

Enseignements liés aux sites naturels de CO₂

La Rédaction¹.

Pour l'étude du comportement d'un stockage de CO₂, il était logique de prendre aussi en compte les situations naturelles que sont les accumulations et les zones de migration de CO₂. C'est cette approche qui a été retenue dans le projet européen NASCENT. Elle a également été prise en compte dans les travaux du réseau scientifique CO₂GeoNet.

L'on trouve des gisements naturels de CO₂ dans de nombreux pays et dans une diversité d'environnements géologiques, à l'image de la diversité de sites étudiés pour le stockage de CO₂. Des remontées naturelles de CO₂ en surface sont également fréquentes comme en témoignent par exemple les sources d'eaux minérales carbonatées. Tous ces sites peuvent fournir des enseignements utiles sur les effets à long terme d'un stockage qui sont susceptibles d'affecter la capacité de stockage de CO₂, l'intégrité de la couverture, la stabilité des terrains et, en cas de remontée du CO₂, les écosystèmes locaux et la qualité des eaux dans les aquifères sus-jacents. Ils peuvent également permettre de tester des méthodes de détection de CO₂ en surface et en profondeur ainsi que diverses méthodes de surveillance des sites de stockage.

Projet NASCENT

L'acronyme NASCENT signifie : *Natural Analogues for the Storage of CO₂ in the Geological Environment*. Le projet, qui faisait partie du 5^{ème} PCRD, s'est déroulé de 2001 à 2004. Il était coordonné par le British Geological Survey (BGS) et associait 10 autres partenaires dont la liste est donnée ci-dessous :

- Magyar Állami Földtani Intézet, Hongrie.
- Bureau de Recherches Géologiques et Minières, BRGM, France.
- Rheinisch-Westfälische Technische Hochschule, Université Technique d'Aix-la-Chapelle, Allemagne.
- Institute of Geology and Mineral Exploration, Grèce.
- Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe, BGR, Allemagne.
- Università « La Sapienza » di Roma, Italie.
- Netherlands Institute for Applied Scientific Research (TNO), Pays-Bas.
- IEA Greenhouse Gas R&D Programme.
- BP Plc., Royaume-Uni.

- Den Norske Stats Oljeselskap a.s, Norvège.

Pour le projet NASCENT, 6 sites d'étude ont été sélectionnés en Allemagne (1), France (1), Grèce (1), Hongrie (2) et Italie (1).

En **Allemagne**, les occurrences naturelles de CO₂ dans le district potassique de Werra (Vorderhön) sont connues depuis la fin du XIX^e siècle. L'exploitation du champ de CO₂ relevait d'une compagnie d'Allemagne de l'Est jusqu'en 1990, puis elle a été reprise par Air Liquide qui l'a arrêtée en 1994. Sur environ un siècle, la production a été d'environ 528 000 t. Le réservoir du CO₂ est constitué par le calcaire du Zechstein surmonté par une couverture d'anhydrite. Des basaltes du Tertiaire tardif sont associés à des zones de failles. La relation entre venues de CO₂, failles et roches volcaniques a été démontrée dans les mines de potasse.

En **France**, l'accumulation de CO₂ de Montmiral (bassin de Valence, Drôme), découverte en 1961, est exploitée depuis 1990 par Carboxyque, filiale d'Air Liquide, à partir du forage V.Mo.2. Plusieurs occurrences de CO₂ ont été reconnues au-delà de 2 400 m de profondeur, essentiellement dans les grès de l'Hettangien et du Trias. La productivité est assurée par les fractures ouvertes et la saturation du CO₂ est estimée à 97%. L'étude, effectuée conjointement par le BRGM et le BGS a permis d'étudier les transformations minéralogiques à long terme résultant de l'arrivée de CO₂ dans le réservoir. Postérieurement au projet NASCENT, un travail de thèse² a permis de poursuivre l'analyse du bassin de Valence en s'intéressant aux migrations de CO₂ et en élargissant l'étude au reste de la colonne stratigraphique (Paléozoïque et couverture du Rhétien à l'Oligocène). Après homogénéisation des données de forage, notamment celles concernant le forage d'exploitation V.Mo.2, un échantillonnage des carottes a été réalisé, portant principalement sur les fractures, considérées comme les principaux vecteurs des migrations de CO₂. Différentes méthodes d'analyse ont ensuite été appliquées pour étudier ces échantillons, d'abord ceux du Paléozoïque, ensuite ceux du Rhétien au Sinémurien au-dessous des marnes du Domérien à Oxfordien moyen, enfin ceux du reste de la colonne stratigraphique (Oxfordien supérieur à Oligocène).

L'étude des inclusions carboniques du substratum paléozoïque suggère que le réservoir de Montmiral s'est rempli sous contrainte tectonique à partir de la migra-

1. Remerciements à Isabelle Czernichowski-Lauriol pour son aide dans l'élaboration de cet article.

2. Rubert Yolaine, 2009 : Contribution à la connaissance des migrations de CO₂ naturel dans le Bassin du S-E de la France : enseignements pour le stockage géologique du CO₂ dans les réservoirs sédimentaires. Soutenance le 27 mars 2009 à l'université d'Orléans, 274 p.

tion d'un composant aquo-carbonique supercritique enrichi en CO₂ par démixion et migration vers les séries sédimentaires sus-jacentes. Entre le Rhétien et le Sinémurien, deux stades de migration ont été identifiés, le premier, lié à la subsidence anté-callovienne du bassin, ayant entraîné la formation de fractures polyminérales, le 2^{ème} correspondant à des circulations météoriques tardives au cours de l'orogénèse pyrénéenne. L'étude des roches de l'Oxfordien supérieur à l'Oligocène souligne l'absence de quantités significatives de gaz, notamment de CO₂. Les unités marneuses du Domérien – Oxfordien auraient servi d'écran et empêché les fluides de ces deux ensembles du Secondaire de se mélanger. La présence de carbonates fissurés dans la dernière période serait liée à un épisode de karstification affectant les formations de l'Oxfordien supérieur au Crétacé lors de la tectonique compressive pyrénéenne, synchrone de la surrection du bassin. L'ensemble de l'étude souligne la pertinence de l'approche pluridisciplinaire utilisée pour l'étude des réservoirs de stockage potentiel de CO₂ et l'appréciation des circulations qui ont pu les affecter.

Le gisement de CO₂ de Florina (**Grèce**), situé à la frontière de la FYROM³, a été découvert par hasard dans les années 60 lors d'une prospection pour lignite. Il est en production depuis 1980, au rythme actuel annuel de 30 000 t. En raison des eaux acides et du CO₂, la durée de vie d'un puits ne dépasse pas un an. Le CO₂ se trouve dans des sables situés entre les couches de lignite ou au-dessus. Des horizons argileux constituent localement des couvertures. Son origine est peut-être liée à l'altération de calcaires, suivie d'une migration par des failles dans les sédiments tertiaires sus-jacents, ou à la présence d'une activité volcanique dans le bassin d'Almopia à 25 km à l'est. Une étude a été menée pour évaluer les corrélations entre fuites de CO₂ et activité sismique.

En **Hongrie**, l'un des sites (Mihályi-Répcelak) est situé dans la partie centrale de la Petite Plaine ; l'autre (Mátraderecske) est localisé dans les montagnes de Matra. Le premier site, découvert en 1933, a été sondé en 1935. Il a produit un volume important de CO₂, à 94,6% de saturation, à partir d'un réservoir de phyllites du Paléozoïque inférieur, à environ 1 600 m de profondeur. Après la découverte de réserves importantes, en 1945-46, dans le socle de Répcelak à 1 460 m de profondeur, la production a commencé dans les années 50 à partir de deux réservoirs gréseux, et 43 forages ont été réalisés jusqu'en 1979. Depuis 1993, les champs de Mihályi et Répcelak, exploités par Linde Gas Ltd, ont respectivement produit 43,6 et 19 millions de m³. Les réservoirs sont des turbidites et autres sédiments de bassin mio-pliocènes, sous une couverture marneuse du Pannonien.

Dans le secteur de Mátraderecske, on observe des concentrations élevées de CO₂ dans les maisons privées où des équipements ont été installés pour y remédier. On utilise aussi le CO₂ dans des établissements médicaux. La région fait partie des andésites du Miocène moyen de la Hongrie du nord, à proximité de la faille majeure de Darnó. Le socle d'andésite éocène est surmonté d'argiles et de sables. On pense que le CO₂ est lié à une minéralisation Cu-Zn située à proximité et il aurait migré à la faveur de fractures depuis un réservoir karstique situé à environ 1 000 m de profondeur. Le gaz peut migrer latéralement le long de niveaux imperméables et s'échapper vers la surface à la faveur de failles. Les fuites de gaz se voient sous forme de bouillonnements dans les puits et les cours d'eau, ainsi que dans les sources fortement carbonatées.

Le **site italien** de Latéra se trouve dans la caldeira du même nom, habitée depuis des millénaires. Le secteur, étudié depuis le début des années 70 pour géothermie, était bien connu longtemps auparavant pour ses sources riches en carbonates et ses émergences à forte teneur en CO₂. On considère que le CO₂ résulte de la décarbonatation des minéraux carbonatés dans des réservoirs dont l'âge dépasse 100 000 ans. La couverture est constituée de roches de type flysch avec scellement local de fractures.

Dans la liste des sites concernés par le projet NASCENT, il faut aussi inclure les occurrences de gaz à faible profondeur, fréquemment observées dans le **sud de la mer du Nord**. Bien que constituées presque exclusivement de méthane, ces occurrences peuvent fournir des informations utiles sur les processus physiques de piégeage et de migration associés aux accumulations de gaz et aux expressions de surface qu'elles provoquent.

Projets de recherche CO₂GeoNet

Depuis 2005, le réseau d'excellence CO₂GeoNet conduit des recherches sur différents sites naturels *onshore* et *offshore*, utilisés comme des laboratoires naturels. Les thématiques relèvent des méthodes de surveillance, de l'analyse des impacts de fuites de CO₂ et de la compréhension des mécanismes de migration.

Le panel de méthodes de surveillance utilisées en **géophysique** (sismique réflexion 2D, sismique réfraction 2D, analyse multicanaux des ondes de surface - MASW, radar au sol, microgravimétrie, mesures géoélectriques 2 et 3D, polarisation spontanée et électromagnétisme - EM31, EM34 et TDEM) a souligné une bonne corrélation avec la présence de CO₂, la sismique confirmant que les failles constituent le principal chemin de migration⁴. Il reste notamment à mieux appréhender l'influence saisonnière sur les migrations de CO₂.

3. Anciennement Yugoslav Republic of Macedonia.

4. Voir la publication de Arts R. J., et al. Results of geophysical monitoring over a « leaking » natural analogue site in Italy. ScienceDirect, Energy Procedia 1, 2009, 2269-2276.

L'emploi de la **géochimie** pour l'étude des gaz proches de la surface a fait l'objet de travaux sur le site de Latera en Italie (voir NASCENT) : comparaison entre techniques analytiques, intercalibration entre détecteurs radon et détecteurs CO₂. Les résultats ont montré que les laboratoires et les instruments utilisés dans CO₂GeoNet offrent des niveaux de précision et de fiabilité comparables. Un effort particulier a porté sur l'intercomparaison entre techniques d'analyse ²²²Rn et CO₂ sur le terrain, le premier étant un traceur utile qui peut être associé à la migration de CO₂. L'utilisation d'un spectromètre gamma peut être compliquée par un fort bruit de fond dans des environnements où l'activité biologique est élevée. Les études ont également porté sur l'emploi du laser infrarouge pour suivre la teneur en CO₂ de l'air, mais les perturbations provoquées par les conditions d'expérimentation ou d'environnement (vent notamment) conduisent à privilégier les mesures sur des sites localisés comme des puits abandonnés.

Pour les tests de **télé-détection** aéroportée, on s'est également appuyé sur le site de Latera. Pour ces tests, on a fait l'acquisition d'orthophotos, d'une information topographique détaillée et de données hyperspectrales, thermales et multispectrales sur une partie de la caldeira effondrée dans laquelle sont connues des émanations de CO₂ et occasionnellement de H₂S. Les techniques hyperspectrales ont permis de repérer des secteurs de stress des plantes, attribués dans certains cas à des venues de

gaz. L'étude détaillée de 80 anomalies a montré que l'origine de nombre d'entre elles était incertaine, la présence de H₂S notamment, dans certaines de ces venues, étant un facteur de complication. Les recherches ultérieures, notamment par détection directe du CO₂ et mesures au laser mobile, ont permis d'effectuer un tri pertinent entre anomalies et de déterminer celles qui correspondent effectivement à des venues de CO₂.

Trois sites (Latera en Italie, Laacher See en Allemagne et Asgard au Royaume-Uni) ont été pris en compte pour évaluer les **effets de fuites de CO₂** sur les **écosystèmes terrestres**. Les résultats sont complexes et diffèrent d'un site à l'autre quant à l'éventail d'espèces présentes, la flore et l'activité microbienne.

En ce qui concerne l'impact de fuites de CO₂ sur les **écosystèmes aquatiques**, des recherches *in-situ* ont été menées en milieu marin dans le golfe de Trieste, au large de l'île de Panarea au nord de la Sicile⁵, dans un fjord norvégien, et en milieu lacustre dans le Laacher See. Sur la base d'un modèle japonais, une nouvelle chambre benthique a été développée par le réseau dont la finalité est de tester les effets de CO₂ sur la géochimie des sédiments et les petits organismes, tout en servant de plate forme pour l'installation de divers capteurs. Un système peu coûteux de mesure *in situ* sur fond marin, susceptible de mesurer différents paramètres (CO₂, CH₄, conductivité, pH et température) a été testé avec succès.

Extraire du méthane et/ou stocker le CO₂ en couche de charbon

La Rédaction¹.

L'injection de CO₂ en couches de charbon en est encore largement au stade de la R&D, alors que celle dans les gisements d'hydrocarbures épuisés, dans une moindre mesure les aquifères profonds, se pratique déjà de longue date. En termes de stratégie du stockage de CO₂, ces trois types d'environnements n'en sont donc pas au même niveau de développement.

Le thème qui nous préoccupe ici est celui du stockage du CO₂ en couche de charbon. Même si l'on peut considérer seulement le stockage de CO₂, jusqu'ici les expériences test conduites ont toujours jumelé le stockage de CO₂ et la récupération de méthane.

L'extraction de méthane en couches de charbon (*Coal Bed Methane*) s'est déjà pratiquée dans certaines régions du monde, notamment dans le bassin charbonnier

de San Juan (Nouveau Mexique et Colorado) où plus de 100 000 tonnes de CO₂ ont été injectées depuis 1996 par la société Burlington Resources, avec une augmentation significative de la production de méthane. Le *projet Coal-Seq*, financé par l'US Department of Energy et conduit par Advanced Resources International (ARI), a été lancé en octobre 2000. Il portait sur les unités d'Allison (16 puits de production de méthane, 4 puits d'injection de CO₂ et 1 puits d'observation) et de Tiffany (34 puits de production de méthane, 12 puits d'injection de N₂) où opèrent respectivement les sociétés Burlington Resources et BP America. La production de méthane à Allison a commencé en 1989 tandis que celle de Tiffany a débuté en 1983. Le projet, divisé en trois phases, avait pour objectif de comprendre la faisabilité technique et économique de

5. Voir : Annunziatellis A. et al., *Development of an innovative marine monitoring system for CO₂ leaks : system design and testing*. ScienceDirect, Energy Procedia 1, 2009, 2333-2340.

1. Remerciements à Éric Gaucher et Aurélien Leynet (BRGM) pour leur aide dans l'établissement de ce texte.