci. Technol.*, 7(3), 375.
- LaBrecque, D. J., R. Sharpe, T. Wood, and G. Heath (2004), Small-Scale Electrical Resistivity Tomography of Wet Fractured Rocks, *Ground Water*, 42(1), 111–118, doi:10.1111/j.1745-6584.2004.tb02456.x.
- Lamert, H. et al. (2012), Feasibility of geoelectrical monitoring and multiphase modeling for process understanding of gaseous CO₂ injection into a shallow aquifer, *Environ. Earth Sci.*, 67(2), 447–462, doi:10.1007/s12665-012-1669-0.
- Lee, J. Y., and J. C. Santamarina (2010), Electrical Resistivity Tomography in Cylindrical Cells-Guidelines for Hardware Pre-Design, *Geotech. Test. J.*, 33(1), 1.
- Leroux, V., and T. Dahlin (2006), Time-lapse resistivity investigations for imaging saltwater transport in glaciofluvial deposits, *Environ. Geol.*, 49(3), 347–358, doi:10.1007/s00254-005-0070-7.

- Li, D., and Z. Duan (2007), The speciation equilibrium coupling with phase equilibrium in the $\text{H}_2\text{O}-\text{CO}_2-\text{NaCl}$ system from 0 to 250 °C, from 0 to 1000 bar, and from 0 to 5 molality of NaCl, *Chem. Geol.*, 244(3-4), 730–751, doi:10.1016/j.chemgeo.2007.07.023.
- Liu, Z., and S. M. J. Moysey (2012), The Dependence of Electrical Resistivity-Saturation Relationships on Multiphase Flow Instability, *ISRN Geophys.*, 2012, 1–10, doi:10.5402/2012/270750.
- Luquot, L., and P. Gouze (2009), Experimental determination of porosity and permeability changes induced by injection of CO_2 into carbonate rocks, *Chem. Geol.*, 265(1-2), 148–159, doi:10.1016/j.chemgeo.2009.03.028.
- Luquot, L., M. Andreani, P. Gouze, and P. Camps (2012), CO_2 percolation experiment through chlorite/zeolite-rich sandstone (Pretty Hill Formation – Otway Basin–Australia), *Chem. Geol.*, 294-295, 75–88, doi:10.1016/j.chemgeo.2011.11.018.
- Macminn, C. W., M. L. Szulczewski, and R. Juanes (2010), CO_2 migration in saline aquifers. Part 1. Capillary trapping under slope and groundwater flow, *J. Fluid Mech.*, 662, 329–351, doi:10.1017/S0022112010003319.
- Mao, S., and Z. Duan (2008), The P,V,T,x properties of binary aqueous chloride solutions up to $T=573\text{K}$ and 100MPa, *J. Chem. Thermodyn.*, 40(7), 1046–1063, doi:10.1016/j.jct.2008.03.005.
- Martínez, J., J. Benavente, J. L. García-Aróstegui, M. C. Hidalgo, and J. Rey (2009), Contribution of electrical resistivity tomography to the study of detrital aquifers affected by seawater intrusion–extrusion effects: The river Vélez delta (Vélez-Málaga, southern Spain), *Eng. Geol.*, 108(3-4), 161–168, doi:10.1016/j.enggeo.2009.07.004.
- Meyerhoff, S. B., M. Karaoulis, F. Fiebig, R. M. Maxwell, A. Revil, J. B. Martin, and W. D. Graham (2012), Visualization of conduit-matrix conductivity differences in a karst aquifer using time-lapse electrical resistivity, *Geophys. Res. Lett.*, 39(24), doi:10.1029/2012GL053933.
- Millero, F., F. Huang, T. Graham, and D. Pierrot (2007), The dissociation of carbonic acid in NaCl solutions as a function of concentration and temperature, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 71(1), 46–55, doi:10.1016/j.gca.2006.08.041.
- Milsch, H. H., E. Spangenberg, J. Kulenkampff, and S. Meyhöfer (2007), A new Apparatus for Long-term Petrophysical Investigations on Geothermal Reservoir Rocks at Simulated In-situ Conditions, *Transp. Porous Media*, 74(1), 73–85, doi:10.1007/s11242-007-9186-4.
- Missteart, B. D. R. (2006), *Water wells and boreholes*, John Wiley & Sons, Chichester, England; Hoboken, NJ.
- Mwakanyamale, K., L. Slater, A. Binley, and D. Ntarlagiannis (2012), Lithologic imaging using complex conductivity: Lessons learned from the Hanford 300 Area, *Geophysics*, 77(6), E397–E409, doi:10.1190/geo2011-0407.1.

- Myer, L. R. (2001), Laboratory measurement of geophysical properties for monitoring of CO₂ sequestration, in *Proceedings, First National Symposium on Carbon Sequestration*, US National Energy Technology Laboratory, Washington DC.
- Nakashima, Y., and T. Nakano (2011), Accuracy of formation factors for three-dimensional pore-scale images of geo-materials estimated by renormalization technique, *J. Appl. Geophys.*, 75(1), 31–41, doi:10.1016/j.jappgeo.2011.06.021.
- Nakatsuka, Y., Z. Xue, H. Garcia, and T. Matsuoka (2010), Experimental study on CO₂ monitoring and quantification of stored CO₂ in saline formations using resistivity measurements, *Int. J. Greenh. Gas Control*, 4(2), 209–216, doi:10.1016/j.ijggc.2010.01.001.
- Noel, M., and B. Xu (1991), Archaeological investigation by electrical resistivity tomography: a preliminary study, *Geophys. J. Int.*, 107(1), 95–102.
- Ogaya, X., J. Ledo, P. Queralt, Á. Marcuello, and A. Quintà (2013), First geoelectrical image of the subsurface of the Hontomín site (Spain) for CO₂ geological storage: A magnetotelluric 2D characterization, *Int. J. Greenh. Gas Control*, 13, 168–179, doi:10.1016/j.ijggc.2012.12.023.
- Ogaya, X., P. Queralt, J. Ledo, Á. Marcuello, and A. G. Jones (2014), Geoelectrical baseline model of the subsurface of the Hontomín site (Spain) for CO₂ geological storage in a deep saline aquifer: A 3D magnetotelluric characterisation, *Int. J. Greenh. Gas Control*, 27, 120–138, doi:10.1016/j.ijggc.2014.04.030.
- Oldenburg, C. M. (2007), Migration mechanisms and potential impacts of CO₂ leakage and seepage, *Carbon Capture Sequestration Integrating Technol. Monit. Regul.*, 127–146.
- Peacock, R. N. (1980), Practical selection of elastomer materials for vacuum seals, *J. Vac. Sci. Technol.*, 17(1), 330, doi:10.1116/1.570380.
- Perri, M. T., G. Cassiani, I. Gervasio, R. Deiana, and A. Binley (2012), A saline tracer test monitored via both surface and cross-borehole electrical resistivity tomography: Comparison of time-lapse results, *J. Appl. Geophys.*, 79, 6–16, doi:10.1016/j.jappgeo.2011.12.011.
- Power, C., J. I. Gerhard, M. Karaoulis, P. Tsourlos, and A. Giannopoulos (2014), Evaluating four-dimensional time-lapse electrical resistivity tomography for monitoring DNAPL source zone remediation, *J. Contam. Hydrol.*, 162–163, 27–46, doi:10.1016/j.jconhyd.2014.04.004.
- Press, W. H. (Ed.) (1992), *Numerical recipes in C: the art of scientific computing*, 2nd ed., Cambridge University Press, Cambridge; New York.
- Quist, A. S., and W. L. Marshall (1969), Electrical conductances of some alkali metal halides in aqueous solutions from 0 to 800. deg. and at pressures to 4000 bars, *J. Phys. Chem.*, 73(4), 978–985.

- Ramirez, A., W. Daily, D. LaBrecque, E. Owen, and D. Chesnut (1993), Monitoring an underground steam injection process using electrical resistance tomography, *Water Resour. Res.*, 29(1), 73–87, doi:10.1029/92WR01608.
- Revil, A. (2013), On charge accumulation in heterogeneous porous rocks under the influence of an external electric field, *Geophysics*, 78(4), D271–D291, doi:10.1190/geo2012-0503.1.
- Revil, A., and P. W. J. Glover (1997), Theory of ionic-surface electrical conduction in porous media, *Phys. Rev. B*, 55(3), 1757.
- Revil, A., L. M. Cathles, S. Losh, and J. A. Nunn (1998), Electrical conductivity in shaly sands with geophysical applications, *J. Geophys. Res.*, 103(B10), 23925, doi:10.1029/98JB02125.
- Revil, A., P. Kessouri, and C. Torres-Verdín (2014), Electrical conductivity, induced polarization, and permeability of the Fontainebleau sandstone, *Geophysics*, 79(5), D301–D318, doi:10.1190/geo2014-0036.1.
- Robinson, R. A., and R. H. Stokes (2002), *Electrolyte solutions*, 2nd rev. ed., Dover Publications, Mineola, NY.
- Le Roux, O., G. Cohen, C. Loisy, C. Laveuf, P. Delaplace, C. Magnier, V. Rouchon, A. Cerepi, and B. Garcia (2013), The CO₂-Vadose project: Time-lapse geoelectrical monitoring during CO₂ diffusion in the carbonate vadose zone, *Int. J. Greenh. Gas Control*, 16, 156–166, doi:10.1016/j.ijggc.2013.03.016.
- Ruffet, C., M. Darot, and Y. Guéguen (1995), Surface conductivity in rocks: a review, *Surv. Geophys.*, 16(1), 83–105, doi:10.1007/BF00682714.
- Schmidt-Hattenberger, C., P. Bergmann, D. Kießling, K. Krüger, C. Rücker, H. Schütt, and K. Group (2011), Application of a Vertical Electrical Resistivity Array (VERA) for monitoring CO₂ migration at the Ketzin site: First performance evaluation, *Energy Procedia*, 4, 3363–3370, doi:10.1016/j.egypro.2011.02.258.
- Schmidt-Hattenberger, C., P. Bergmann, D. Bösing, T. Labitzke, M. Möller, S. Schröder, F. Wagner, and H. Schütt (2013), Electrical Resistivity Tomography (ERT) for Monitoring of CO₂ Migration - from Tool Development to Reservoir Surveillance at the Ketzin Pilot Site, *Energy Procedia*, 37, 4268–4275, doi:10.1016/j.egypro.2013.06.329.
- Schöberl, J. (1997), NETGEN An advancing front 2D/3D-mesh generator based on abstract rules, *Comput. Vis. Sci.*, 1(1), 41–52, doi:10.1007/s007910050004.
- Schön, J. (1996), *Physical properties of rocks: fundamentals and principles of petrophysics*, Handbook of geophysical exploration. Seismic exploration v. 18, 1st ed., Pergamon, Oxford, OX, UK ; Tarrytown, N.Y., U.S.A.
- Sen, P. N., C. Scala, and M. H. Cohen (1981), A self - similar model for sedimentary rocks with application to the dielectric constant of fused glass beads, *GEOPHYSICS*, 46(5), 781–795, doi:10.1190/1.1441215.

- Singha, K., and S. M. Gorelick (2005), Saline tracer visualized with three-dimensional electrical resistivity tomography: Field-scale spatial moment analysis: SPATIAL MOMENT ANALYSIS OF ERT, *Water Resour. Res.*, 41(5), n/a–n/a, doi:10.1029/2004WR003460.
- Singha, K., F. D. Day-Lewis, T. Johnson, and L. D. Slater (2014), Advances in interpretation of subsurface processes with time-lapse electrical imaging: TIME-LAPSE ELECTRICAL IMAGING, *Hydrol. Process.*, n/a–n/a, doi:10.1002/hyp.10280.
- Slater, L., A. M. Binley, W. Daily, and R. Johnson (2000), Cross-hole electrical imaging of a controlled saline tracer injection, *J. Appl. Geophys.*, 44(2), 85–102.
- Slater, L., A. Binley, R. Versteeg, G. Cassiani, R. Birken, and S. Sandberg (2002), A 3D ERT study of solute transport in a large experimental tank, *J. Appl. Geophys.*, 49(4), 211–229.
- Span, R., and W. Wagner (1996), A new equation of state for carbon dioxide covering the fluid region from the triple-point temperature to 1100 K at pressures up to 800 MPa, *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 25(6), 1509–1596.
- Stacey, R., K. Li, and R. N. Horne (2009), Investigating Electrical-Impedance Tomography as a Technique for Real-Time Saturation Monitoring, *SPE J.*, 14(01), 135–143, doi:10.2118/103124-PA.
- Stacey, R. W. (2006), Electrical Impedance Tomography, , *Technical Report SGP-TR-182*(The Department of Petroleum Engineering, Stanford University: Stanford, CA, USA).
- Sturm, P. (2004), Permeation of atmospheric gases through polymer O-rings used in flasks for air sampling, *J. Geophys. Res.*, 109(D4), doi:10.1029/2003JD004073.
- The MathWorks (2007), *MATLAB 7.4.0 (R2007a)*, Natick, Massachusetts.
- Tikhonov, A. N., and V. I. Arsenin (1977), *Solutions of ill-posed problems*, Halsted Press, Washington; New York: Winston.
- Tiwary, D. K., I. O. Bayuk, A. A. Vikhorev, and E. M. Chesnokov (2009), Comparison of seismic upscaling methods: From sonic to seismic, *Geophysics*, 74(2), WA3–WA14, doi:10.1190/1.3054144.
- Vilamajó, E., P. Queralt, J. Ledo, and A. Marcuello (2013), Feasibility of Monitoring the Hontomín (Burgos, Spain) CO₂ Storage Site Using a Deep EM Source, *Surv. Geophys.*, 34(4), 441–461, doi:10.1007/s10712-013-9238-y.
- Vilarrasa, V. (2012), Thermo-Hydro-Mechanical Impacts of Carbon Dioxide (CO₂) Injection in Deep Saline Aquifers,
- Wagner, F. M., M. Möller, C. Schmidt-Hattenberger, T. Kempka, and H. Maurer (2013), Monitoring freshwater salinization in analog transport models by

- time-lapse electrical resistivity tomography, *J. Appl. Geophys.*, 89, 84–95, doi:10.1016/j.jappgeo.2012.11.013.
- Waxman, M. H., and L. J. M. Smits (1968), Electrical Conductivities in Oil-Bearing Shaly Sands, *Soc. Pet. Eng. J.*, 8(02), 107–122, doi:10.2118/1863-A.
- Van Weereld, J. J. A., M. A. Player, D. A. L. Collie, A. P. Watkins, and D. Olsen (2001), Flow imaging in core samples by electrical impedance tomography, , *SCA 2001 Symposium, Edinburgh*.
- Weller, A., L. Slater, and S. Nordsiek (2013), On the relationship between induced polarization and surface conductivity: Implications for petrophysical interpretation of electrical measurements, *GEOPHYSICS*, 78(5), D315–D325, doi:10.1190/geo2013-0076.1.
- West, J. M., I. G. McKinley, B. Palumbo-Roe, and C. A. Rochelle (2011), Potential impact of CO₂ storage on subsurface microbial ecosystems and implications for groundwater quality, *Energy Procedia*, 4, 3163–3170, doi:10.1016/j.egypro.2011.02.231.
- Wilkinson, P. B., P. I. Meldrum, O. Kuras, J. E. Chambers, S. J. Holyoake, and R. D. Ogilvy (2010), High-resolution Electrical Resistivity Tomography monitoring of a tracer test in a confined aquifer, *J. Appl. Geophys.*, 70(4), 268–276, doi:10.1016/j.jappgeo.2009.08.001.
- Yang, X., X. Chen, C. R. Carrigan, and A. L. Ramirez (2014), Uncertainty quantification of CO₂ saturation estimated from electrical resistance tomography data at the Cranfield site, *Int. J. Greenh. Gas Control*, 27, 59–68, doi:10.1016/j.ijggc.2014.05.006.
- Yanici, S., J.-Y. Arns, Y. Cinar, W. V. Pinczewski, and C. H. Arns (2013), Percolation Effects of Grain Contacts in Partially Saturated Sandstones: Deviations from Archie’s Law, *Transp. Porous Media*, 96(3), 457–467, doi:10.1007/s11242-012-0099-5.
- Yuan-Hui, L., and S. Gregory (1974), Diffusion of ions in sea water and in deep-sea sediments, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 38(5), 703–714, doi:10.1016/0016-7037(74)90145-8.
- Zeebe, R. E. (2011), On the molecular diffusion coefficients of dissolved CO₂, HCO₃⁻ and CO₃²⁻ and their dependence on isotopic mass, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 75(9), 2483–2498, doi:10.1016/j.gca.2011.02.010.
- Zhdanov, M. S. (2009), *Geophysical electromagnetic theory and methods*, Elsevier, Amsterdam, Netherlands; Boston [Mass.].
- Zinszner, B., and F. M. Pellerin (2007), *A geoscientist’s guide to petrophysics*, IFP publications, Editions Technip, Paris.

Apèndix A. Càlcul d'errors

Pel càlcul d'errors d'una quantitat derivada $y = f(x_1, x_2, \dots, x_n)$ s'utilitza la fórmula general de la propagació d'errors [JCGM, 2008]:

$$\varepsilon_y^2 = \sum_{i=1}^n \left(\frac{\partial y}{\partial x_i} \right)^2 \varepsilon_{x_i}^2 + 2 \sum_{i=1}^{n-1} \sum_{j=i+1}^n \left(\frac{\partial y}{\partial x_i} \right) \left(\frac{\partial y}{\partial x_j} \right) \varepsilon_{x_i} \varepsilon_{x_j} r_{i,j}, \quad (\text{A.1})$$

on ε_{x_i} és l'error de mesura de la quantitat x_i i $r_{i,j}$ és el coeficient de correlació entre les quantitats x_i i x_j .

A.1 Error de les dades de la inversió de la diferència

L'expressió de les dades de la inversió de la diferència és

$$d_i^* = d_{t,i} - (d_{0,i} - f_i(m_0)), \quad (\text{A.2})$$

Per tant, l'error d'aquestes noves dades s'obtindrà aplicant la fórmula de la propagació d'errors,

$$\varepsilon_{d_i^*} = \sqrt{\varepsilon_{d_{t,i}}^2 + \varepsilon_{d_{0,i}}^2 + \varepsilon_{f_i(m_0)}^2}, \quad (\text{A.3})$$

on $\varepsilon_{f_i(m_0)} = 0.02 \cdot f_i(m_0)$.

A.2 Error de la porositat

Per calcular l'error de la porositat es parteix de l'expressió

$$\phi = \frac{w_{sat} - w_{dry}}{w_{sat} - w_{sub}} = \frac{\phi_u}{\phi_d}, \quad (\text{A.4})$$

Utilitzant la fórmula de propagació d'errors sense correlació ($r_{i,j} = 0$), s'obté

$$\varepsilon_\phi = \sqrt{\left(\frac{1}{\phi_d}\right)^2 \varepsilon_{\phi_u}^2 + \left(\frac{\phi_u}{\phi_d^2}\right)^2 \varepsilon_{\phi_d}^2}, \quad (\text{A.5})$$

Per altra banda, com que tots els errors de pesada són idèntics i iguals a 0.1 g,

$$\varepsilon_{\phi_u} = \sqrt{\varepsilon_{w_{sat}}^2 + \varepsilon_{w_{dry}}^2} = 0.1 \cdot \sqrt{2}, \quad (\text{A.6})$$

$$\varepsilon_{\phi_d} = \varepsilon_{\phi_u}, \quad (\text{A.7})$$

Conseqüentment, s'obté

$$\varepsilon_\phi = 0.1 \cdot \sqrt{2} \cdot \sqrt{\left(\frac{1}{w_{sat} - w_{sub}}\right)^2 + \left[\frac{w_{sat} - w_{dry}}{(w_{sat} - w_{sub})^2}\right]^2}, \quad (\text{A.8})$$

A.3 Error de l'exponent de cimentació

L'expressió de l'exponent de cimentació utilitzada a l'apartat 6.22 és

$$m^* = -\log(\rho / \rho_w) / \log(\phi - \phi_p), \quad (\text{A.9})$$

Utilitzant l'equació de la propagació d'errors i assumint que ϕ_p no té error i que

$$\rho \approx \rho_{app} = kR = 10 \text{ } \Omega \cdot \text{m}, \text{ s'obté}$$

$$\varepsilon_{m^*} \approx \sqrt{\left(\frac{\varepsilon_R}{R \log(\phi - \phi_p)}\right)^2 + \left(\frac{\varepsilon_{\rho_w}}{\rho_w \log(\phi - \phi_p)}\right)^2 + \left(\frac{\log(10/\rho_w) \cdot \varepsilon_\phi}{(\phi - \phi_p) [\log(\phi - \phi_p)]^2}\right)^2}, \quad (\text{A.10})$$

Si s'estima $\varepsilon_R \approx 0.1 \cdot R$ i $\varepsilon_{\rho_w} = \varepsilon_\phi = 0.001$, s'obté $\varepsilon_{m^*} \approx 0.04$

A.4 Error de la resistivitat aparent

La resistivitat aparent d'una dada de tomografia elèctrica es defineix com

$$\rho_{app} = kR, \quad (\text{A.11})$$

Utilitzant la fórmula de la propagació d'errors sota l'assumpció que el factor geomètric no té error, s'obté

$$\varepsilon_{\rho_{app}} = \sqrt{k^2 \varepsilon_R^2} = k \varepsilon_R, \quad (\text{A.12})$$

on ε_R és l'error recíproc (en Ω) determinat experimentalment.

A.5 Error del quocient de resistències

El quocient de resistències d'una dada i es defineix com

$$r_i = \frac{R_{l_i}}{R_{t_i}}, \quad (\text{A.13})$$

Utilitzant la fórmula de propagació d'errors, tenint en compte que les dues variables estan correlacionades, s'obté

$$\varepsilon_{r_i} = \sqrt{\left(\frac{\varepsilon_{R_{l_i}}}{R_{t_i}}\right)^2 + \left(\frac{R_{l_i} \varepsilon_{R_{t_i}}}{R_{t_i}^2}\right)^2 - 2c \frac{R_{l_i} \varepsilon_{R_{l_i}} \varepsilon_{R_{t_i}}}{R_{t_i}^3}}, \quad (\text{A.14})$$

on c és el coeficient de correlació entre R_l i R_t .

A.6 Error de les dades de la inversió modificada del quocient

L'expressió de les dades de la inversió modificada del quocient és

$$d_i^* = (d_{t,i} / d_{0,i}) \cdot f_i(\mathbf{m}_0), \quad (\text{A.15})$$

Per tant, l'error d'aquestes noves dades s'obindrà aplicant la fórmula de la propagació d'errors,

$$\varepsilon_{d_i^*} = \sqrt{\left(\frac{f_i(\mathbf{m}_0)}{d_{0,i}}\right)^2 \cdot \varepsilon_{d_{t,i}}^2 + \left(\frac{d_{t,i} \cdot f_i(\mathbf{m}_0)}{d_{0,i}^2}\right)^2 \cdot \varepsilon_{d_{0,i}}^2 + \left(\frac{d_{t,i}}{d_{0,i}^2}\right)^2 \cdot \varepsilon_{f_i(\mathbf{m}_0)}^2}, \quad (\text{A.16})$$

on $\varepsilon_{f_i(\mathbf{m}_0)} = 0.02 \cdot f_i(\mathbf{m}_0)$.

Apèndix B. Resistivitat de les làmines dels casos investigats a l'experiment I

Per tal de comprovar que els valors de resistivitat de les làmines són coherents entre models i que estan en concordança amb les condicions experimentals, aquestes es presenten a la Figura B.1. Es pot observar que es mantenen les relacions corresponents a les condicions experimentals; pel cas 1, el circuit superior estava ple de salmorra, mentre que pels casos 2, 3 i 4 estava ple de CO₂. Les làmines superiors de la Figura B.1 reflexen aquestes condicions. Per altra banda, als casos 1, 2 i 3 el circuit inferior estava ple de salmorra i pel cas 4 estava ple de CO₂. Tot i que amb més variabilitat que per a les làmines superiors (sobretot el cas 3), els valors recuperats de les làmines inferiors també reflexen aquestes condicions.

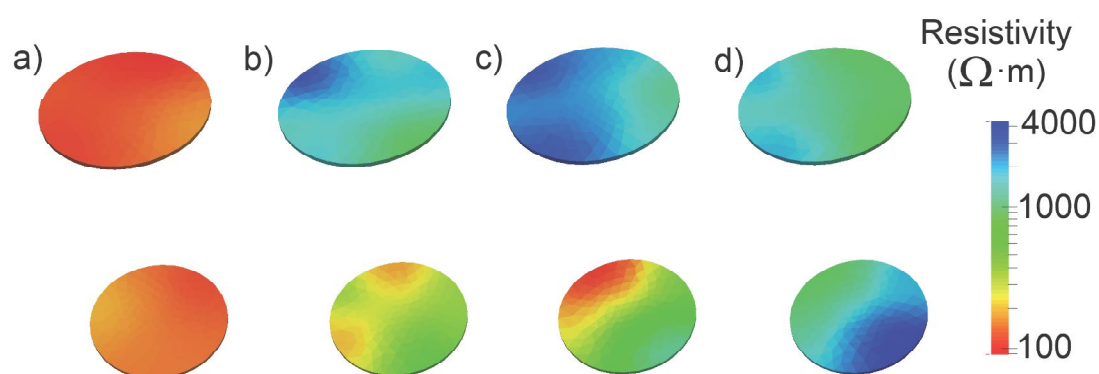


Fig. B.1. Làmines superior i inferior dels quatre casos investigats a l'experiment I a) cas 1 (0% CO₂); b) cas 2 (35% CO₂); c) cas 3 (55% CO₂); d) cas 4 (71% CO₂)

Apèndix C. Errors recíprocs relatius

C.1 Errors de les dades de l'experiment I

A la Figura C.1 es mostren els errors recíprocs relatius de les dades adquirides per cada cas de l'experiment I.

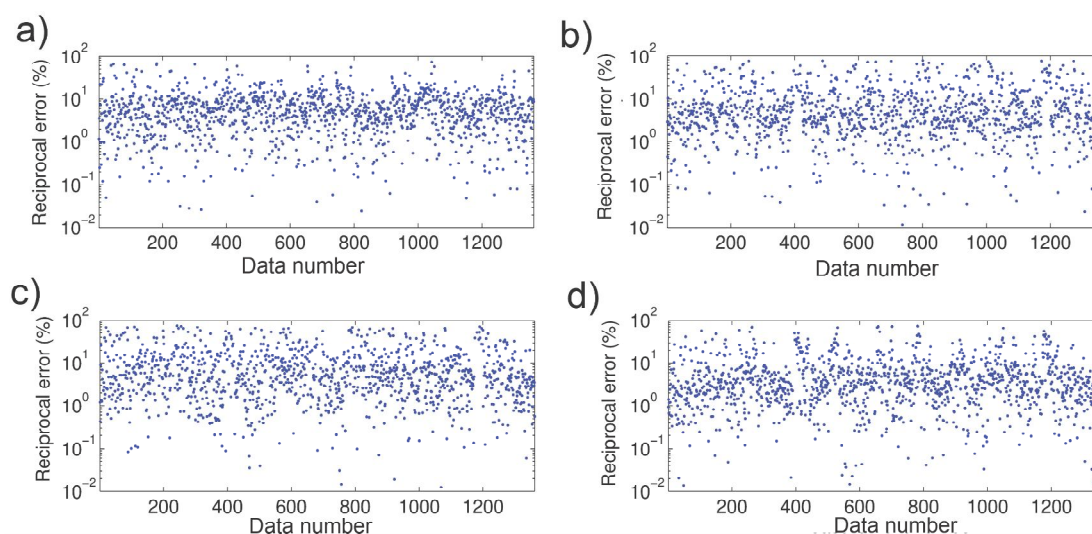


Fig. C.1. Error recíproc relatiu de les dades dels quatre casos investigats a l'experiment I.
a) cas 1 (0% CO_2), b) cas 2 (35% CO_2), c) cas 3 (55% CO_2) i d) cas 4 (71% CO_2)

C.2 Errors de les dades de l'experiment II

A la Figura C.2 es mostren els errors recíprocs relatius de les dades de la primera mesura de cada dia de l'experiment II.

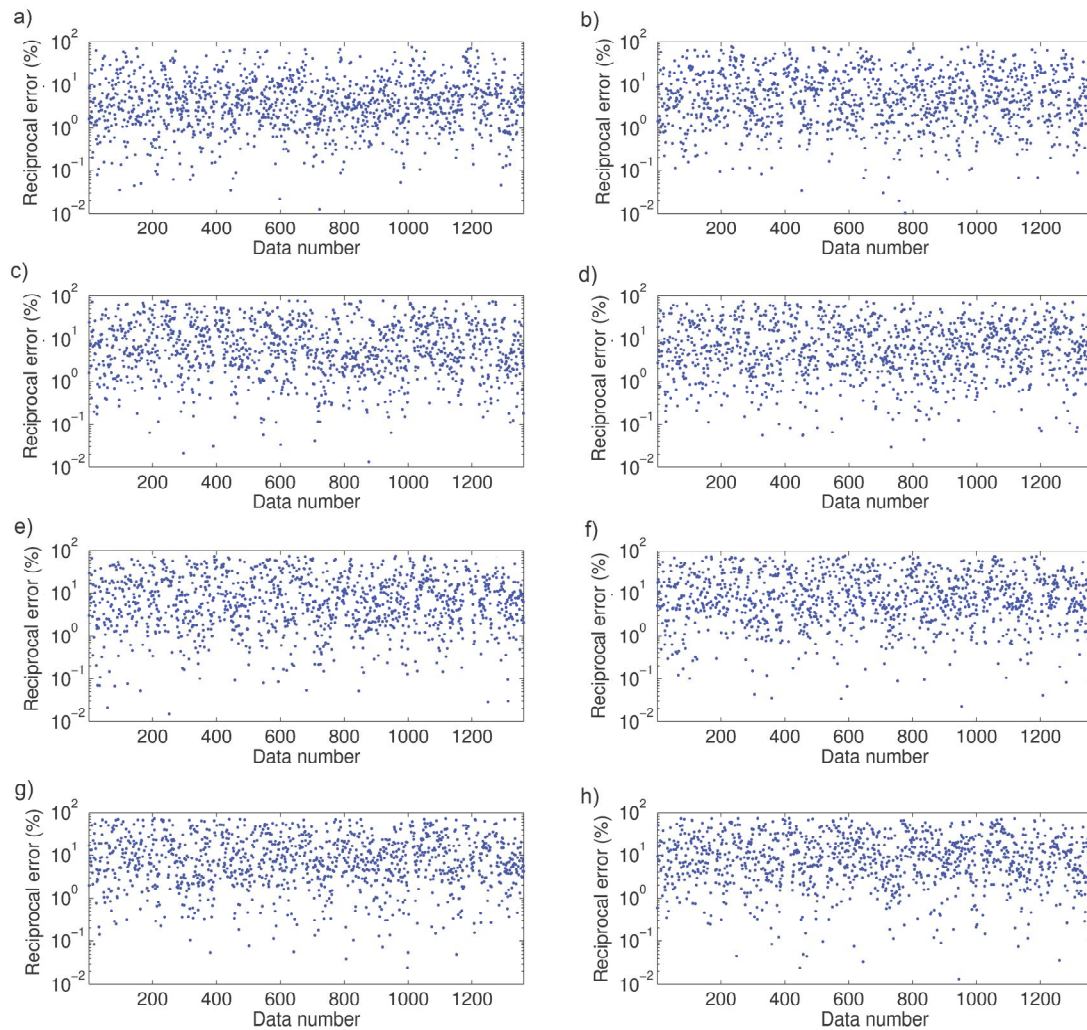


Fig. C.2. Error recíproc relatiu de les dades de la primera mesura de cada dia de l'experiment II a) mesura 1, b) mesura 13 (26 h), c) mesura 21 (49 h), d) mesura 30 (79 h), e) mesura 31 (95 h), f) mesura 33 (122.25 h), g) mesura 34 (143.75 h) i h) mesura 36 (175.75 h)

Apèndix D. Càlcul numèric del factor geomètric

Per a poder calcular la resistivitat aparent a partir de les dades de resistència és necessari el factor geomètric k introduït a l'equació 3.2. La solució analítica del problema directe per un model homogeni cil·lndric [Kleiner mann *et al.*, 2000] és molt complexa de calcular, de manera que s'ha utilitzat un mètode alternatiu. Inicialment s'ha computat el problema directe d'un model homogeni de resistivitat $1 \Omega \cdot m$ amb el programa R3t. Com que es tracta d'un model homogeni, la resistivitat aparent i la resistivitat real han de coincidir i, per tant, es pot determinar el factor geomètric de cada dada amb la següent equació:

$$k = \frac{\rho_{app}}{R} = \frac{\rho}{R} = \frac{1}{R}, \quad (D.1)$$

A la Figura D.1 es representen els valors del factor geomètric per a cadascuna de les 1362 configuracions.

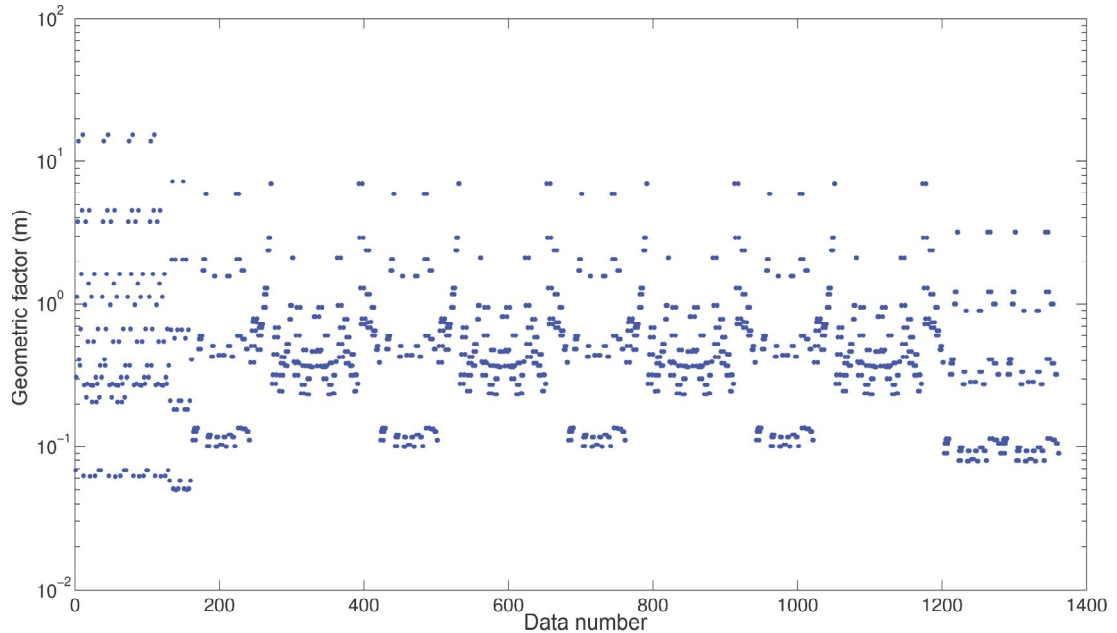


Fig. D.1. Factor geomètric de les 1362 configuracions d'electrodes utilitzades

Apèndix E. Càlcul numèric de l'exponent de saturació

L'exponent de saturació es defineix com el pendent de la recta de regressió del logaritme de l'índex de resistivitat en funció del logaritme de la saturació de salmorra. Per tant, la recta té la següent expressió:

$$\log(RI) = n \cdot \log(S_w), \quad (\text{E.1})$$

Aquesta recta ha de passar pel punt $(S_w=1, RI=1)$; en l'espai logarítmic, això implica que ha de passar pel punt $p_0 = (\log(1), \log(1)) = (0,0)$.

Com que hi ha error en ambdues coordenades de cada punt, convé minimitzar la següent funció objectiu per a determinar numèricament el pendent [Press, 1992]:

$$D = \frac{\sum_{i=1}^N (y_i - nx_i)}{\sigma_{y_i}^2 + n^2 \sigma_{x_i}^2}, \quad (\text{E.2})$$

on $y_i = \log(RI_i)$, $x_i = \log(S_{wi})$, $\sigma_{y_i} = \varepsilon_{S_{wi}} / S_{wi}$, $\sigma_{x_i} = \varepsilon_{RI_i} / RI_i$. Utilitzant la funció *fminsearch* integrada al llenguatge MATLAB®, s'ha trobat un valor de $n=1.92$.

Com que l'índex de resistivitat està calculat en base a una dada de tomografia, assumint que la resistivitat aparent d'aquella dada és representativa de la resistivitat de la roca, es pot escriure

$$RI = \frac{\rho}{\rho_0} = \frac{kR}{kR_0} = \frac{R}{R_0}, \quad (\text{E.3})$$

Per tant, el seu error vindrà donat (assumint que no hi ha correlació) per

$$\varepsilon_{RI} = \sqrt{\left(\frac{1}{R_0}\right)^2 \varepsilon_R^2 + \left(\frac{R}{R_0^2}\right)^2 \varepsilon_{R_0}^2}, \quad (\text{E.4})$$

Els errors ε_R i ε_{R_0} són els errors recíprocs (en Ω), determinats experimentalment.

Per altra banda, la saturació de salmorra es calcula de la següent manera:

$$S_w = \frac{(w_{res} - w_{dry})/d_w + V}{V_\phi}, \quad (\text{E.5})$$

on w_{res} és el pes de la mostra que conté només salmorra residual, w_{dry} és el pes de la mostra completament seca, d_w és la densitat de la salmorra, V és el volum injectat de salmorra i V_ϕ és el volum de la porositat de la mostra. La densitat de la salmorra s'ha calculat amb l'aplicació online accessible a la direcció web http://models.kl-edu.ac.cn/models/h2o_nacl/index.htm, [Mao and Duan, 2008] i s'assumeix sense error. Utilitzant la fórmula de propagació d'errors sense correlació, s'obté

$$\varepsilon_{S_w} = \sqrt{\left(\frac{1}{d_w V_\phi}\right)^2 \varepsilon_{w_{res}}^2 + \left(\frac{1}{d_w V_\phi}\right)^2 \varepsilon_{w_{dry}}^2 + \left(\frac{1}{V_\phi}\right)^2 \varepsilon_V^2 + \left[\frac{(w_{res} - w_{dry})/d_w + V}{V_\phi^2}\right]^2 \varepsilon_{V_\phi}^2}, \quad (\text{E.6})$$

Els errors de pesada, $\varepsilon_{w_{res}}$ i $\varepsilon_{w_{dry}}$ valen 0.1 g, mentre que l'error volumètric de la xeringa val 0.2 ml.

L'error del volum de la porositat es calcula a partir de l'equació del volum de la porositat

$$V_\phi = \frac{w_{sat} - w_{dry}}{d_w}, \quad (\text{E.7})$$

Assumint que la densitat de la salmorra no té error, l'error del volum de la porositat s'expressa com

$$\varepsilon_{V_\phi} = \frac{1}{d_w} \sqrt{\varepsilon_{w_{sat}}^2 + \varepsilon_{w_{dry}}^2} = \frac{0.1 \cdot \sqrt{2}}{d_w}, \quad (\text{E.8})$$

L'error de l'exponent de saturació trobat amb l'equació F.2, quan la recta passa pel punt (0,0), s'obté amb l'expressió [Press, 1992]

$$\sigma_n = \sqrt{2} \cdot \left[\left(\frac{d^2 D}{dn^2} \right) \Big|_{n=n^*} \right]^{-1/2}, \quad (\text{E.9})$$

on n^* és el valor de l'exponent trobat mitjançant la minimització de la funció D (veure equació D.2). El valor trobat ha estat de 0.21. El valor del coeficient de determinació de la regressió ha estat $R^2 = 0.937$.

Publicació

A continuació s'adjunta la publicació realitzada durant la fase inicial de la tesi, en la qual el plantejament de la investigació es centrava en la correlació multiparamètrica integrada de models de subsòl mitjançant tècniques de *soft-computing*, com la lògica difosa, el *fuzzy clustering* o les xarxes neurals artificials. Combinar la informació de múltiples models geològics, geofísics i/o geoquímics proporciona models finals més precisos i fiables. Com a primer pas, es va decidir investigar l'aplicació de la tècnica de la lògica difosa a la classificació de dades de sondeigs.

La publicació, titulada “Fuzzy logic determination of lithologies from well log data: application to the KTB project dataset (Germany)” i publicada a la revista indexada *Surveys in Geophysics*, detalla una metodologia d'inferència basada en la lògica difosa, desenvolupada i aplicada a un conjunt de dades del projecte KTB (Alemanya). Les dades del pou principal es van classificar en base a la informació de les dades del pou pilot.

L'objectiu d'aplicar un sistema d'inferència difosa a la classificació litològica de dades de sondeigs és, essencialment, gestionar la incertesa inherent a la diferenciació de roques en base a valors de propietats físiques. Les distribucions de valors sovint es solapen i és complicat classificar una roca en base a criteris lògics booleans. El concepte de *grau de pertinença* permet assignar valors de *confiança de classificació* entre 0 (poca) i 1 (molta) als valors de cada propietat física. Aquests, un cop combinats en un indicador final, permeten decidir quina roca és la més plausible per a cada dada de la diagrfia.

El sistema automàtic desenvolupat en aquest treball, permet reduir el cost d'exploració, tot proporcionant informació sobre les litologies del subsòl i estalviant d'aquesta manera l'extracció de testimonis.

Fuzzy Logic Determination of Lithologies from Well Log Data: Application to the KTB Project Data set (Germany)

David Bosch · Juanjo Ledo · Pilar Queralt

Received: 15 March 2012 / Accepted: 24 May 2013 / Published online: 14 June 2013
© Springer Science+Business Media Dordrecht 2013

Abstract Fuzzy logic has been used for lithology prediction with remarkable success. Several techniques such as fuzzy clustering or linguistic reasoning have proven to be useful for lithofacies determination. In this paper, a fuzzy inference methodology has been implemented as a MATLAB routine and applied for the first time to well log data from the German Continental Deep Drilling Program (KTB). The training of the fuzzy inference system is based on the analysis of the multi-class Matthews correlation coefficient computed for the classification matrix. For this particular data set, we have found that the best suited membership function type is the piecewise linear interpolation of the normalized histograms; that the best combination operator for obtaining the final lithology degrees of membership is the fuzzy gamma operator; and that all the available properties are relevant in the classification process. Results show that this fuzzy logic-based method is suited for rapidly and reasonably suggesting a lithology column from well log data, neatly identifying the main units and in some cases refining the classification, which can lead to a better interpretation. We have tested the trained system with synthetic data generated from property value distributions of the training data set to find that the differences in data distributions between both wells are significant enough to misdirect the inference process. However, a cross-validation analysis has revealed that, even with differences between data distributions and missing lithologies in the training data set, this fuzzy logic inference system is able to output a coherent classification.

Keywords Fuzzy logic · Lithofacies · Well log · Petrophysics · KTB boreholes

Electronic supplementary material The online version of this article (doi:10.1007/s10712-013-9242-2) contains supplementary material, which is available to authorized users.

D. Bosch (✉) · J. Ledo · P. Queralt
Departament de Geodinàmica i Geofísica, Facultat de Geologia, Universitat de Barcelona, C/Martí i Franquès, s/n, 08028 Barcelona, Spain
e-mail: dbosch@ub.edu

1 Introduction

Facies identification from wire-line logs has usually been carried out by experts, either by visual inspection or with the aid of cross-plotting, although this is an arduous and slow task (Saggaf and Nebrija 2003). Hence, in order to automate the process, several techniques have been adapted and developed, such as principal component analysis (Wolff and Pelissier-Combescure 1982), discriminant-factor analysis (Busch et al. 1987; Delfiner et al. 1987), self-organizing maps (Baldwin et al. 1990; Zhang et al. 1999; Chang et al. 2002), back-propagation feed-forward neural networks (Rogers et al. 1992; Kapur et al. 1998; Benaouda et al. 1999), competitive networks (Saggaf and Nebrija 2000), the earlier expert systems (Davis et al. 1981; Weiss and Kulikowski 1982; Bonnet and Dahan 1983; Einstein et al. 1990) and the recent support vector machines (Al-Anazi and Gates 2010).

The facies determination problem entails some important issues to be considered—data are intrinsically vague, imperfect and uncertain (Saggaf and Nebrija 2003). Handling uncertainty is what fuzzy logic has to offer. Proposed by Zadeh (1965), it is one of the most intuitive mathematical constructions specifically designed for dealing with complicated systems in a simple and elegant way. Conventional techniques try to minimize or ignore the inherent error in a measure, but fuzzy logic asserts that there is useful information in this error and takes advantage of it (Bárdossy and Fodor 2001; Cuddy and Glover 2002).

During the past two decades, several authors have used fuzzy logic for lithology prediction with remarkable success (Toumani et al. 1994; Imamura 1994; Imamura and Nakayama 1997; Cuddy 2000; Cuddy and Glover 2002; Saggaf and Nebrija 2003; Hsieh et al. 2005; Bagheri and Biranvand 2006; Ilkhchi et al. 2006; Dubois et al. 2007; Khaxar et al. 2007; Akinyokun et al. 2009; Rezaei and Movahed 2009). Amongst them, Cuddy (2000) developed a fuzzy mathematical technique based on the fitting of the property value distributions with Gaussian functions and used it to predict permeability and lithofacies in uncorred wells to improve well-to-well log correlations and 3-D geological model building. Saggaf and Nebrija (2003) expanded Cuddy's work by showing a multitude of options to consider when using fuzzy logic in lithology classification, such as the membership function type (e.g., triangular, trapezoidal, Gaussian, double Gaussian), the combination operator (e.g., fuzzy t -conorms when two properties are considered) or other indicators to aid in the interpretation (e.g., individual possibility, overall possibility or distinction). A complete review and state of the art of the application of fuzzy logic to earth sciences can be found in Sandham and Leggett (2004) and Wong et al. (2002).

In this paper, we have designed and implemented a specific procedure for automatic facies classification of well log data. Our technique predicts lithologies from a well log in a way that is similar to the method originally conceived by Cuddy (2000) and later modified by Saggaf and Nebrija (2003). However, it differs from the mentioned methods in that (1) piecewise linearly interpolated envolvents of normalized histograms are used for the construction of the membership functions instead of fitting them with unnormalized Gaussian functions (Cuddy 2000), (2) the fuzzy gamma combination operator is applied to obtain the final lithology degrees of membership instead of the unnormalized harmonic mean (Cuddy 2000) or the fuzzy algebraic sum (Saggaf and Nebrija 2003), (3) an “unknown” class, where doubtful samples are assigned, is included, and (4) two inference indicators that aid the user in the assessment of the classification reliability are computed, based in Saggaf and Nebrija (2003). Besides, the most important feature of our approach is the analysis of the multiclass Matthews correlation coefficient (Gorodkin 2004), a performance index that if computed systematically allows to determine the best system configuration (i.e. membership function type, combination operator and set of properties).

We have tested the technique with data from a public data set coming from a metamorphic terrane in Germany, obtained under the framework of the KTB project. As far as we know, this is the first time that fuzzy logic has been applied to the KTB data set for lithofacies classification, thus complementing the previous studies carried out on the same data set, either by using only neural networks or by using a combination of techniques (Maiti et al. 2007; Maiti and Tiwari 2009, 2010).

The following pages are organized into four sections. Section 2 situates and describes the geology of the KTB drilling site. Section 3 details the steps for lithology classification using fuzzy logic and discusses some relevant system characteristics. Section 4 contains the results of the application of the developed program to the KTB data set. The main conclusions of this work are drawn in Section 5.

2 The KTB Project

The German Continental Deep Drilling Program KTB (Emmerman and Lauterjung 1997) is an extension of the work started by the Ocean Drilling Program (ODP) to the continental crust. The KTB project data set is one of the most complete data sets publicly available to the scientific community, and it is optimal for testing and comparing interpretations and classification techniques. An up-to-date description of the project is given in Bram et al. (2009).

The drill site is located on the western flank of the Bohemian Massif about 4 km east of the Franconian line (a major fault system) and lies at the boundary of two major tectono-stratigraphic Variscan units in Central Europe—the Saxothuringian and Moldanubian (see Fig. 1). Two boreholes were drilled, a pilot hole (Vorbohrung or VB for short), 4,000 m deep, and a main hole (Hauptbohrung or HB), 9,101 m deep. The property logs are complete and continuous for the whole pilot hole (from 28 to 4,000 m deep) and from 3,000 to 6,000 m deep in the main hole, thus providing the well sections that can be used for testing our technique. A total of 26,069 data points were collected from the pilot hole and 19,727 from the used section of the main hole. After the removal of data points with unrealistic log values or missing readings (i.e. points with a value of −999.25 in one or more properties), 25,344 data points were retained from the pilot hole and 19,720 from the main hole. The interval between two adjacent data points is 0.1524 m.

The geological section crossed by the main hole is shown in Fig. 2. The most important rock types drilled in the KTB holes are as follows (Pechinig et al. 1997): biotite paragneiss (Bt-pgn), hornblende gneiss (Hbl-gn), potassium-feldspar gneiss (Kfs-gn), amphibolite (Amph), metagabbro (Mgb), ultramafite (Um), aplite (Apl) and lamprophyre (Lamp).

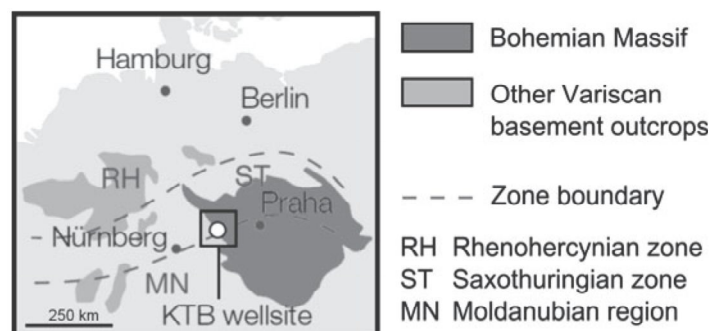
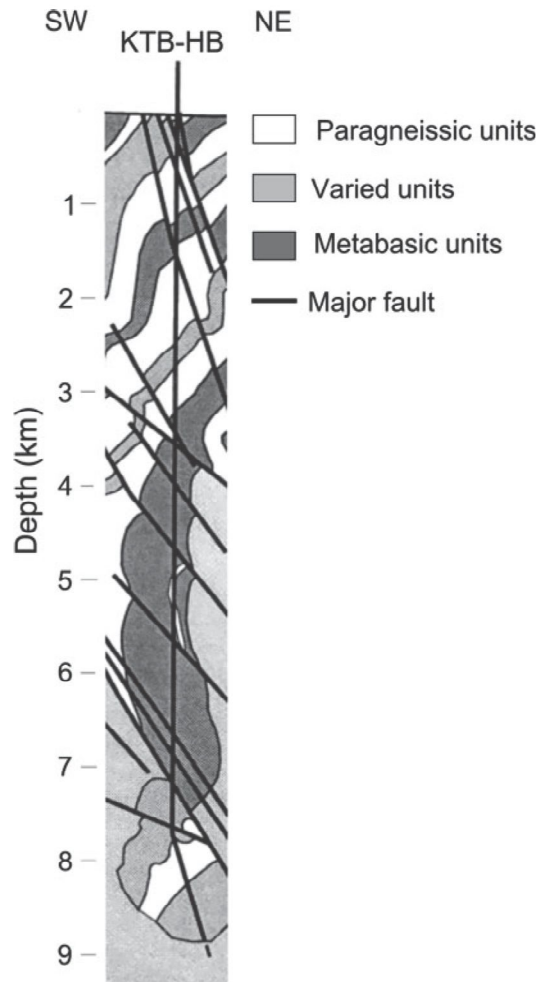


Fig. 1 Geological location of the KTB drillsite. Modified from Bram et al. (2009)

Fig. 2 Geological SW–NE sketch section through the main hole. Modified from Emmerman and Lauterjung (1997). Paragneissic units come from a turbiditic sequence of greywackes and pelitic greywackes. The varied sequences are comprised of an alternation of massive garnet amphibolites, fine-grained banded amphibolites with layers of calcsilicates and marbles, hornblende-biotite gneisses and paragneisses. They constitute a metamorphosed volcano-sedimentary association. The metabasic units consist of coarse- and fine-grained garnet-bearing amphibolites, massive metagabbros with relict ophitic textures, and thin layers of mafic and ultramafic metacumulate rocks, with alternations of hornblende gneiss. They show enriched and normal MORB compositions



Lithology from the pilot hole was annotated by human experts through core sample examination and geochemical analyses, while lithology from the main hole was inferred by automated well log analysis. Its electrofacies (Serra 1986) are characterized by at least eight properties (Pechinig et al. 1997): bulk density (RHOB), spectral gamma-ray (SGR), p-wave velocity (DTCO), neutron porosity (NPHI), thorium content (THOR), potassium content (POTA), weight percentage of aluminium (WAL) and weight percentage of iron (WFE).

3 Lithological Classification Using Fuzzy Logic

The global scheme of fuzzy lithological classification is outlined in Fig. 3. In short, a vector consisting of several measured property values at a certain depth from a *test* well log will be automatically assigned to a rock type using a previously trained fuzzy inference procedure. The classification will be carried out for all the log data points in order to obtain a complete lithological column. The MATLAB code is provided as electronic supplementary material.

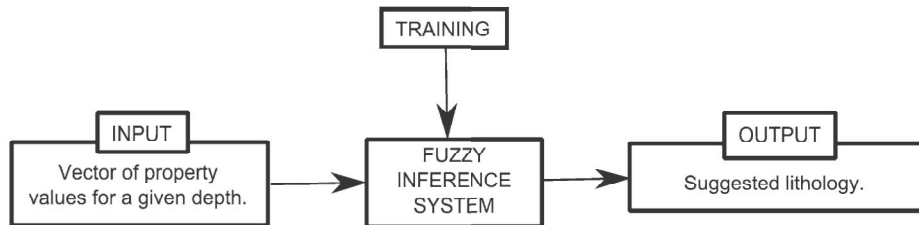


Fig. 3 Outline of the general process of lithology classification using fuzzy logic. The input is a well log coming from the test well, that goes through the inference engine, which has been previously trained with some a priori information

The training of the system must be based on some information that will support its future decisions. The a priori knowledge is usually a manually classified well log from a sufficiently nearby well (the *training* well) so that we can expect some degree of similarity between it and the test well. In our case, the training well was the pilot hole and the test well was the main hole. The lithology of the test well was already known because we wanted to investigate the effectiveness of our fuzzy inference system.

3.1 Degrees of Membership

The key concept of fuzzy logic is called *degree of membership* (abbreviated DoM from now on) and was introduced by Zadeh (1965). The DoM of an object to a set is a real number between 0 and 1 that quantifies the relative degree of truth of the statement “this object belongs to that set.” In the particular case of lithofacies classification, our objects are the data points (experimental measures) that constitute a well log, and our sets are the possible rock classes from which the measurements could come. If a log reading of bulk density was 2.3 g/cm^3 , an interpreter could say that it is *highly representative* of the class of shales, but it is *unlikely* to be obtained when measuring bulk density of a limestone. Moreover, it is also *very possible* to come from a sandstone (Fig. 4). These “qualitative

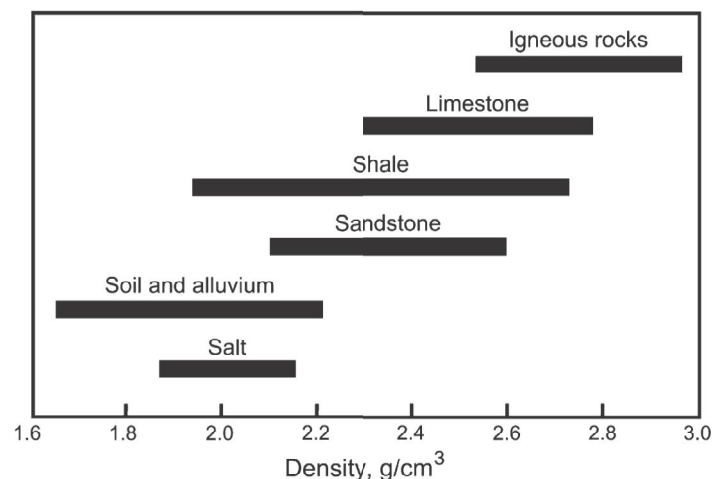


Fig. 4 Eighty per cent bulk density value ranges of various kinds of rocks. Modified from Grant and West (1965)

likelihoods” for that particular value can be translated (i.e. *fuzzified*, in fuzzy logic terminology) into numerical membership values. For instance, we could subjectively state that the density value of 2.3 g/cm^3 has a DoM of 0.85 to the class of shales, a DoM of 0.05 to the class of limestones and a DoM of 0.90 to the class of sandstones. A mathematical function that assigns a DoM to an object in respect to a particular set is called a *membership function* (Zadeh 1965).

3.2 Membership Functions

There is no standard way to build membership functions, although they should be based on the already available a priori knowledge. Cuddy (2000) used unnormalized Gaussian

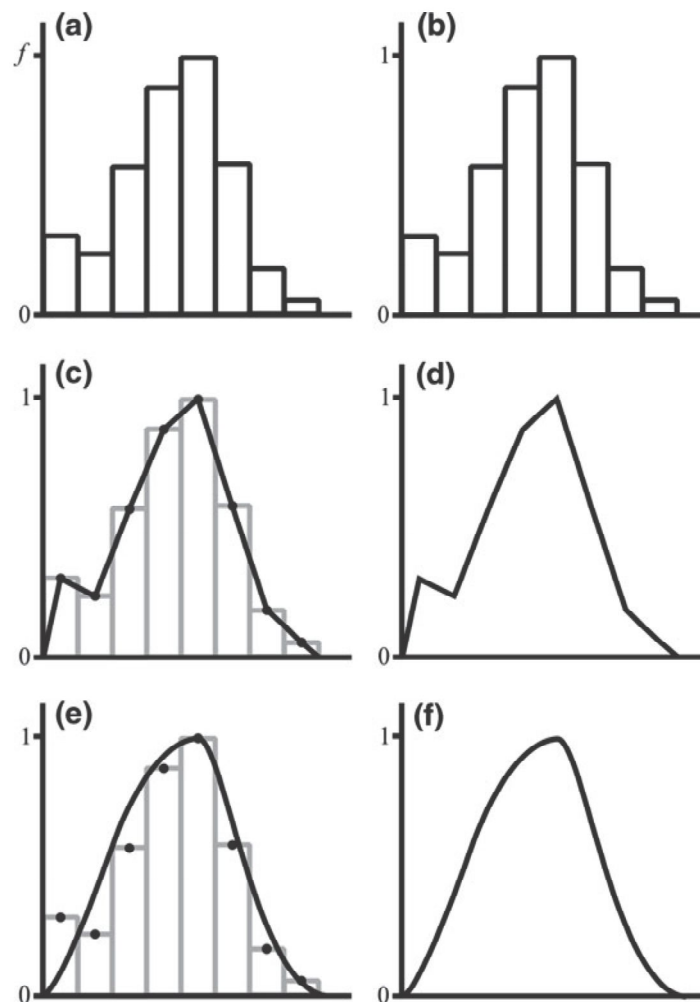
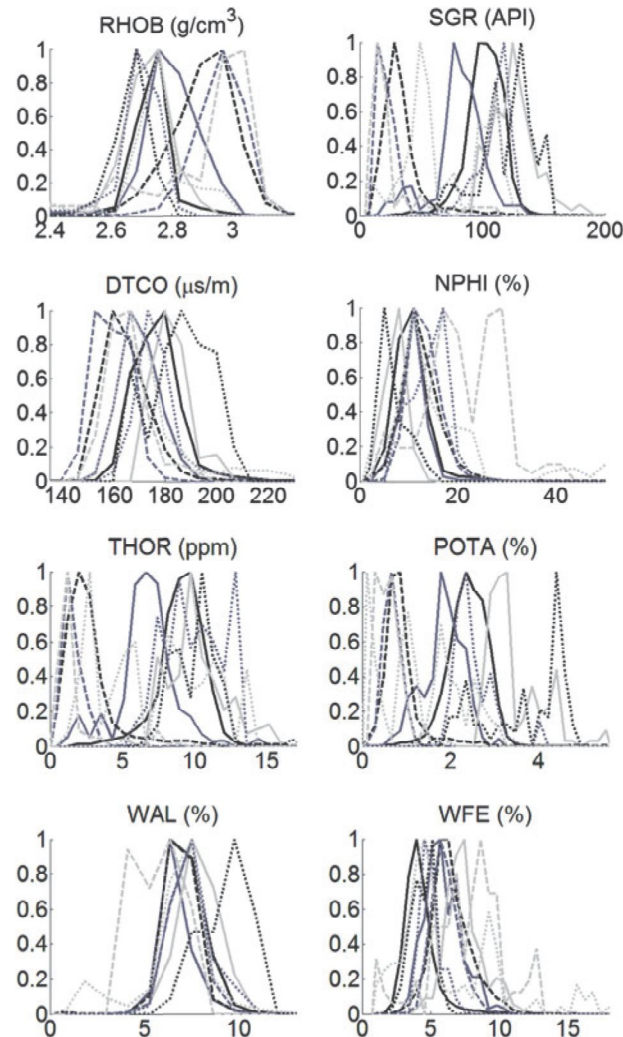


Fig. 5 Two possible membership construction processes. **a** Start with a property values histogram. **b** Divide each frequency bin by the highest frequency value. **c** Linearly interpolate the frequency values (taking the midpoint of each bin as the x coordinates) to **d** keep the definitive shape of the membership function, or **e** least-squares fit the envelope with an unnormalized double-Gaussian to **f** obtain a smoother function

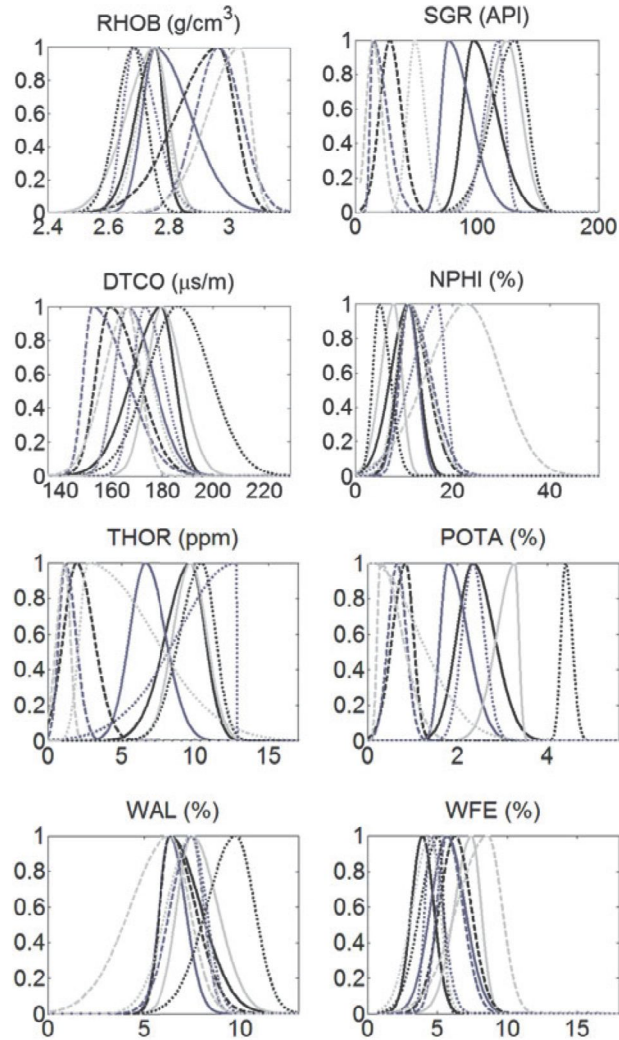
Fig. 6 Plots of the piecewise linear membership functions obtained from the training well data. There are 30 bins for each histogram



functions assuming a normal distribution of data. Saggaf and Nebrija (2003) pointed out that there exist a variety of membership function types such as triangular, trapezoidal, Gaussian or double-Gaussian functions. In this work, as well as in Saggaf and Nebrija (2003), the point of departure is the set of histograms of the property values for each rock class in the training well. As triangular and trapezoidal functions are in general too simple to capture the shape of histograms, we have considered two membership function types: piecewise linear (obtained by linear interpolation) and unnormalized double Gaussian (obtained through least-squares fitting).

Consider a frequency histogram of values of a physical property for a particular lithology in the training well (Fig. 5a). We normalize the histogram such that its frequency values are now comprised between 0 and 1 (Fig. 5b). We can interpolate linearly between the frequency values—taking the midpoint of each bin as the x-coordinate for each normalized frequency value (Fig. 5c), thus obtaining a piecewise continuous function

Fig. 7 Plots of the unnormalized double-Gaussian membership functions obtained from the training well data. There are 30 bins for each histogram



(Fig. 5d), or we can fit the envelope with an unnormalized double-Gaussian function (Fig. 5e), obtaining a smoother function (Fig. 5f). The image of any of the two functions can be interpreted as the DoM of the property values (its domain) to that lithology class, so they both can be considered membership functions.

The mathematical expression of the unnormalized double-Gaussian function is:

$$g(x; \mu, \sigma_1, \sigma_2) = \begin{cases} e^{-\frac{(x-\mu)^2}{2\sigma_1^2}} & \text{if } x \leq \mu \\ e^{-\frac{(x-\mu)^2}{2\sigma_2^2}} & \text{if } x > \mu \end{cases} \quad (1)$$

where μ corresponds to the midpoint of the highest populated bin and σ_1 and σ_2 are the standard deviations of the left and right sides of the function, respectively. An interesting feature of this function is that it can take into account the skewness of the distributions. For the least-squares fitting procedure, we have used the *fminbnd* Matlab built-in function to

find the optimal standard deviations that minimize the square root of the sum of the squared residuals:

$$R = \sqrt{\sum_{i=1}^n [\tilde{h}_i - g(x_i; \mu, \sigma_1, \sigma_2)]^2}, \quad (2)$$

where $\tilde{h}_i$ is the i th bin frequency of the normalized histogram, x_i is the midpoint of the i th bin and n is the number of bins. It is recommended to always perform a visual inspection of the fitting and adjust the function parameters manually if necessary.

We have built the membership functions for the eight main lithology classes plus another class called “other” that includes the minority classes such as marble, diorite, pegmatoid, schist or calc-silicate rocks. Below we show the membership functions for the lithologies and properties of the training well. Figure 6 presents piecewise linear functions, while unnormalized double-Gaussian functions are depicted in Fig. 7.

In Fig. 7, it can be seen that, indeed, in some cases, the unnormalized double-Gaussian membership functions add “unknown information” (e.g. the “other” and lamprophyre lithologies for the THOR property), because we are adjusting a histogram that does not fully show a Gaussian behaviour. This also happens with piecewise linear functions in the intervals between histogram bins, where information is interpolated. However, the degree of uncertainty is generally lower.

As a final comment on membership functions, when there is a small amount of data or they are of low quality, piecewise linear membership functions become less reliable because they develop unrealistic peaks and valleys due to lack of data coverage. In these situations, an alternative procedure is advised, such as seeking new sources of a priori knowledge or using other functions.

3.3 Combination Operators

Consider a case with two possible output lithologies, 1 and 2, and a well log consisting of two recorded properties, A and B. For a given depth, the input vector contains two property values (say a and b). The first step is to obtain the DoM of each property value for all lithologies. This is done by evaluating the corresponding membership functions at the given input values. In the example shown in Fig. 8, for lithology 1, we get a DoM of 0.5 for property A and a DoM of 0.6 for property B. For lithology 2, we read a DoM of 0.3 for property A and a DoM of 0.8 for property B. On the one hand, one could think that lithology 2 is best represented by data because it shows the maximum individual DoM. However, at the same time, it has also the minimum DoM, indicating that the value a is not very representative of lithology 2 for property A. On the other hand, lithology 1 appears somewhat average but more consistent, as both DoMs are fairly similar. We want to obtain a final DoM for each lithology, so that we can decide which lithology is best represented by the data. As every DoM contains information, our final lithology DoM has to be based on some combinatorial operation between the individual property DoMs. In this work, we have looked at eight different combination operators, namely arithmetic mean, geometric mean, harmonic mean, normalized Euclidean norm, fuzzy AND, fuzzy OR, fuzzy algebraic sum and fuzzy gamma with three values of gamma. They are briefly reviewed below. Table 1 shows the application of each operator to the example of Fig. 8.

Arithmetic mean: this operator treats the DoMs additively and gives the same importance to all values. The output is comprised between the largest and the smallest DoM. It is equally sensitive to low or high DoMs.

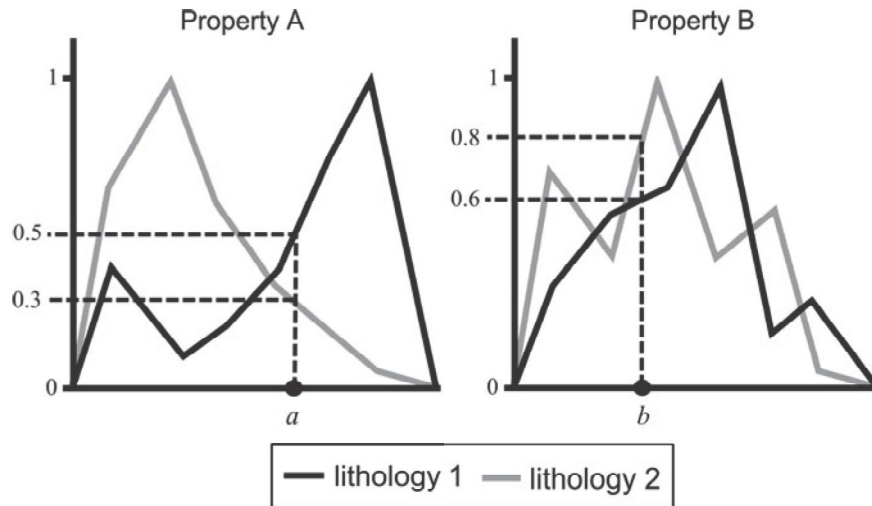


Fig. 8 By evaluating the corresponding membership functions at the given input property values a and b , we can obtain its DoMs for each considered lithology

$$\text{DoM} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \mu_i, \quad (3)$$

Geometric mean: this operator combines the DoMs multiplicatively. Therefore, it is very sensitive to low values and not so sensitive to high DoMs, since the highest possible DoM is one. If one DoM is zero or very close to zero, the output value will be zero or very low, respectively. It always outputs a value lower than the arithmetic mean operator.

$$\text{DoM} = \left(\prod_{i=1}^n \mu_i \right)^{\frac{1}{n}}, \quad (4)$$

Harmonic mean: this operator pays little attention to high DoMs and is most sensitive to low values. It also outputs the lowest value of the three mean operators. The DoMs are combined in a different way (i.e. the inverse of the sum of inverses).

$$\text{DoM} = n \cdot \left(\sum_{i=1}^n \frac{1}{\mu_i} \right)^{-1}, \quad (5)$$

Normalized Euclidean norm: the set of property DoMs can be viewed as a vector in the space of membership values. The Euclidean norm of that vector is also a measure of how far is the point of DoMs from the point of minimum membership, that is, the point $(0, 0, \dots, 0, 0)$. The factor $n^{-1/2}$ rescales the maximum possible value of the operator to 1. Its values are comprised between the arithmetic mean and the maximum DoM.

$$\text{DoM} = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n \mu_i^2}{n}}, \quad (6)$$

Fuzzy AND: it corresponds to the minimum value amongst the set of property DoMs. This assumes that the key information is given by the least representative DoM. Therefore, it is a conservative, restrictive operator.

$$\text{DoM} = \min\{\mu_i\}, \quad (7)$$

Fuzzy OR: this operator takes the maximum value amongst the set of property DoMs as the most informative. It can be misleading when the difference between two lithologies actually resides in the low DoM values.

$$\text{DoM} = \max\{\mu_i\}, \quad (8)$$

Fuzzy Algebraic Sum: the result of this operator is always greater than or equal to the maximum DoM. It is most sensitive to high DoM values. The complementary of the fuzzy algebraic sum is the fuzzy algebraic product, that is, the product of all the DoMs, and it is always less than or equal to the minimum DoM. We want to note that the fuzzy algebraic product operator is analogue to the geometric mean and therefore we have not included it in our analysis.

$$\text{DoM} = 1 - \prod_{i=1}^n (1 - \mu_i), \quad (9)$$

Fuzzy Gamma: this operator is a combination between the fuzzy algebraic sum and the fuzzy algebraic product operators, controlled by the parameter γ which is chosen in the range (0, 1). The closer γ is to one, the more “increasing” is the output (i.e. it approaches the fuzzy algebraic sum definition). The closer γ is to zero, the more “decreasing” is the output (i.e. it approaches the fuzzy algebraic product definition). The choice of γ is arbitrary. We have chosen three values of γ for the training of the system, $\gamma = 0.1$, $\gamma = 0.5$ and $\gamma = 0.9$. When $\gamma = 0.1$, the fuzzy gamma operator behaves very similarly to the fuzzy algebraic product but with a small influence from the fuzzy algebraic sum. When $\gamma = 0.5$, an equal contribution between both operators is required. Finally, when $\gamma = 0.9$, the fuzzy gamma acts very close to the fuzzy algebraic sum but with a small influence from the fuzzy algebraic product.

$$\text{DoM} = \left[1 - \prod_{i=1}^n (1 - \mu_i) \right]^\gamma \cdot \left[\prod_{i=1}^n \mu_i \right]^{1-\gamma}, \quad (10)$$

Table 1 allows for a comparison between the final classifications depending on the combination operator. To begin with, the arithmetic mean shows an ambiguity in the classification, as both final DoMs are equal. If we had chosen the arithmetic mean as the combination operator, the sample would have been classified as “Unknown.” The geometric mean would have led to classify the sample as lithology 1, being its final DoM very close to the arithmetic mean. A similar thing happens with the harmonic mean, but in this case it is clear that this operator is most sensitive to small individual DoMs, as is the case for lithology 2. The normalized Euclidean norm operator favours lithology 2 based on the fact that the point (0.3, 0.8) is farther from the origin than the point (0.5, 0.6). If we paid attention only to the smallest DoMs, the fuzzy AND operator would have chosen lithology 1 as the most represented by data, given that the value a indicates that the sample is not likely to belong to lithology 2. The opposite reasoning made by the fuzzy OR operator would lead us to pick lithology 2 as the best represented candidate. Even though lithology 2 presents one low individual DoM, the output from the fuzzy algebraic sum is greater than for lithology 1. Finally, the fuzzy gamma operator would point to lithology 1 for $\gamma = 0.1$ and $\gamma = 0.5$ and to lithology 2 when $\gamma = 0.9$. In the first two cases, the low individual DoM of lithology 2 has a strong effect on the final DoM due to the fuzzy algebraic product factor. In the last case, as the influence of the fuzzy algebraic sum is greater, the final DoM of lithology 2 overcomes that of lithology 1.

Table 1 Final lithology DoMs of the example case from Fig. 8 for various combination operators

Combination operator	Mathematical expression	Final lithology DoM	
		Lithology 1	Lithology 2
Arithmetic mean	$\text{DoM} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \mu_i$	0.550	0.550
Geometric mean	$\text{DoM} = \left(\prod_{i=1}^n \mu_i \right)^{\frac{1}{n}}$	0.548	0.490
Harmonic mean	$\text{DoM} = n \cdot \left(\sum_{i=1}^n \frac{1}{\mu_i} \right)^{-1}$	0.546	0.436
Normalized Euclidean norm	$\text{DoM} = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n \mu_i^2}{n}}$	0.552	0.604
Fuzzy AND	$\text{DoM} = \min\{\mu_i\}$	0.500	0.300
Fuzzy OR	$\text{DoM} = \max\{\mu_i\}$	0.600	0.800
Fuzzy algebraic sum	$\text{DoM} = 1 - \prod_{i=1}^n (1 - \mu_i)$	0.800	0.860
Fuzzy gamma	$\text{DoM} = \left[1 - \prod_{i=1}^n (1 - \mu_i) \right]^\gamma \cdot \left[\prod_{i=1}^n \mu_i \right]^{1-\gamma}$		
	$\gamma = 0.1$	0.331	0.273
	$\gamma = 0.5$	0.490	0.454
	$\gamma = 0.9$	0.725	0.757

Recall that for lithology 1, $\mu_1 = 0.5$ and $\mu_2 = 0.6$. For lithology 2, $\mu_1 = 0.3$ and $\mu_2 = 0.8$

3.4 Inference Indicators

Sometimes, if there is a high degree of overlap between some or all of the membership functions, the final DoMs can be very close and thus doubting between those lithologies is reasonable. For instance, if three final lithology DoMs are 0.2, 0.86 and 0.88, one could argue that the difference between the second and the third DoM is not big enough to choose the third lithology. In order to detect these doubtful sections, a file containing the relative difference between the highest and the second highest final lithology DoMs is generated. This way the user is able to decide whether to trust or not the final classification. This indicator is similar to the “distinction” indicator from Saggaf and Nebrija (2003). In the last example, the relative difference would be $(0.88 - 0.86)/0.88 = 0.023$. This small relative difference value indicates that, for the considered data point, the program doubts between at least two lithologies. In these cases, care should be taken when interpreting the suggested classification.

Furthermore, it is useful to track the highest final lithology DoM (i.e. that of the “winner” lithology) along a well, because it could be very low in some sections and therefore some attention ought to be paid. For instance, if the final DoMs were 0.01, 0.02 and 0.08, one could decide not to rely on the classification suggested by the program because the highest DoM is indeed very low, even though the relative difference is still high (0.75). This indicator is the same as the “overall possibility” in Saggaf and Nebrija (2003).

3.5 Training

So far, several options have been presented to the user, namely (1) what kind of membership function to use (e.g., piecewise linear or unnormalized double Gaussian) and (2) the choice of

combination operator (e.g., arithmetic mean, fuzzy gamma, etc.). However, there is another issue that can be considered, namely whether all the available properties are relevant for the classification or maybe there exists a non-favourable statistical interference between properties (e.g., due to membership function overlapping) such that the final classification becomes worse than if less properties were used. To address these issues, we propose to carry out a performance analysis for every possible system configuration from the above-mentioned options and decide on the system characteristics that output the best classification for the training data set. This analysis will involve the execution of the program 5,100 times on the training data set, that is, 2 membership function types by 10 combination operators by 255 possible sets of properties (i.e. the number of all possible subsets of eight properties excluding the empty set: $2^8 - 1 = 255$). Each execution lasted 30 s on average on a 1.66 GHz laptop with 1 GB RAM memory using Windows 32 bits.

When executing our fuzzy logic classification program, a square matrix called “classification matrix” C is built. Its dimensions are $(n + 1) \times (n + 1)$, n being the number of lithologies plus the “Unknown” class. Each element c_{ij} from C is the number of data points pertaining to the lithology i that have been classified as lithology j . The diagonal of C contains the number of correctly classified samples, while the off-diagonal is the region of wrongly classified samples.

We propose as a performance measure the Matthews correlation coefficient or MCC (Matthews 1975), which has been generalized for the multi-class problem by Gorodkin (2004). Its expression, in terms of the classification matrix, is:

$$\text{MCC} = \frac{\sum_{k,l,m=1}^n c_{kk}c_{ml} - c_{lk}c_{km}}{\sqrt{\sum_{k=1}^n \left[\left(\sum_{l=1}^n c_{lk} \right) \left(\sum_{f,g=1, f \neq k}^n c_{gf} \right) \right]} \sqrt{\sum_{k=1}^n \left[\left(\sum_{l=1}^n c_{kl} \right) \left(\sum_{f,g=1, f \neq k}^n c_{fg} \right) \right]}} \quad (11)$$

where c_{ij} is the element from the i th row and the j th column of C . The MCC falls inside the $[-1, 1]$ interval, where 1 is obtained only in a perfect classification output. A value of 0 is returned when all elements in the classification matrix are equal or when all elements are zero except for one column (all elements have been classified to be of one lithology). The extreme value of -1 is reached when all entries are zero but for two symmetrical elements c_{ij} and c_{ji} . For a discussion on the properties of MCC, we refer the reader to Jurman et al. (2012).

4 Results and Discussion

The whole fuzzy lithological training and classification process that we have presented in this work is summarized in Fig. 9. We want to note that this scheme has some resemblance with the so called expert systems, as it uses a “knowledge base” (the training well log data) and an “inference engine” to suggest a solution to the problem. However, this fuzzy logic methodology does not automatically modify its inference strategy to adapt to each type of problem. The performance analysis in the training of the system is an attempt to do it semi-automatically, using the reference lithology column as our “expert.”

The main lithologies in the KTB wells can be grouped into three lithological associations (Pechinig et al. 1997; Emmerman and Lauterjung 1997): Gneiss (includes biotite paragneiss, hornblende gneiss and potassium-feldspar gneiss), Metabasite (includes amphibolite, metagabbro and ultramafite) and Varied (includes aplite, lamprophyre and

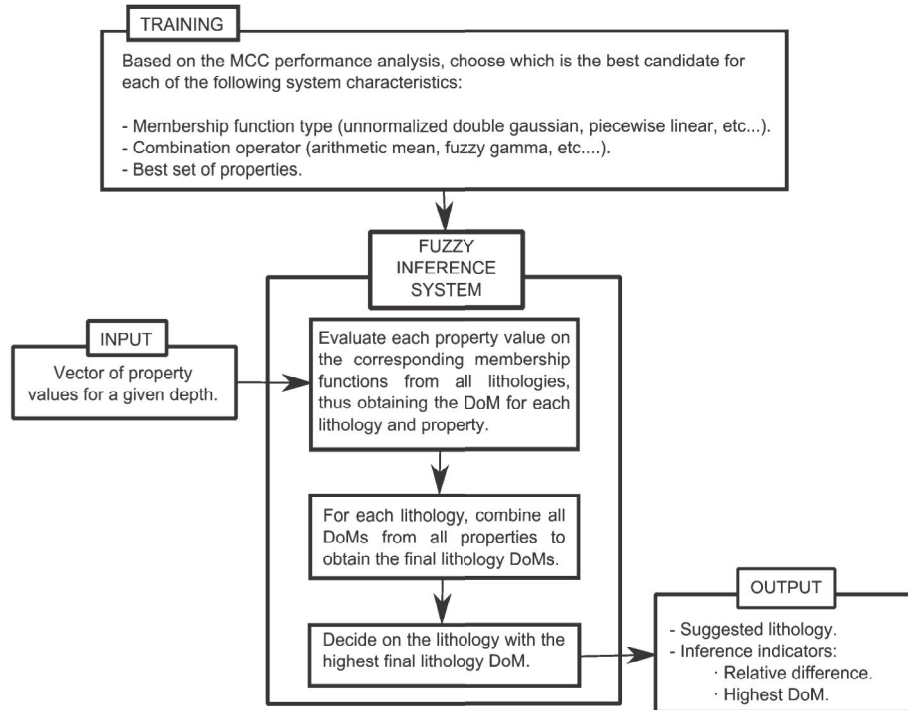


Fig. 9 Summary of the whole fuzzy lithological classification scheme

the “other” class). This division has also been used in other publications (Maiti et al. 2007; Maiti and Tiwari 2009, 2010). We have followed these authors when showing the lithological columns (Figs. 10, 11, 12, 13, 14), because, in its simplified form, they are easier to read and to compare with other KTB-related publications.

4.1 Training Results

In Table 2, the results of the performance analysis for the training of the inference system are presented. Recall that we wanted to investigate the optimum candidates for three system characteristics, namely the type of membership function, the combination operator and the set of considered properties.

In Table 2, it can be seen that the fuzzy gamma and the geometric mean operators are in general the best combination operators. Furthermore, it can be observed that the piecewise linear membership function type generally ensures a better performance than the unnormalized double-Gaussian function type, except for the harmonic mean and the fuzzy AND. We believe that unnormalized double-Gaussian membership functions show a lesser performance possibly due to the fitting procedure, which is not very robust when distributions differ from normality. Consequently, if membership functions significantly underestimate or overestimate DoMs in some intervals, wrong classifications are to be expected. On the one hand, the lowest MCC for both types of functions correspond to the fuzzy OR, indicating that the criterion of looking at the maximum DoM does not seem to be adequate for this data set. Furthermore, the second lowest MCC again for both function types is

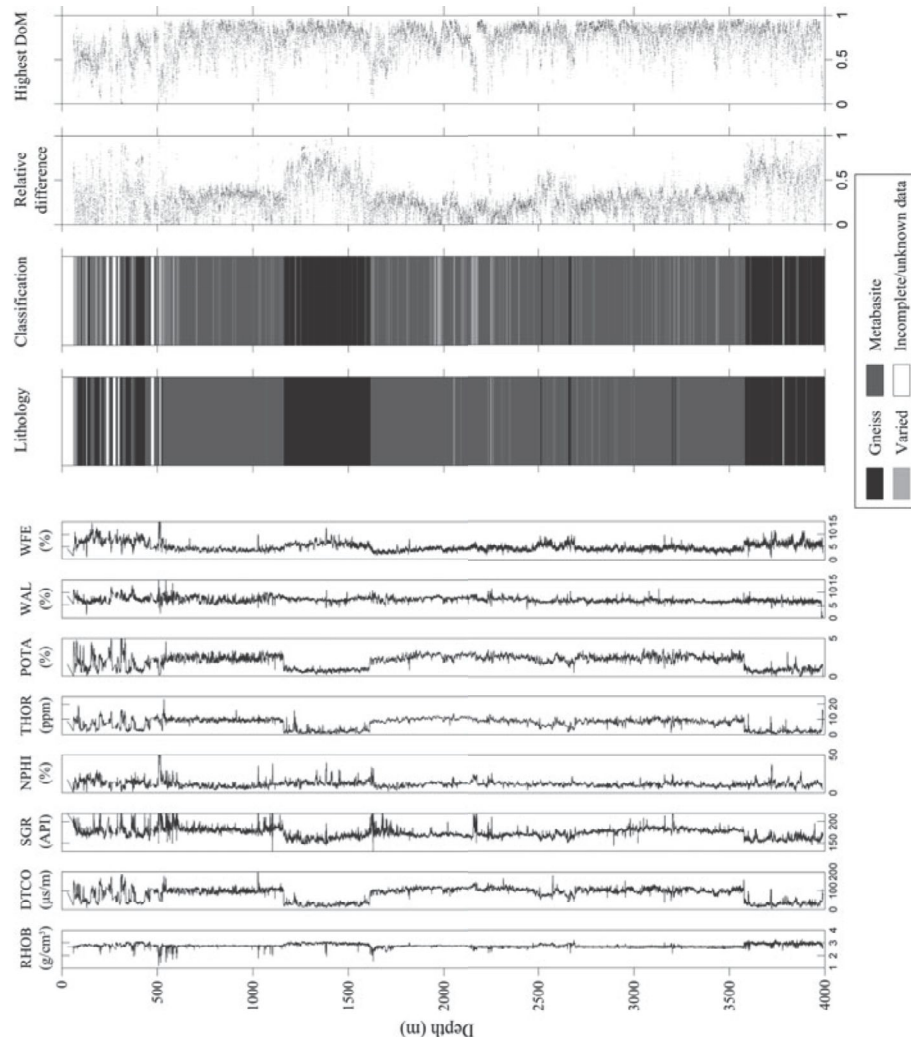


Fig. 10 Lithology column and inference indicators for the fuzzy classification of the training well log data

obtained by using the fuzzy algebraic sum operator, which is also an “optimistic” operator. We can conclude that, for this data set, and possibly for lithology classification using fuzzy logic, it is not advisable to choose a combination operator which does not pay attention to low individual DoMs, such as the fuzzy algebraic sum or the fuzzy OR. On the other hand, the highest obtained MCC (0.583) corresponds to the fuzzy gamma combination operator with $\gamma = 0.9$, using piecewise linear membership functions and considering all available properties. This last characteristic is consistent with the notion that, in general, the more available properties (dimensions), the more separability between classes. It is interesting to note that the MCC from the fuzzy gamma and the geometric mean are practically identical (variations are located in higher decimal places), except for $\gamma = 0.9$. The explanation of this observation is that more than 90 % of the samples have at least one individual DoM higher than 0.9 in the set of DoMs of the lithology with the highest final DoM. Hence, in

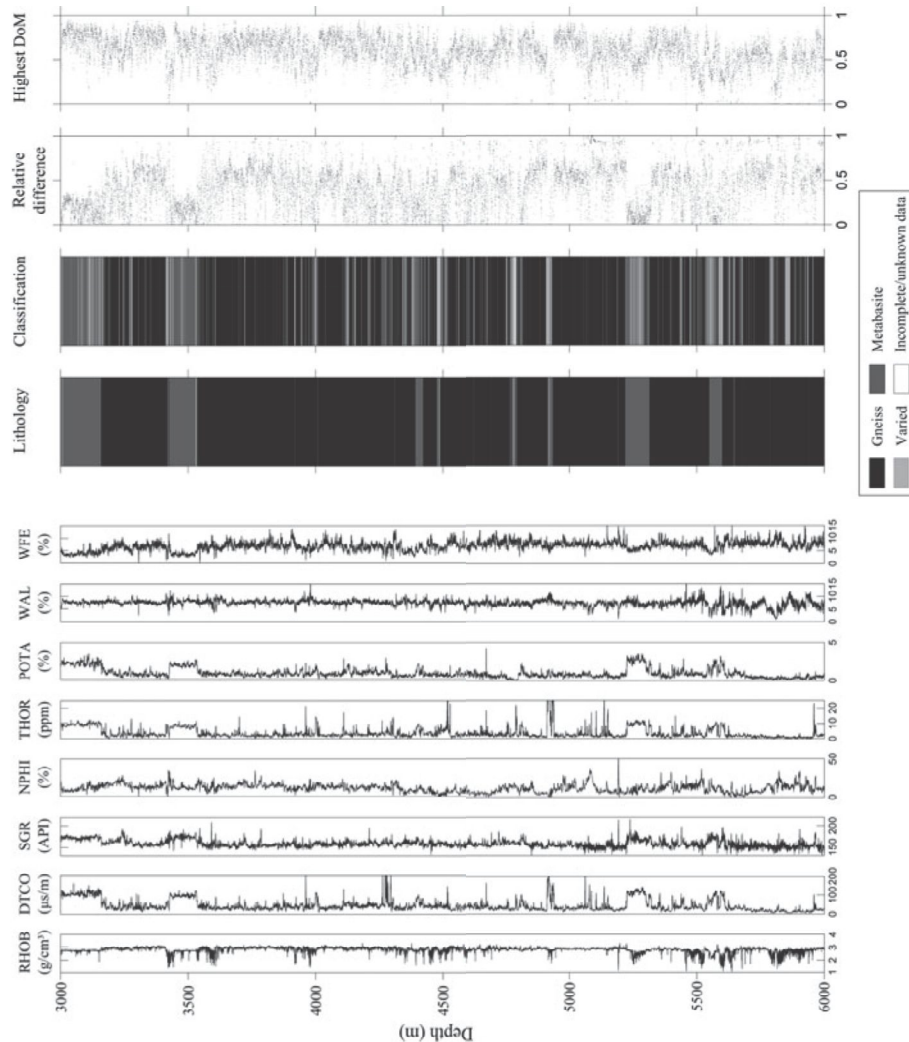


Fig. 11 Lithology column and inference indicators for the fuzzy classification of the test well log data

the calculation of fuzzy gamma, the fuzzy algebraic sum factor is very close to unity, making the fuzzy gamma expression analogous to the fuzzy algebraic product, which in turn is analogous to the geometric mean. This fact explains also why the fuzzy gamma results are also practically identical independently of gamma. However, as the number of decimal places shown is significant, choosing the fuzzy gamma operator with $\gamma = 0.9$ is an adequate option.

The overall accuracy of the classification is 75.3 % (Table 3). It is computed by dividing the number of correctly classified samples by the total number of samples. It can be observed that the given inference system shows some confusion between biotite paragneiss (which is the most abundant lithology), hornblende gneiss and lamprophyre, with the added preference to classify the less abundant lithologies (aplite, lamprophyre and “other”) as biotite paragneiss or hornblende gneiss (especially the lamprophyre class).

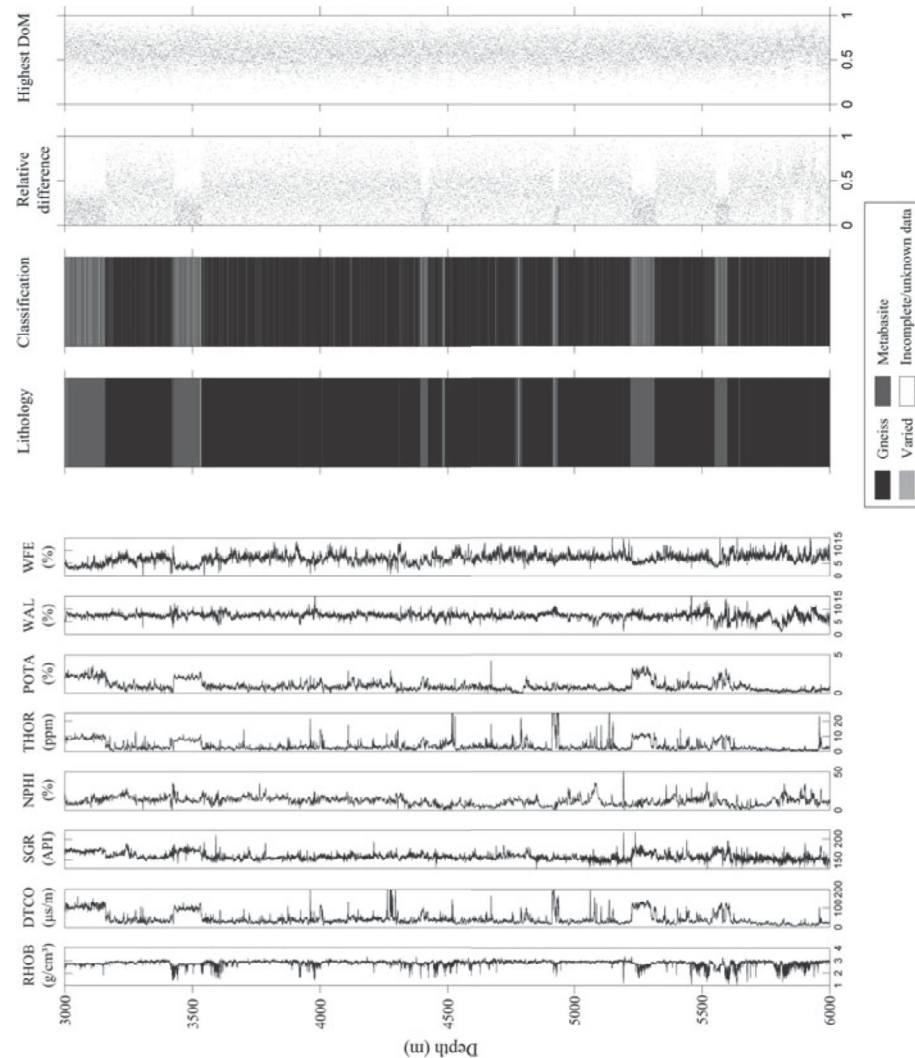


Fig. 12 Lithology column and inference indicators for the fuzzy classification of the synthetic well log data. Lithology abundances are those of the test well, but property value distributions are the same as in the training well

Furthermore, it cannot distinguish very well between amphibolite and metagabbro (particularly metagabbro). Finally, a significant amount of amphibolite samples are classified as “other.”

The classification results for the trained inference system are depicted graphically in Fig. 10, which shows the original log responses, the simplified lithology column, the simplified column derived from the classification suggested by our program and the two inference indicators (the relative difference and the highest DoM). Blank sections appearing in the lithology column are labelled “incomplete/unknown data” in the figure and correspond to the excluded points due to unrealistic log values or missing readings (i.e. points with a value of -999.25 in one or more properties). Data points classified as

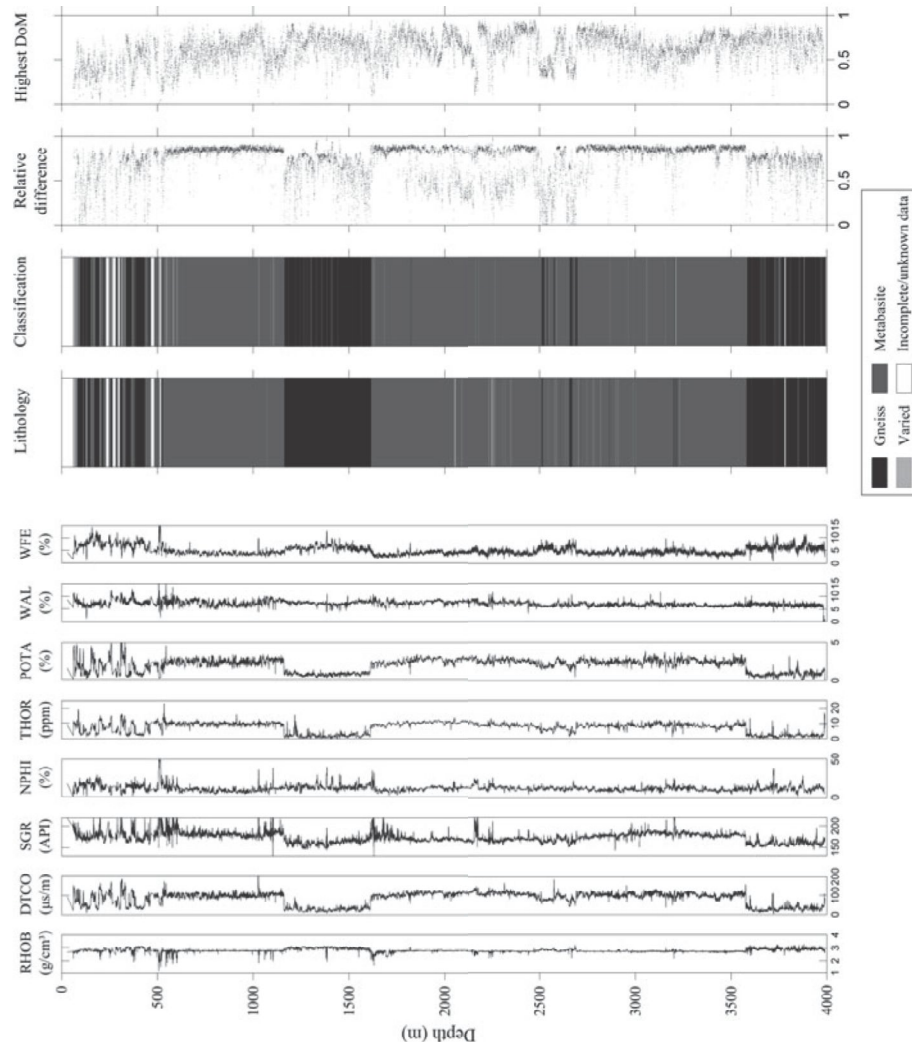
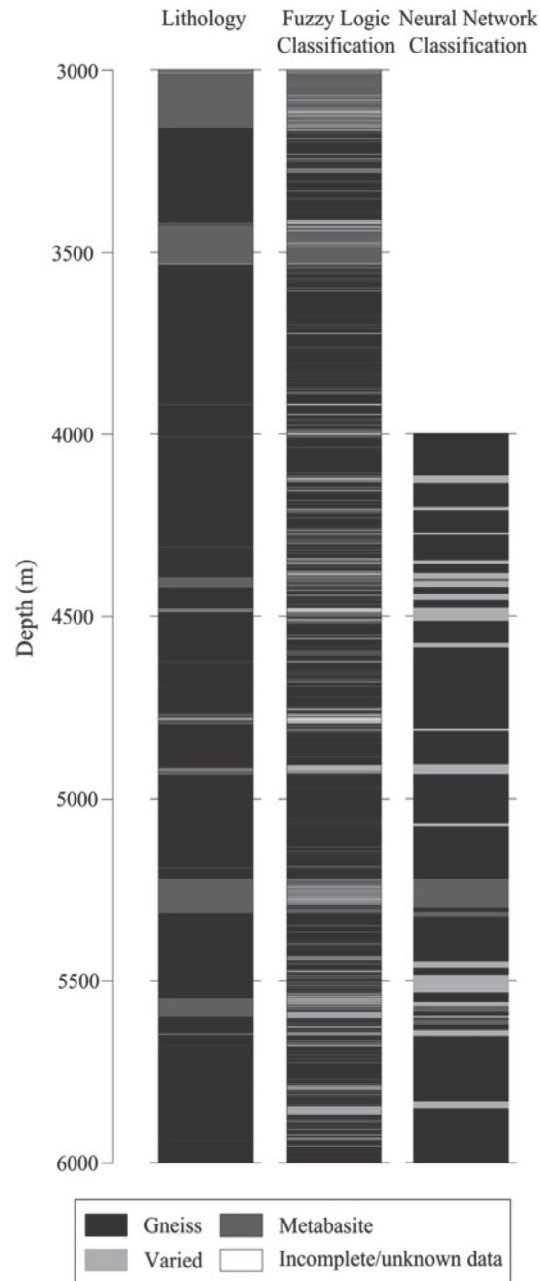


Fig. 13 Lithology column for the cross-validation analysis performed by training the system with the main hole data and applying the program to the pilot hole data

“unknown” are depicted also in white (note that in the reference lithology column these samples have its appropriate colour, such that there cannot be any confusion with “incomplete data” sections). In Fig. 10, it can be seen that the main lithological units are recovered (except some gneissic units in the upper part of the well). In the middle section, two Varied units are suggested (at 1,950 and 2,150 m deep, approximately), but their relative difference is very low, and the highest DoM drops at these units. This is an example of the usefulness of these two inference indicators. One should not trust these suggested units, as they are likely to be statistical artefacts due to the interaction between overlapping membership functions. Besides, we see that the highest DoM increases towards the bottom of the well (with some oscillations in the upper and middle sections) and that the relative difference is pretty low in the Gneiss units and it increases in

Fig. 14 Lithology columns for the neural networks classification of the test well log data (modified from Maiti and Tiwari 2010) and for the fuzzy logic inference system developed in this work



Metabasite units. This can be explained by the overlap of membership functions, which is generally lower in metabasic units than in gneissic lithologies (Fig. 6). The highest DoM lowest values are generally correlated with SGR peaks (e.g. at 500, 1,150, 1,650, 2,175 or 2,250 m deep) and in some cases with WFE peaks (e.g. at 2,500 and 2,650 m deep). Indeed, in Fig. 6, it can be read that these extreme values present very low DoMs.

Table 2 Performance analysis results for the different tested membership function types, combination operators and property sets, based on the Matthews correlation coefficient

Combination operator	Unnormalized double-Gaussian functions		Piecewise linear functions	
	Highest MCC	Associated properties ^a	Highest MCC	Associated properties ^a
Arithmetic mean	0.519	1 2 3 4 5 6 8	0.562	All
Geometric mean	0.565	1 2 3 4 6 8	0.582	All
Harmonic mean	0.551	1 2 3 4 6 8	0.544	1 2 3 4 6 7 8
Normalized Euclidean norm	0.479	1 2 4 5 6 8	0.538	1 2 4 5 6 7 8
Fuzzy AND	0.537	2 3 4 6 8	0.506	2 6 8
Fuzzy OR	0.387	2	0.428	2 5
Fuzzy algebraic sum	0.404	1 2 4 5 6 8	0.503	1 2 4 5 6 7 8
Fuzzy gamma				
$\gamma = 0.1$	0.565	1 2 3 4 6 8	0.582	All
$\gamma = 0.5$	0.565	1 2 3 4 6 8	0.582	All
$\gamma = 0.9$	0.565	1 2 3 4 6 8	0.583	All

^a Property number correspondence: 1: RHOB; 2: SGR; 3: DTCO; 4: NPHI; 5: THOR; 6: POTA; 7: WAL; 8: WFE

Table 3 Classification matrix for the fuzzy gamma operator (with $\gamma = 0.9$) using all properties with piecewise linear membership functions on the training well data

Lithology	Classified as									
	Bt-pgn	Hbl-gn	Kfs-gn	Amph	Mgb	Um	Apl	Lamp	Other	Unknown
Bt-pgn	14,092	1,232	108	198	4	10	129	1,045	579	2
Hbl-gn	92	350	7	46	2	1	0	4	24	0
Kfs-gn	3	0	149	0	0	0	4	0	0	0
Amph	95	213	39	3,605	664	317	11	14	590	3
Mgb	0	7	0	455	567	145	0	0	33	0
Um	2	1	0	14	5	85	0	0	11	0
Apl	19	2	2	0	0	0	63	1	1	0
Lamp	48	16	0	0	0	0	0	70	0	0
Other	37	10	0	8	0	0	0	5	102	3
Unknown	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0

Correct classifications are given in bold

4.2 Test Well Results

Table 4 shows the classification matrix for the test well data set. It can be observed that the lithology distribution differs substantially from the training data set. First, there are five lithologies (hornblende gneiss, potassium–feldspar gneiss, ultramafite, aplite and “other”) that do not appear in the test well. Secondly, the abundances are practically interchanged, such that this time the most abundant lithology is amphibolite. Indeed, the selected sections are not equivalent for they practically do not coincide in depth (recall that the test well section ranges from 3,000 to 6,000 m depth, while the training well section ranges from 28 to 4,000 m

Table 4 Classification matrix for the fuzzy gamma operator (with $\gamma = 0.9$) using all properties with piecewise linear membership functions on the test well data

Lithology	Classified as									
	Bt-pgn	Hbl-gn	Kfs-gn	Amph	Mgb	Um	Apl	Lamp	Other	Unknown
Bt-pgn	1,798	216	57	212	11	4	41	330	382	1
Hbl-gn	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Kfs-gn	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Amph	251	315	0	9,549	1,350	2,505	1	0	2,091	21
Mgb	9	0	0	85	150	223	0	0	72	19
Um	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Apl	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Lamp	5	3	0	0	0	0	0	1	18	0
Other	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Unknown	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0

Correct classifications are given in bold

depth). In addition, there are several structural features in the KTB (i.e. steeply dipping units, faults, folds) that can explain the difference in lithology abundances.

Figure 11 shows the original log responses, the simplified lithology column, the simplified column derived from the classification suggested by our program and the two inference indicators for the test well data set. The complete reference lithology column (which is available in the “lithological profiles” section in the KTB data website <http://www.icdp-online.org/sites/ktb/welcome.html>) included various intervals referred as “alternation,” being the intercalation of gneiss into amphibolite units and vice versa. As they were referred as gneiss predominant or amphibolite predominant, we considered each interval as Gneiss or Metabasite and expected the program to detect the finer alternations. These intervals are located at the following depths: 3,883–3,892 m, 3,922–3,950 m, 3,988–3,996 m, 4,106–4,165 m, 4,426–4,520 m, 4,594–4,618 m, 4,918–4,940 m, 5,306–5,320 m, 5,540–5,554 m and 5,576–5,590 m.

In Figure 11, it can be seen that the main lithological units are fairly well delimited, although some disagreements can be detected, particularly in the middle and lower parts of the well. The relative difference in the gneissic units is significantly lower than in metabasic units, possibly due to the ambiguity between biotite gneiss, lamprophyre and “other” samples in the membership functions (Fig. 6). In addition, a number of Gneiss insertions within the Metabasite units can be identified. Some of them correspond to the “alternation” intervals, but others do not. All of them are counted as errors in the classification. Generally speaking, the highest DoM values for the test well are lower than for the training well (Fig. 10), pointing to the possible existence of differences in the lithology behaviour between the two wells. Indeed, if we look at Table 4, we can notice that the biotite paragneiss class is less well determined than in the training well, and the same happens with amphibolite and metagabbro. The lamprophyre samples are also confused with gneissic lithologies but are mainly assigned to the “other” class. Moreover, the number of “unknown” samples has increased. The overall accuracy has substantially decreased, to 58.3 %. The MCC is 0.339. As we would not expect such low success, we suspect that the property value distributions for the test well lithologies could be significantly different from those of the training well.

Table 5 Classification matrix for the fuzzy gamma operator (with $\gamma = 0.9$) using all properties with piecewise linear membership functions on the synthetic test well data

Lithology	Classified as									
	Bt-pgn	Hbl-gn	Kfs-gn	Amph	Mgb	Um	Apl	Lamp	Other	Unknown
Bt-pgn	2,306	137	47	0	0	0	61	164	337	0
Hbl-gn	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Kfs-gn	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Amph	3	209	0	12,764	543	1,085	0	0	1,479	0
Mgb	0	0	0	260	199	92	0	0	7	0
Um	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Apl	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Lamp	6	2	0	0	0	0	0	18	1	0
Other	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Unknown	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0

Correct classifications are given in bold

4.3 Synthetic Test

The potential difference in property value distributions between wells is an issue that in general cannot be fully addressed, because the lithology of the test wells is usually unknown. However, we wanted to test whether a synthetic data set with the same lithology abundances as the test well but with property value distributions like those of the training well would give similar, worse or better results.

The first thing one notices when looking at the lithological columns for this test with synthetic data, displayed in Fig. 12, is that the lithological limits are more clearly defined. There are a lot less samples classified as aplite, lamprophyre or “other” (i.e. the Varied class in the figure). It is also remarkable that the highest DoM are very high all along the well and does not drop in gneissic units, possibly due to the only presence of biotite paragneiss (Table 5), which is easily distinguished from metabasic units. Besides, it can be surprising that either the relative difference or the highest DoM are more spread than in Figs. 10 and 11. This is due to the random (synthetic) generation of the property values—there is no geological continuity between one data point and the other and, thus, the property values (and consequently the final lithology DoMs) are not continuous either.

The classification matrix is shown in Table 5. The overall accuracy, this time, is 77.5 % and the MCC is 0.533, and from the comparison between Tables 4 and 5 it is clear that our inference system is well prepared to suggest reliable classifications given that the representativity hypothesis (that is, that the property value distributions are similar between both wells) holds to a certain extent.

4.4 Cross-Validation

An important operation used to detect bias tendencies in classification problems is cross-validation. It consists in first training the system with the test data set and then applying the algorithm to the training data. In this case, there are two major difficulties, namely the fact that we know from the previous synthetic test that there exists significant variability in

Table 6 Classification matrix for the fuzzy gamma operator (with $\gamma = 0.9$) using all properties with piecewise linear membership functions in the cross-validation test

Lithology	Classified as									
	Bt-pgn	Hbl-gn	Kfs-gn	Amph	Mgb	Um	Apl	Lamp	Other	Unknown
Bt-pgn	16,683	0	0	489	0	0	0	31	0	196
Hbl-gn	428	0	0	96	0	0	0	1	0	1
Kfs-gn	110	0	0	4	0	0	0	0	0	42
Amph	426	0	0	4,851	58	0	0	0	0	216
Mgb	10	0	0	1,118	60	0	0	0	0	19
Um	8	0	0	74	24	0	0	0	0	12
Apl	42	0	0	2	0	0	0	0	0	44
Lamp	129	0	0	4	0	0	0	0	0	1
Other	78	0	0	53	0	0	0	5	0	29
Unknown	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0

Correct classifications are given in bold

property values distributions of property valued between wells, and that in the test well there are only four lithologies, thus biasing the results (i.e. there will not be any sample classified as hornblende gneiss, potassium–feldspar gneiss, ultramafite, aplite or “other,” because in the test well data set there are no data points pertaining to these classes).

The results of the cross-validation test are shown in Table 6. The overall accuracy is 87.1 %. This indicator is clearly biased due to the superior abundance of the biotite paragneiss. The MCC for this classification is 0.681, showing the effect of the number of misclassified lithologies against the great success of the biotite paragneiss classification. Obviously, this success is partially biased by the fact that in the test well we cannot find as many candidates as if the program were trained with data from the pilot hole. Besides, it is interesting to note that the program has classified the other gneisses as biotite paragneiss, and the ultramafite samples mainly as amphibolite and metagabbro. This reveals that the simplified lithology system (i.e. gneiss, metabasite and varied) is consistent. Besides, the metagabbro class has suffered a major misclassification into the amphibolite class, which could be due to the differences between property value distributions; the amphibolite membership functions could be “wider” and almost always return a greater DoM than the metagabbro class. Unsurprisingly, the aplite, lamprophyre and “other” samples have been mainly assigned to the biotite paragneiss class, as it is already known from the training analysis that there exists some confusion with these lithologies. Another relevant characteristic of the classification matrix is the “Unknown” column, which shows a very large number of samples in it. This can be explained by the fact that the range of values for some properties of the test well are smaller than those of the training well. Hence, if a property value falls out of range of the membership function’s training property range, it will be assigned an individual DoM of zero, which in turn will make the final DoM drop to zero (because of the fuzzy algebraic product factor of fuzzy gamma). This will happen for every lithology, making the program to doubt between all lithologies and finally assigning the data point to the “Unknown” class. This phenomenon occurs also for a reduced number of samples of the main hole when training the program with data from the pilot hole (Table 3).

The graphical lithology classification is shown in Fig. 13. Due to the use of the simplified lithology system, the global appearance is that of a very good classification. In addition, it can be noted that the relative difference is extremely high in paragneiss units,

showing the lack of competitors (i.e. hornblende gneiss and potassium–feldspar gneiss). However, the relative difference is less in metabasic units, and this can be related to the ambiguity between paragneiss and amphibolite (Table 6). The highest DoM indicator is generally lower than that of Fig. 10, but the morphology is practically identical, revealing that the overall results are consistent.

4.5 Comparison with an Artificial Neural Network Classification

A comparison between the lithology column from Fig. 11 and the resulting classification of a neural network approach applied to the same data set (from 4,000 to 6,000 m depth) by Maiti and Tiwari (2010) is shown in Fig. 14. We can say that both results match qualitatively in the discrimination of the main units, but differ in that we identify many fine insertions of Gneiss within Metabasite (and vice versa), some of which are incorrect due to the different property value distributions between wells. Besides, some of our intercalation sections coincide with their “Heterogeneous” sections, which by definition include gneiss-metabasite alternations. In this respect, we present a finer classification, which can be trusted to a certain degree when the highest DoM and the relative difference are high. A quantitative comparison is not possible due to their lack of numerical success indicators such as the overall accuracy or the MCC and to the fact that they classify a shorter section of the well.

5 Conclusions

In this work, a fuzzy inference procedure has been implemented as a MATLAB routine and tested for automatic well log data classification of a public data set coming from the KTB project (Germany).

A systematic classification quality analysis based on the multi-class Matthews correlation coefficient has been performed in order to find the best system configuration. We investigated the influence of three characteristics: first, which membership function type is best suited for an optimal classification (we considered the piecewise linear type and the unnormalized double-Gaussian type); second, which is the best combination operator for obtaining the final lithology degrees of membership (we tested eight different operators, namely the arithmetic mean, the geometric mean, the harmonic mean, the normalized Euclidean norm, the fuzzy AND, the fuzzy OR, the fuzzy algebraic sum and the fuzzy gamma with three values of gamma); and finally, which is the best set of properties to consider during the inference process (we tested for all possible groups of the eight available properties: RHOB, SGR, DTCO, NPHI, THOR, POTA, WAL and WFE). We have found that the system configuration which retrieves the best results is that which uses the piecewise linear membership function type, the fuzzy gamma operator (with $\gamma = 0.9$) and all available properties.

Along with the final suggested lithology column, two inference indicators are provided, namely the “relative difference” and the “highest degree of membership,” which allow users to interpret how much the chosen lithology stands out from the next likely one and how sure the program is about the final decision in absolute terms, respectively. Both of them are an addition of transparency to the output and help in the assessment of the reliability of the results.

The developed program has been applied to data from the KTB project. The inference system has been trained with data from the pilot hole (i.e. the *training well*, up to 4,000 m

depth), and the testing was made with data from the main hole (i.e. the *test well*, from 3,000 to 6,000 m depth). Results show that this fuzzy logic-based method is suited to rapidly and reasonably suggest a lithology column from well log data, neatly identifying the main units and in some cases refining the classification, which can lead to a better interpretation. However, as the classification accuracy has not been as high as we expected, we wanted to see whether there are any differences between data distributions. We have tested the system with synthetic data generated from the same property value distributions as the training data set and we have obtained a consistent classification of the same quality level as that of the training well. This confirms that, in this case study, the differences in data distributions between both wells are significant enough to misdirect the inference process, and, at the same time, it shows that our fuzzy classification method is well prepared to output a coherent classification, given that the representativity hypothesis holds to a certain extent.

A cross-validation analysis has been performed, in which the system has been trained with the main hole data set and applied to the pilot hole data. Even with the known limitations (i.e. existing differences between property value distributions and missing lithologies in the training data set), the main classes have been correctly detected and the overall results are in accordance with the simplified lithology system.

Finally, the comparison of our simplified lithology column with an artificial neural network derived classification shows a qualitatively good agreement. Our results present more gneissic and Varied insertions in metabasic units, some of them coincident with the “alternation” intervals labelled in the reference lithology column.

To sum up, our fuzzy logic classification method presents the following advantages: its principles are very intuitive, it is easy to implement as an automatic classification routine, it is far from being a black box due to the computation of the relative difference and the highest DoM inference indicators, it includes the “Unknown” class and its training is based on a performance analysis that suggests which are the best system characteristics for an optimum classification.

Acknowledgments This research was funded by PIERCO2 (CGL2009-07604) project and by the Ministerio de Educación, Cultura y Deporte within the FPU predoctoral program grant. We would like to thank the KTB project website for making public data available online: “Logging data were obtained under Grants RG8604, RG8803 and RG 9001 of the Federal Ministry of Research and Technology and provided by the KTB Project Management, Geological Survey of Lower Saxony, Germany.” We sincerely thank the anonymous reviewers who have helped us to improve the manuscript in many interesting ways.

References

- Akinyokun OC, Enikanselu PA, Adeyemo AB, Adesida A (2009) Well log interpretation model for the determination of lithology and fluid contents. *PIST* 10(1):507–517
- Al-Anazi A, Gates ID (2010) On the capability of support vector machines to classify lithology from well logs. *Nat Resour Res* 19:125–139
- Bagheri AM, Biranvand B (2006) Characterization of reservoir rock types in a heterogeneous clastic and carbonate reservoir. *JSUT* 32(2):29–38
- Baldwin JL, Bateman RM, Wheatley CL (1990) Application of a neural network to the problem of mineral identification from well logs. *Log Anal* 3:279–293
- Bárdossy G, Fodor J (2001) Traditional and new ways to handle uncertainty in geology. *Nat Resour Res* 10:179–187
- Benaouda B, Wadge G, Whitmarh RB, Rothwell RG, MacLeod C (1999) Inferring the lithology of borehole rocks by applying neural network classifiers to downhole logs—an example from the Ocean Drilling Program. *Geophys J Int* 136:477–491

- Bonnet A, Dahan C (1983) Oil-well data interpretation using expert system and pattern recognition techniques. In: Drinan A (ed) Proceedings of the eighth international joint conference on artificial intelligence, San Mateo CA, pp 185–189
- Bram K, Draxler J, Hirschmann G, Zoth G, Hiron S, Kühr M (2009) The KTB Borehole—Germany's Superdeep Telescope into the Earth's Crust. *Oilfield Rev* 7(1):4–22
- Busch JM, Fortney WG, Berry LN (1987) Determination of lithology from well logs by statistical analysis. *Soc Petrol Eng Form Eval* 2:412–418
- Chang H, Kopaska-Merkel D, Chen HC (2002) Identification of lithofacies using Kohonen self-organizing maps. *Comput Geosci* 28:223–229
- Cuddy SJ (2000) Litho-facies and permeability prediction from electrical logs using fuzzy logic. *SPE Reserv Eval Eng* 3:319–324
- Cuddy SJ, Glover PWJ (2002) The application of fuzzy logic and genetic algorithms to reservoir characterization and modelling. In: Wong PM, Aminzadeh F, Nikraves M (eds) Soft computing for reservoir characterization and modelling series: studies in fuzziness and soft computing. Physica-Verlag, Heidelberg, pp 219–242
- Davis R, Austin H, Carlborn I, Frawley B, Pruchnik P, Sneiderman R, Gilreath JA (1981) The DIPMETER ADVISOR: interpretation of geologic signals. In Drinan A (ed) Proceedings of the eighth international joint conference on artificial intelligence, San Mateo CA, pp 846–849
- Delfiner P, Peyret O, Serra O (1987) Automatic determination of lithology from well logs. *Soc Petrol Eng Form Eval* 2:303–310
- Dubois MK, Bohling GC, Chakrabarti S (2007) Comparison of four approaches to a rock facies classification problem. *Comput Geosci* 33(5):599–617
- Einstein EE, Edwards KW, D and S Knowledge Systems Inc. (1990) Comparison of an expert system to human experts in well-log analysis and interpretation. *Soc Petrol Eng Form Eval* 5(1):39–45
- Emmerman R, Lauterjung J (1997) The German continental deep drilling program KTB: overview and major results. *J Geophys Res* 102:18179–18201
- Gorodkin J (2004) Comparing two K-category assignments by a K-category correlation coefficient. *Comput Biol Chem* 28:367–374
- Grant FS, West GF (1965) Interpretation theory in applied geophysics. McGraw-Hill Book Company, New York
- Hsieh B, Lewis C, Lin Z (2005) Lithology identification of aquifers from geophysical well logs and fuzzy logic analysis: Shui-Lin Area, Taiwan. *Comput Geosci* 31:263–275
- Ilkhchi AK, Rezaee M, Moallemi SA (2006) A fuzzy logic approach for the estimation of permeability and rock types from conventional well log data: an example from the Kangan reservoir in Iran Offshore Gas Field, Iran. *J Geophys Eng* 3:356–369
- Imamura S (1994) Integrated interpretation of exploration data in geotechnical engineering: an approach using fuzzy theory (abs.). Society of exploration geophysics annual meeting expanded technical program abstracts, 64:202–205
- Imamura S, Nakayama F (1997) Interpretation of exploration data using fuzzy theory. *Geophys Expl* 50:285–298
- Jurman G, Riccadonna S, Furlanello C (2012) A comparison of MCC and CEN error measures in multi-class prediction. *PLoS One* 7(8). doi:10.1371/journal.pone.0041882
- Kapur L, Lake L, Sepehrmoori K, Herrick D, Kalkomey C (1998) Facies prediction from core and log data using artificial neural network technology. In: Transactions of the 39th SPWLA annual logging symposium, p 11
- Khaxar ZO, Bagheri M, Karkuti E (2007) A fuzzy approach for porosity classification by using well log data. In: International earthquake symposium, Kocaeli, pp 567–572
- Maiti S, Tiwari RK (2009) A hybrid Monte Carlo method based artificial neural networks approach for rock boundaries identification: a case study from KTB Borehole. *Pure Appl Geophys* 166:2059–2090. doi:10.1007/s00024-009-0533-y
- Maiti S, Tiwari RK (2010) Neural network modelling and an uncertainty analysis in Bayesian framework: a case study from the KTB borehole site. *J Geophys Res (Solid Earth)*. doi:10.1029/2010JB000864
- Maiti S, Tiwari RK, Kuempel H-J (2007) Neural network modelling and classification of litho-facies using well log data: a case study from KTB borehole site. *Geophys J Int*. doi:10.1111/j.1365-246X.2007.03342.x
- Matthews B (1975) Comparison of the predicted and observed secondary structure of T4 phage lysozyme. *BBA-Protein Struct* 405:442–451
- Pechinig R, Haverkamp S, Wohlenberg J (1997) Integrated log interpretation in the German Continental Deep Drillin Program: lithology, porosity and fracture zones. *J Geophys Res* 102(B8):18363–18390

- Rezaei M, Movahed B (2009) New approach of fuzzy logic applied to lithofacies forecasting and permeability values estimation. *J Appl Sci* 9:2201–2217
- Rogers SJ, Fang JH, Karr CL, Stanley DA (1992) Determination of lithology from well logs using a neural network. *AAPG Bull* 76:731–739
- Saggaf MM, Nebrija EL (2000) Estimation of lithologies and depositional facies from wire-line logs. *AAPG Bull* 84(10):1633–1646
- Saggaf MM, Nebrija EL (2003) A fuzzy logic approach for the estimation of facies from wire-line logs. *AAPG Bull* 87:1223–1240
- Sandham W, Leggett M (eds) (2004) *Geophysical applications of artificial neural networks and fuzzy logic*. Springer, Berlin
- Serra O (1986) *Fundamentals of well log interpretation, vol 2: the interpretation of logging data*. Developments in petroleum science, No. 15B. Elsevier Science Publishers, Amsterdam
- Toumani A, Schmitz D, Schepers R (1994) Automatic determination of lithology from well logs using fuzzy classification. In: 56th meeting of the EAEG, paper H041
- Weiss SM, Kulikowski CA (1982) Building expert programs for controlling complex programs. In: *Proceedings 2nd NCAI*, pp 322–326
- Wolff M, Pelissier-Combescure J (1982) FACIOLOG: automatic electrofacies determination. In: *SPWLA annual logging symposium*, paper FF, pp 6–9
- Wong P, Aminzadeh F, Nikraves M (eds) (2002) *Soft computing for reservoir characterization and modeling*. Physica Verlag, Heidelberg
- Zadeh LA (1965) Fuzzy sets. *Inform Control* 8:338–353
- Zhang Y, Salisch HA, McPherson JG (1999) Application of neural networks to identify lithofacies from well logs. *Expl Geophys* 30:45–49

Erratum to: Fuzzy Logic Determination of Lithologies from Well Log Data: Application to the KTB Project Data set (Germany)

David Bosch · Juanjo Ledo · Pilar Queralt

Published online: 2 August 2013
© Springer Science+Business Media Dordrecht 2013

Erratum to: Surv Geophysics (2013) 34:413–439
DOI 10.1007/s10712-013-9242-2

Due to an unfortunate misunderstanding, the legend of Figs. 6 and 7 was omitted.
We sincerely apologize for the confusion that may arise from this error.
Below are included the mentioned figures with their corresponding legends.

The online version of the original article can be found under doi:10.1007/s10712-013-9242-2.

D. Bosch (✉) · J. Ledo · P. Queralt
Departament de Geodinàmica i Geofísica, Facultat de Geologia, Universitat de Barcelona,
C/Martí i Franquès, s/n, 08028 Barcelona, Spain
e-mail: dbosch@ub.edu

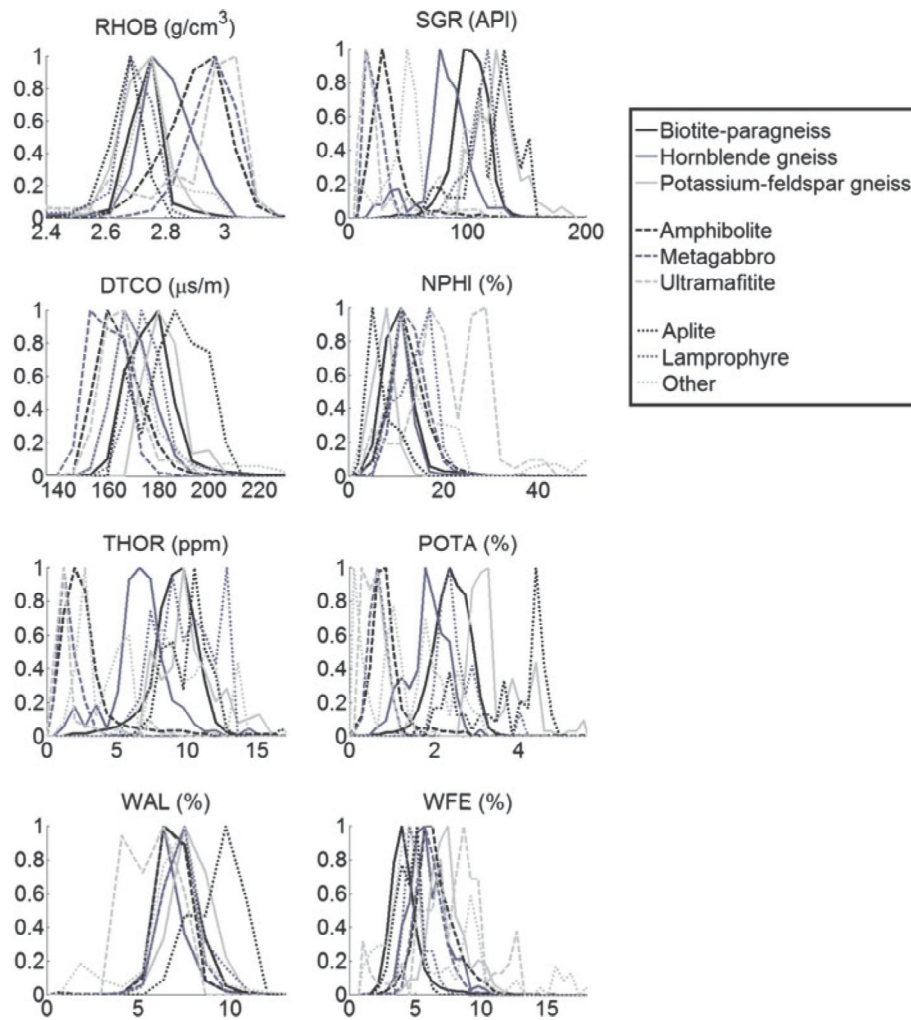


Fig. 6 Plots of the piecewise linear membership functions obtained from the training well data. There are 30 bins for each histogram

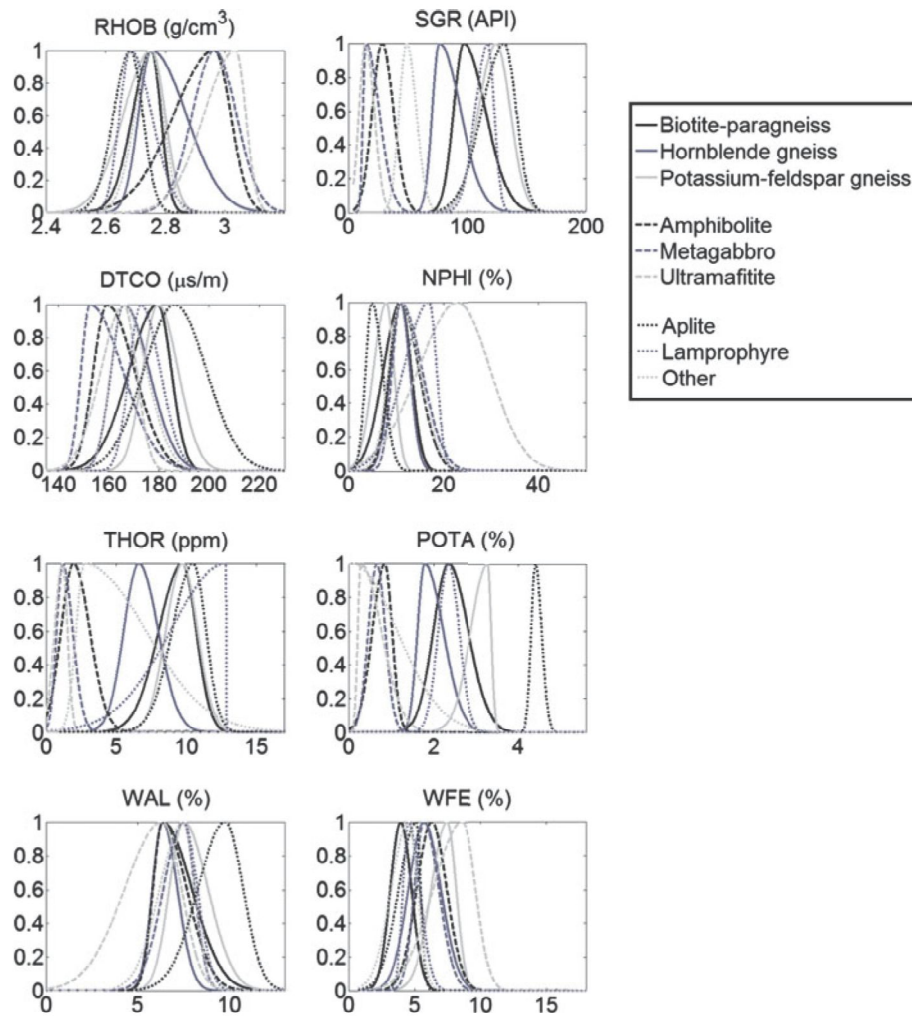


Fig. 7 Plots of the unnormalized double gaussian membership functions obtained from the training well data. There are 30 bins for each histogram