

Objet : Tierce expertise « Gaz de Sol » après injection de CO₂ pour stockage géologique à Rouse (64).

Le contexte

Situation et gaz présent :

Placée au nord du chevauchement frontal nord-pyrénéen, au sud-est du gisement de Lacq, le réservoir de ROUSSE se situe dans un environnement géologique bien connu, il est épuisé et son exploitation mise à l'arrêt avant l'injection et sa taille en faisait un candidat adapté à une opération pilote de réinjection et de stockage géologique de CO₂. Le puits principal (ROUSSE1 : RSE1) avait permis la mise en production simultanée sur les réservoirs de Mano et Meillon en septembre 1972.

En 2007 et avant l'opération d'injection, la part de Mano dans la production cumulée du champ de ROUSSE (4520MSm³) était estimée à 940MSm³. La pression du réservoir Mano était inférieure à 30 bars et la composition du gaz extrait était la suivante :

		δ13C (‰)
Azote N ₂	0,77%	
Dioxyde de carbone CO ₂	4,61%	
Sulfure d'hydrogène H ₂ S	0,83%	
Méthane CH ₄	77,48%	-43,7
Ethane C ₂ H ₆	4,93%	
Propane C ₃ H ₈	2,42%	
Butane C ₄ H ₁₀	2,22%	
Hydrocarbures supérieurs	6,74%	

Tableau 1 : Composition Gaz (« Mano ») extrait avant injection

On peut y remarquer la présence d'une fraction importante de CO₂ natif ainsi qu'une faible quantité de H₂S.

Injection de CO₂ :

Les injections de CO₂ depuis le démarrage du pilote se sont étalées sur 3 années de janvier 2010 à décembre 2012 pour un total de gaz injecté de 48500t (dont 20kt par an en 2011 et 2012).

		δ13C (‰)
Dioxyde de carbone CO ₂	87-96%	-39,6
Monoxyde de carbone CO	<0,03%	
Eau H ₂ O	<0,0030%	
Oxydes d'azote NO _x	<0,03%	
Azote N ₂	0,3-4%	
Oxygène O ₂	2-3%	
Argon Ar	0,5-6%	
Autres impuretés	<0,03%	

Tableau 2 : Composition du CO₂ injecté

Depuis le début, l'injection de CO₂ est associée à une surveillance régulière de sa qualité, avec une teneur en CO₂ en moyenne supérieure à 91% et comme principaux gaz associés O₂, N₂, Ar, NO_x et CO (voir tableau 2 ci-dessus).

La pression du gaz au fond du puits (-4395m) est d'environ 80 bars et sa température d'environ 145°C

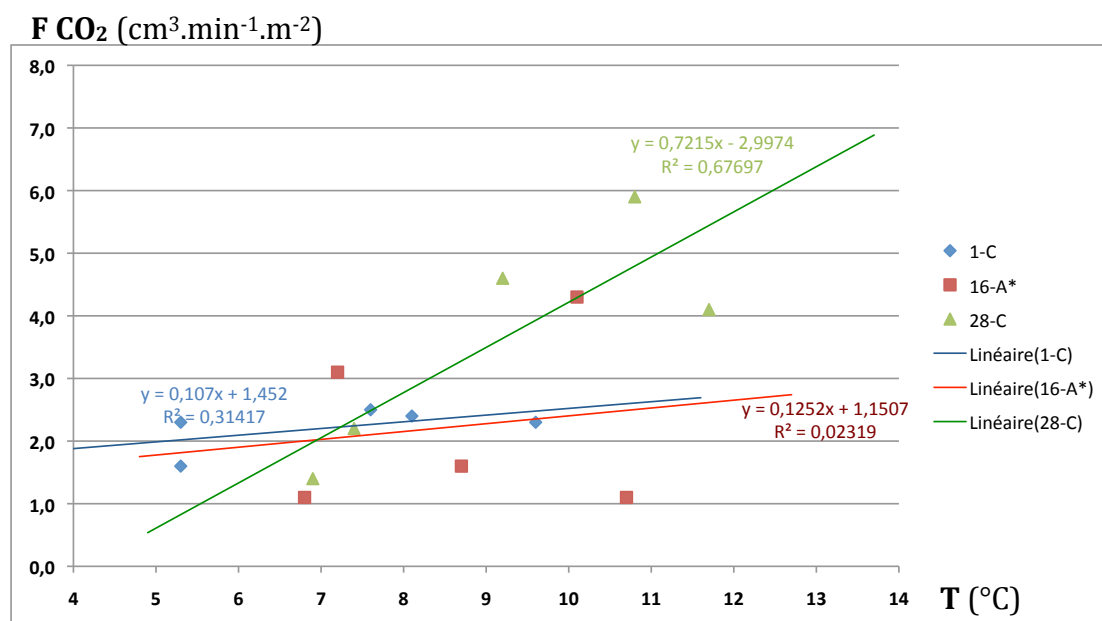
Mesures gaz des sols

Deux campagnes annuelles ont été réalisées juste avant, pendant et après injection de CO₂ pour le prélèvement et la mesure des teneurs et flux de gaz du sol (soit plus de 1000 prélèvements de 2008 à 2013). Sans doute pour s'affranchir d'un bruit de fond naturel trop important, les campagnes ont été programmées en saison de basse activité biologique (en début et fin d'hiver). On a pu observer au cours des campagnes précédant l'injection une grande dépendance saisonnière et géographique de la teneur et du flux de CO₂. Les prélèvements mis en place à raison d'un point en moyenne par kilomètre, soit 35 points autour du puits d'injection et à l'aplomb du réservoir ont permis la mesure à la fois des teneurs (avec une canne de prélèvement de 1 m par le BRGM), des flux (avec une chambre d'accumulation (brevet INERIS)) et la détermination d'origine ($\delta^{13}\text{C}$) de CO₂.

Flux gazeux à l'interface sol/air (INERIS)

Mesure de flux gaz émanant du sol (CO₂ et CH₄)

Les dimensions de la chambre d'accumulation et à recirculation externe utilisée par l'INERIS lors des 2 campagnes annuelles (plus de 450 prélèvements) étaient de (50 x 50 cm). La méthode consiste à couvrir au moyen d'une enceinte une surface de sol connue de manière quasi hermétique et sans modifier le milieu. On peut ainsi créer un effet d'accumulation en gaz (CO₂ et CH₄) que l'on mesure en continu (sur 3') afin d'observer une croissance linéaire en fonction du temps. C'est la mesure de ce phénomène qui une fois traitée, permettra d'en déduire le flux local de gaz. La gamme de mesure de flux s'étend de 0,1 à 3000-4000 cm³.min⁻¹.m⁻² pour le CO₂ et de 0,01 cm³.min⁻¹.m⁻² minimum pour le CH₄, soit bien en deçà de la résolution nécessaire pour des sols normalement drainés.



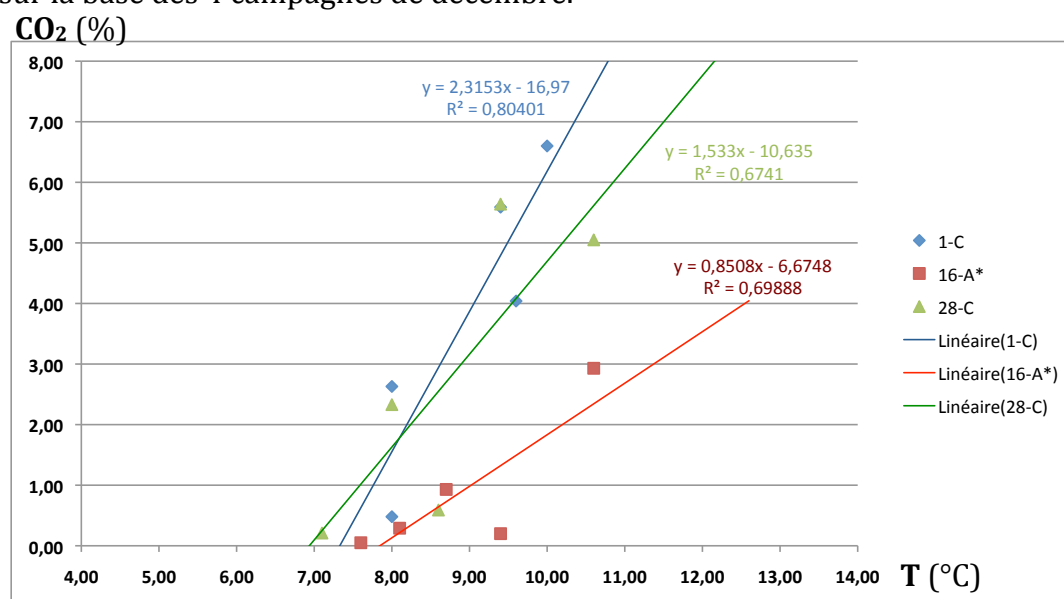
Graphique 1 : Flux CO₂ en fonction de la température

Aucune des mesures réalisées n'ont pu mettre en évidence un seul flux de méthane mesurable. Comme le montre le graphique précédent, il est difficile d'établir à saison équivalente un lien univoque entre température et flux de CO₂. Pour limiter (au moins partiellement) d'un bruit de fond de CO₂ biogénique trop présent et limiter l'effet impactant de la température, les mesures doivent être poursuivies sur la période de début décembre uniquement. Le flux moyen de CO₂ du sol mesuré à l'interface sol/air dans le secteur de Rouse se situe plutôt dans une fourchette plutôt haute de la distribution des émissions de CO₂ d'origine biogénique généralement rencontrées sous nos latitudes (bassin parisien et Montmiral (Drôme)). Cependant et après 5 ans d'études et de surveillance (dont 3 d'injections), la plupart des résultats des quelques 450 mesures de flux de CO₂ ne permettent pas de conclure à une origine autre que biogénique du CO₂. L'existence de quelques singularités, y compris en saison hivernale (décembre), nous engage à recommander de continuer une surveillance annuelle sur la totalité des points avec un seuil de déclenchement de vigilance et d'anomalie (selon la *définition en p33-35 de MGR 09-197*) ramené à respectivement **Seuil-Flux1 : 5,9** cm³.min⁻¹.m⁻² (pour 3 points en simultanément avec une mesure au delà du **Seuil-Teneur1** en % du CO₂ dans le sol) et **Seuil-Flux2 : 7,3** cm³.min⁻¹.m⁻² (1 point). Les calculs ont été effectués de manière identique au document MGR 09-197 à l'aide des 4 campagnes de décembre.

Teneurs en gaz des sols (BRGM)

Mesure de flux gaz émanant du sol (CO₂ et isotopie)

Ici encore, après 5 ans d'études et de surveillance (dont 3 d'injections), la plupart des résultats des 450 mesures de teneurs de CO₂ dans les sols ne permettent pas de conclure à une origine autre que biogénique du CO₂. L'existence de quelques singularités, y compris en saison hivernale (décembre), nous engage cependant à recommander de continuer une surveillance annuelle conjointe à celle des flux sur la totalité des points avec un seuil de déclenchement de vigilance et d'anomalie (*def. p33-35 de MGR 09-197*) ramené à respectivement **Seuil-Teneur1 : 3,6%** (pour 3 points en simultanément avec une mesure au delà du **Seuil-Flux1** du CO₂ dans le sol) et **Seuil-Teneur2 : 4,7%** (1 point). Les calculs ont été effectués de manière identique au document MGR 09-197 sur la base des 4 campagnes de décembre.



Graphique 2 : Teneur en CO₂ dans le sol en fonction de la température

A saison et localisation géographique équivalente, le graphique 2 laisse entrevoir un couplage possible entre température et teneur en CO₂. Pour s'affranchir (au moins partiellement) d'un bruit de fond de CO₂ biogénique trop présent et limiter un effet impactant de la température, les mesures doivent être poursuivies sur la période de début décembre uniquement.

En parallèle de ces mesures de teneur en CO₂ dans les sols, des mesures en laboratoire ont été réalisées (chromatographie et isotopie). Pour ces dernières, il est important de s'affranchir de la contribution de l'atmosphère dans la mesure du $\delta^{13}\text{C}$ pour la détermination d'origine du CO₂. En lieu et place de 0,2%, il serait plus raisonnable de considérer la valeur de 0,5% de CO₂ comme seuil à partir duquel la contribution commence à être négligeable. De la même manière que précédemment et après analyse des données des 5 dernières années, la poursuite systématique des analyses de rapports isotopiques du carbone du CO₂ est à recommander au moins sur les points 1, 2, 16, 23, 24, 25 et 28 qui présentent chacun quelques points singulièrement hauts à saison fixe. Le seuil de déclenchement pour l'analyse isotopique des autres points de mesure doit se situer au-delà de valeurs supérieures à 2% (en décembre). Sur la base des analyses réalisées sur les 5 dernières années (cf. *tableau 3*), la contribution négligeable de l'atmosphère pour des teneurs supérieures à 0,5%, le $\delta^{13}\text{C}$ fortement négatif du CO₂ injecté (-39,6 ‰ ; données IFPEN (MFT04-004)) et une distribution moyenne du CO₂ biogénique à (-25 ‰), nous amène à considérer comme seuil de déclenchement de vigilance un $\delta^{13}\text{C} < (-26,0 \text{ ‰})$ et d'anomalie un $\delta^{13}\text{C} < (-28,4 \text{ ‰})$.

	$\delta^{13}\text{C} \text{ ‰}$	$\delta^{13}\text{C} \text{ ‰}$	$\delta^{13}\text{C} \text{ ‰}$	$\delta^{13}\text{C} \text{ ‰}$	$\delta^{13}\text{C} \text{ ‰}$	$\delta^{13}\text{C} \text{ ‰}$	$\delta^{13}\text{C} \text{ ‰}$	$\delta^{13}\text{C} \text{ ‰}$	$\delta^{13}\text{C} \text{ ‰}$	$\delta^{13}\text{C} \text{ ‰}$	$\delta^{13}\text{C} \text{ ‰}$	$\delta^{13}\text{C} \text{ ‰}$	$\delta^{13}\text{C} \text{ ‰}$	$\delta^{13}\text{C} \text{ ‰}$	moy	σ
1-C	-23,8					-25,5	-26,7	-25,2	-26,5			-24,6		-26,7	-25,57	1,13
2-D			-23,1									-12,9		-26,8	-20,93	7,20
3-A			-26,9												-26,90	
4-B			-12,6	-18,2	-20,4							-19,2			-17,60	3,45
5-B	-21,9				-21,4	-25,4									-22,90	2,18
6-A	-23,9		-15,1	-13,6	-21,4		-23,7								-19,54	4,87
7-B		-24,6				-20,7				-25,0		-24,5			-23,70	2,01
8-C	-22,8	-25,6								-26,0					-24,80	1,74
9-A			-17,7	-20,9											-19,30	2,26
10-C			-25,0									-23,3	-23,6		-23,97	0,91
11-C			-17,2			-15,2				-26,1					-19,50	5,80
12-A	-23,1				-22,3		-24,8					-24,5	-26,3		-24,20	1,56
13-A			-24,3							-24,0	-24,0			-23,6	-23,98	0,29
14-A		-23,4				-22,0	-24,8					-23,5	-25,5		-23,84	1,36
15-A				-23,0		-13,5						-13,7			-16,73	5,43
16-A					-23,2	-13,0	-26,4					-26,1			-22,18	6,28
17-B	-26,6			-20,3	-25,9					-28,0				-28,5	-25,86	3,28
18-B	-24,3				-23,8										-24,05	0,35
19-C				-24,5	-22,9							-25,0	-24,0		-24,10	0,90
20-B				-16,5	-24,0		-26,4							-26,9	-23,45	4,80
21-B	-22,4	-22,7				-23,0	-24,3	-22,8	-22,6			-23,2			-23,00	0,63
22-B		-19,9				-13,3		-24,1							-19,10	5,44
23-B			-18,2		-20,1										-19,15	1,34
24-A	-25,7	-26,3		-26,3	-24,4		-26,2	-26,1	-25,8	-26,8	-26,9		-26,7		-26,12	0,72
25-A	-23,7			-24,1	-22,1				-23,5						-23,35	0,87
26-B			-25,7								-25,3	-24,7		-25,0	-25,18	0,43
27-C				-24,5		-11,0						-25,5	-27,0		-22,00	7,40
28-C	-23,1	-25,2	-24,4	-23,2	-20,9	-23,6	-24,6		-23,7	-24,2	-22,4		-25,1		-23,67	1,26
29-A		-16,5				-14,8									-15,65	1,20
30-C			-24,4		-22,4					-23,3	-24,6			-25,7	-24,08	1,27
31-B			-25,5			-23,1	-24,6	-23,6	-23,9						-24,14	0,93
32-C			-22,9			-24,4		-23,6						-23,4	-23,58	0,62
33-C		-15,0		-23,4								-21,2			-19,87	4,36
34-C		-18,0		-23,2			-24,9	-20,4							-21,63	3,05
35-B		-18,3				-14,2									-16,25	2,90

Tableau 3 : $\delta^{13}\text{C}$ du CO₂ ‰ VPDB

Mesure de flux gaz émanant du sol (gaz rares et CH₄)

Aucun couplage autre que géographique et saisonnier n'a pu être établi entre la mesure et une variabilité quelconque des gaz rares (Rn, Ar et He). Il n'est pas nécessaire de recommander la poursuite de leur monitoring.

En revanche dans certains échantillons, les mesures réalisées ont mis en évidence quelques fois des teneurs en méthane extrêmement faible (de l'ordre de quelques ppm) mais significatives. L'occurrence de la présence de méthane dans les sols doit donc continuer à être surveillé, en y ajoutant un facteur seuil de 10 ppm. De la même manière que pour le CO₂, il serait intéressant d'y associer des contrôles supplémentaires tels qu'un nouveau prélèvement et une analyse sous 2 mois et mesure complémentaire du $\delta^{13}\text{C}$ de CH₄ ($\delta^{13}\text{C}$: -37,3 pour la gaz du réservoir de Rousse (données IFPEN)).

Le point 23 a été de nombreuses fois noyé, rendant impossible tout prélèvement et mesure. C'est un point qui à l'avenir n'est pas à retenir pour la phase de surveillance post-injection.

Conclusion et recommandations :

La précampagne, la surveillance pendant injection a donné lieu à des prélèvements et des mesures des gaz des sols et à l'interface sol/air en nombre et qualité suffisantes. Les données générées ne permettent pas d'établir une autre hypothèse que celle d'une origine biogénique du CO₂. Cependant, en raison de singularités rencontrées au cours des 5 années de campagnes, à données saisonnière et géographique équivalentes et sans couplage possible avec la température, il semble raisonnable de poursuivre sur les 3 prochaines années, une surveillance annuelle des flux en CO₂ et des teneurs CH₄ et CO₂ sur 34 des 35 points (*voir fichier excel*). Les prélèvements ne se faisant plus qu'en saison hivernale, les niveaux d'alerte restent identiques et les seuils d'alerte devront être adaptés à la saison unique des prélèvements (*voir discussion dans les paragraphes précédents et commentaires dans le fichier excel*). En cas de passage en seuil « anomalie », les mesures incriminées devront être répétées et corrélées avec un niveau de $\delta^{13}\text{C}$ inférieur à -28. Si la mesure est confirmée, des mesures complémentaires (*ref MGR-09-197*) seront à réaliser (*mesures identiques sur points environnants et à nouveau isotopie du carbone*).

Le point 23 souvent noyé est à éliminer. Cette surveillance devra se faire uniquement en début de saison hivernale (décembre) pour profiter de la faible activité biologique. Cela en facilitera d'autant plus la perception d'une occurrence thermogénique du CO₂.

A l'issue de la période de surveillance, un bilan devra être réalisé sur la base des données additionnelles. De nouvelles recommandations, une réévaluation des seuils, un espacement des mesures et du nombre de points pour aller jusqu'à la cloture de la surveillance devront être émises.

REFERENCES et ANNEXES

-> DOCUMENTS initiaux reçus le 9 juillet 2013 :

- Bilan intermédiaire d'exploitation du pilote de production, de captage, de transport et de stockage géologique de CO₂ (sommaire ; chapitre 2_v2 ; chapitre 3_v2 et chapitre 4_v2).

Demande de complément n°1 :

Suite à la réunion de mardi 16 juillet 2013 dans les locaux de la DREAL (Pau), veuillez trouver ci-dessous ma demande de documents complémentaires afin que je puisse mener à bien l'expertise :

- Carte de localisation des puits en HD (légende et localisation plus lisible)
- Photographie de chacun des sites de prélèvements
- Etude de la faune, de la flore et de l'activité bactérienne de chacun des sites de prélèvements
- Relevé météo synthétique au niveau des zones de prélèvements au long de la campagne d'injection.
- Références quand à la corrélation activité bactérienne/climat et la production de CO₂
- Tableau ou données des phases d'injection mieux définies afin de contrôler l'existence de phase de repos au moment des phases d'échantillonnages des gaz de sols.
- Nombres et pas d'échantillonnage avant et au cours des 4 années d'injection.
- Protocole détaillé, validation, précision, dates de mesure et contrôle des échantillonnages de flux et de concentration en CO₂ et CH₄
- Références, calculs de risque ou base de réflexion qui ont permis d'établir ces plans, la dimension des chambres d'accumulation et la nécessité d'avoir 5 occurrences simultanées pour déclencher un contrôle supplémentaire.
- Explication plus détaillée sur le facteur x80 (0,08 à 6,22) entre les valeurs extrêmes de CO₂ dans le sol
- Protocole de l'étude isotopique (carbone 13), nécessité de barres d'erreur, préciser les références ou la localisation des mesures effectuées sur le CO₂ prélevé par rapport à une droite de fractionnement ou activité bactérienne (référence).
- Y a t'il eu une mesure du $\delta^{13}\text{C}$ sur le méthane ? Si oui quel en a été le protocole ?
- Dans le texte (chapitre gaz de sol) beaucoup d'affirmations ou de conclusions arrivent sans références ou sans lien vers un document ou des données (notamment autres que les 2 dernières présentées ici).
- Existe t'il un document synthétique reprenant les conclusions et les recommandations de Total pour les 4 années à venir ?

-> DOCUMENTS reçus le 29 juillet 2013.

- **Carte des sites HD**
- **Photos des sites (x35)**
- **Rapports 2008 à 2013** (BRGM_RC-58066-FR ; BRGM-59853-GazSolsMars 2011 ; DRS-08-96412-14041_TOTAL-Rousse_4-11-08 ; DRS-10-109229-01258_TOTAL-UNIQUE ; DRS-12-126337-01400A_unique[1] ; DRS-13-133510-04854A_TOTAL-ROUSSE_mars13_unique ; INERIS_DRS-12-126337-05207A_Rapport BRGM-INERIS-unique ; Rapp_BRGM-INERIS_Total-Rousse_dec-12_DRS-13-133510-02373A_definitif[1] ; rapport INERIS-BRGM_nov2010 ; RC 57591 FR définitif ; RC-57019-FR définitif ; RP-59853-FR gal2 ; Suivi_Gaz desSols_Mars2010_RP-58602-FR ; TOTAL _ DRS-09-96412-08689A-UNIQUE).
- **Rapports annuels TEPF** (rapport annuel exploitation 2011 ; bilan de fonctionnement 2010 ; bilan annuel 2011 suivi environnemental ; bilan annuel suivi environnemental 2010 ; surveillance sismique – bilan 2011 ; surveillance sismique 2010 ; JCM 11_029 Pilote CO2 – Rapport annuel 2010 ; JCM 12_028 Pilote CO2 – Rapport annuel 2011 ; JCM 13_025 Pilote CO2 – Rapport annuel 2012).

Demande de complément n°2 :

Suite à la réunion du 10 septembre 2013 (CSTJF, Pau), vous trouverez ci-dessous mes demandes de compléments :

- dans le document de mars 2012 sous référence DRS-12-126337-05207A, il y a semble t'il une erreur de date ou de données dans les annexes au niveau du tableau de données % (CO₂ et He) en gaz de sol. La date de 4-6 décembre est retranscrite alors qu'on s'attend à voir le tableau de début mars 2012. Dans le même document il manque le tableau avec les données isotopie ($\delta^{13}\text{C}$) alors qu'on y fait référence dans le texte. Merci donc de compléter.

- est il possible d'avoir accès aux données $\delta^{13}\text{C}$ du CO₂ injecté, du CH₄ utilisé dans l'oxycombustion, du CO₂ et CH₄ présents dans Rousse avant l'injection. Y a t'il eu aussi de $\delta^{13}\text{C}$ sur le CO₂ atmosphérique dans le périmètre des 35 points de prélèvements?

- En ce qui concerne le réservoir de CO₂ de Montmiral (à coté de Valence), est il possible d'obtenir des données originelles de surveillance de gaz de sol (et leurs conditions) auprès de l'IFPEN, BRGM ou INERIS (sans passer par la publication dans Oil and Gas).

-> DOCUMENTS reçus le 11 septembre 2013.

- Monitoring géochimique (MFT04-004) sous référence R132/VR-CLB/12-13 (IFPEN, 03/05/12)
- Surface Gas Geochemistry above the natural CO₂ reservoir of Montmiral (Drôme, France), source tracking and gas exchange between the soil, biosphère and atmosphere. F. Gal et al. , **Oil & Gas Science and Technology** – Rev. IFP, **2010**, n°4, pp. 635-652.

- Soil gas (^{222}Rn , CO_2 , ^4He) behaviour over a natural CO_2 accumulation Montmiral area (Drôme, France) : geographical and temporal relationships. F. Gal et al. , **Journal of Environmental Radioactivity** , **2011**, 102, pp. 107-118.
- Development of methods for gaseous phase geochemical monitoring on the surface and in the intermediate overburden strata of geological CO_2 storage sites. Z. Pokryszka et al. , **Oil & Gas Science and Technology – Rev. IFP**, **2010**, n°4, pp. 653-666.
- **Manque toujours les données $\delta^{13}\text{C}$ des prélèvements de mars 2012.**

-> DOCUMENTS reçus le 27 septembre 2013.

- Site de Rousse - Programme de surveillance environnementale (MGR09-197) sous référence DGEP/SCR/RD/MGR 09-197 (TOTAL, 29/11/2009)