

**Réduction de l'effet de serre
par séquestration géologique minérale
in situ de CO₂ au sein de roches basiques**
Synthèse bibliographique et revue des
potentialités en France

Rapport final
BRGM/RP-53474-FR
décembre 2004

Document public

**Réduction de l'effet de serre
par séquestration géologique minérale
in situ de CO₂ au sein de roches basiques**
Synthèse bibliographique et revue des
potentialités en France
Rapport final

BRGM/RP-53474-FR
décembre 2004

J.C. Maréchal, P. Lachassagne

Mots clés : CO₂, Séquestration géologique, Minérale, Carbonatation, Roches basiques, France, DOM-TOM.

En bibliographie, ce rapport sera cité de la façon suivante :

J.C. Maréchal, P. Lachassagne (2004) – Réduction de l'effet de serre par séquestration géologique minérale *in situ* de CO₂ au sein de roches basiques. Synthèse bibliographique et revue des potentialités en France. Rapport final. BRGM RP-53474-FR, 51 p., 17 fig., 7 tabl.

© BRGM, 2004, ce document ne peut être reproduit en totalité ou en partie sans l'autorisation expresse du BRGM.

Synthèse

Le présent rapport constitue une première étude bibliographique définissant les différents types d'environnement où l'on trouve les roches les plus favorables à la séquestration minérale *in situ* du CO₂ en France. Pour chacun de ces environnements, les types de lithologies rencontrées ainsi que la nature des perméabilités et porosités des roches sont analysés.

Les roches les plus favorables sur la base de leur seule minéralogie sont : les roches magmatiques basiques et ultrabasiques telles que péridotites, serpentinites, gabbros, basaltes tholéitiques, voire andésites.

Outre la composition minéralogique spécifique de la roche aquifère, la séquestration minérale *in situ* requiert un certain nombre de contraintes similaires à celles requises par la séquestration géologique en aquifère profond :

- géologiquement, l'aquifère profond doit être recouvert par un aquiclude régional, qui, de préférence, doit également comprendre des structures de type « piège » ;
- le sommet de l'aquifère doit être localisé à plus de 800 m de profondeur ;
- en termes de propriétés des roches, la formation doit avoir une porosité et une perméabilité suffisantes ;
- d'un point de vue économique et écologique, les formations profondes adaptées au stockage de CO₂ doivent préférentiellement être localisées dans un voisinage proche des zones émettrices de CO₂.

D'un point de vue environnemental, il est également important de ne pas menacer un aquifère exploité ou potentiellement exploitable à des fins d'alimentation en eau potable, pour l'agriculture, l'industrie, etc..

Les milieux hydrogéologiques visés par la séquestration géologique en roches basiques sont complexes d'un point de vue géométrique (édifices volcaniques, complexes ophiolitiques...). Par ailleurs, leurs propriétés hydrodynamiques sont de type discontinu. L'estimation du potentiel de séquestration d'un site est dès lors plus complexe que pour des milieux poreux.

D'un point de vue géologique et hydrogéologique, les formations favorables en France à la séquestration géologique en roches basiques (séquestration minérale *in situ*) sont classées ci-dessous par ordre décroissant de potentiel :

- les complexes **volcaniques** :
 - les **îles volcaniques basaltiques** (Réunion, Polynésie, Mayotte...) sont constituées d'horizons puissants de roches essentiellement basiques aux propriétés hydrodynamiques favorables. La problématique cruciale réside dans l'efficacité du piégeage,

- les **îles volcaniques andésitiques** (Guadeloupe, Martinique) sont lithologiquement plus hétérogènes et comportent moins de roches basiques,
- le **volcanisme métropolitain** (Cantal, Mont-Dore). De faible puissance, il est peu évident d'y trouver un piège au-delà de la profondeur limite de 800 m ;
- les formations **ophiolitiques** :
 - la **Nouvelle Calédonie** est essentiellement composée d'un complexe ophiolitique. Des configurations favorables à la séquestration minérale *in situ* doivent y exister ; en particulier en bordure littorale, ce qui permettrait d'injecter dans des aquifères salins,
 - une incertitude géologique importante est associée à la géométrie des **ophiolites des Alpes/Corse/Pyrénées**. Ces roches, potentiellement fracturées, peuvent receler des « pièges » en leur sein. Néanmoins, il ne peut être exclu un taux élevé d'échec des forages,
 - le **plancher océanique** est situé à une profondeur et à une distance par rapport à la côte qui compliquent sensiblement sa valorisation. Une étude économique serait nécessaire pour évaluer l'intérêt de cette alternative.

Sommaire

1. Introduction	9
2. Séquestration minérale <i>in situ</i>	11
2.1. CONTEXTE	11
2.2. DÉFINITION.....	11
3. Formations favorables	13
3.1. MINÉRAUX FAVORABLES	13
3.2. ROCHES FAVORABLES.....	14
3.2.1. Basaltes	15
3.2.2. Serpentinites	16
3.2.3. Péridotites	17
3.2.4. Gabbros	17
3.2.5. Andésites	17
3.3. AUTRES FACTEURS	18
3.3.1. Géologie – couverture et piège	18
3.3.2. Profondeur	20
3.3.3. Propriétés du réservoir (perméabilité/porosité)	20
3.3.4. Localisation des émissions de CO ₂	21
3.3.5. Ressources en eau potable	23
4. Gisements de formations favorables	25
4.1. DANS LE MONDE	25
4.1.1. Basaltes du plancher océanique	25
4.1.2. Arcs volcaniques en zones de subduction	27
4.1.3. Basaltes intra-plaques.....	27
4.1.4. Complexes ophiolitiques	30
4.1.5. Aquifères salins profonds	32
4.2. EN FRANCE	33
4.2.1. Basaltes du plancher océanique	33
4.2.2. Volcans	36
4.2.3. Complexes ophiolitiques et gabbros	44

5. Conclusion – Hiérarchisation des formations potentiellement favorables 47

6. Bibliographie 49

Liste des figures

Figure 1 - Exemples de pièges structuraux sur des gisements d'hydrocarbures. 19

Figure 2 - Exemples de pièges possibles pour la séquestration minérale de CO₂ *in situ*. 19

Figure 3 - Localisation des principales sources d'émission de CO₂ en France (Bonijoly *et al.*, 2003). 22

Figure 4 - Carte d'isochrones du plancher océanique..... 25

Figure 5 - Coupe géologique schématique d'une croûte océanique..... 26

Figure 6 - Caractères internes majeurs d'une coulée élémentaire (épaisseur de quelques mètres), d'un épanchement de lave basaltique de type Columbia River (d'après McGrail *et al.*, 2003). 29

Figure 7 - Colonne synthétique et théorique d'un complexe ophiolitique (Foucault et Raoult, 1988)..... 31

Figure 8 - Localisation et âges des principaux complexes ophiolitiques (d'après Newall *et al.*, 1999). 32

Figure 9 - Coupe structurale du golfe du Lion (d'après Seranne, 1999). 34

Figure 10 - Cadre géologique et structural des profils sismiques SWAT et WAM (d'après Pinet *et al.*, 1991). 1 : principaux dépocentres mésozoïques. 2 : bordure du domaine sédimentaire. 3 : batholite de granite. 4 : faille. 5 : faille normale. 6 : sondage DSDP. 35

Figure 11 - Passage entre croûte continentale et croûte océanique le long du profil WAM au niveau de la mer Celtique (Pinet *et al.*, 1991). 36

Figure 12 - Aires d'affleurement de basaltes, andésites, basanites, hawaïtes et tephrites en France métropolitaine d'après la carte géologique de la France à 1/1 000 000 (Bailly, 2004))..... 37

Figure 13 - Coupe d'une coulée « aa » en mouvement. 40

Figure 14 - Affleurements de péridotites en France (d'après la carte géologique de France à 1/1 000 000 (Bailly, 2004))..... 44

Figure 15 - Coupe géologique au travers des Alpes françaises passant par le massif de Belledonne (d'après Roure *et al.*, 1990) 45

Figure 16 - Coupe de la Corse alpine - en gris : schistes lustrés, en noir : ophiolites - (d'après Caron, 1993). 45

Figure 17 - Affleurements de gabbros en France (d'après la carte géologique de France à 1/1 000 000 (Bailly, 2004))..... 46

Liste des tableaux

Tableau 1 - Liste des minéraux et de leur réaction de carbonatation.	13
Tableau 2 - Roches abondantes riches en magnésium et calcium où R_C est le rapport de masse entre la roche nécessaire à la fixation de CO ₂ et la masse de carbone R_{CO_2} est le rapport de masse correspondant entre roche et CO ₂ (Lackner <i>et al.</i> , 1995 ; Wu <i>et al.</i> , 2001).	15
Tableau 3 - Composition moyenne d'un basalte (Cox <i>et al.</i> , 1979).	15
Tableau 4 - Teneurs en MgO de serpentinites et roches associées (Goff <i>et al.</i> , 1997).	16
Tableau 5 - Contenu en MgO (Coleman, 1977) d'une variété de péridotites ophiolitiques (* : Lanzo – Italie).	17
Tableau 6 - Composition moyenne d'une andésite (d'après Wedepohl, 1969).	18
Tableau 7 - Extension et volumes des principales provinces ignées (LIP : "Large Igneous Provinces") *Estimé - Volumes estimés à partir de la surface et avec des épaisseurs moyennes de 70 m (HCB), 4 km (KEW), et 100 m (NB/HB), d'après (McGrail <i>et al.</i> , 2003).	28

1. Introduction

Devant la menace d'un bouleversement climatique de grande ampleur, une réduction drastique et rapide des émissions anthropiques de gaz à effet de serre dans l'atmosphère est aujourd'hui incontournable. Si les solutions passent en priorité par des mesures préventives dans le domaine de l'énergie, la récupération du CO₂ au niveau des principales sources d'émissions industrielles puis son stockage à long terme est une solution transitoire d'accompagnement qui apparaît, pour beaucoup, de plus en plus crédible. Une dynamique est même enclenchée au niveau international vers la prise en compte de ces technologies dans les instruments prévus par le protocole de Kyoto (mécanismes de flexibilité). Au niveau de la recherche, de grandes avancées ont d'ores et déjà été réalisées dans le domaine du stockage géologique du CO₂ et l'injection en réservoirs souterrains pourrait être largement mise en œuvre à relativement court terme. Aux côtés de ces méthodes, d'autres existent, à un stade moins avancé, mais qui pourraient montrer un fort potentiel à moyen ou long terme. Ainsi, un intérêt croissant est porté aux processus chimiques et biochimiques dans la conversion du CO₂ en produits stables et/ou valorisables. Parmi ces technologies innovantes, la séquestration minérale du CO₂, qui permettrait de stocker le CO₂ sous forme de carbonates, est celle qui concentre les plus gros efforts de recherche dans le monde.

L'objectif du projet SEQMIN du BRGM est d'évaluer la validité du concept de séquestration minérale du CO₂ comme moyen de limitation des émissions industrielles de CO₂. Les actions, programmées sur 6 mois début 2004, correspondent à une phase exploratoire à l'issue de laquelle on devra avoir acquis un argumentaire suffisant pour décider de la pertinence de poursuivre les recherches et, si tel est le cas, de le faire dans les voies qui auront été jugées les plus prometteuses.

Le projet étudie les deux principales options de séquestration minérale : *ex situ* (module 1) et *in situ* (module 2).

Le présent rapport constitue une première étude bibliographique définissant les différents types d'environnement où l'on trouve les roches les plus favorables à la séquestration minérale *in situ* du CO₂ (aquifères en roches magmatiques ou roches volcaniques basiques), en France. Pour chacun de ces environnements, les types de lithologies rencontrées ainsi que la nature des perméabilités et porosités des roches sont analysés. Parallèlement à l'identification d'aquifères potentiels qui présentent des caractéristiques favorables au stockage de CO₂ (porosité, perméabilité, confinement), il est vérifié qu'ils ne présentent pas d'autre valorisation potentielle, en particulier pour l'exploitation des eaux souterraines.

2. Séquestration minérale *in situ*

2.1. CONTEXTE

Parmi les options considérées pour aider à réduire l'effet des émissions anthropiques de CO₂, il y a la **séquestration géologique** dans des anciens réservoirs d'hydrocarbures dans le déclin ou épuisés, des couches de charbon et des formations salines profondes, voire dans des aquifères profonds. Une des incertitudes liées à la séquestration géologique est le risque à long terme associé au stockage de grandes quantités de CO₂ en subsurface. Une libération de CO₂ pourrait se produire à partir d'un défaut du réservoir dû à des événements sismiques, une surpression, ou tout autre problème mécanique. En plus du retour dans l'atmosphère du CO₂ stocké, un risque sanitaire potentiel existe car le CO₂ est plus lourd que l'air, dès lors il tend à rester près de la surface du sol avant de se disperser.

La **séquestration minérale**, la fixation chimique du CO₂ par réaction chimique avec le calcium et le magnésium pour former des carbonates stables, est proposée comme une alternative de séquestration permanente du carbone réduisant les risques à long terme de fuite de CO₂.

2.2. DÉFINITION

La séquestration minérale implique la réaction de CO₂ avec des minéraux pour former des carbonates géologiquement stables, c'est-à-dire la carbonatation minérale. Cette idée fut d'abord proposée par Seifritz (1990).

Elle repose sur le fait qu'en présence de CO₂, les minéraux contenant des quantités substantielles d'oxydes de magnésium et de calcium peuvent subir une réaction de carbonatation. Les réactions basiques sont illustrées par les oxydes de Ca et Mg.



Des oxydes purs de magnésium et calcium sont rarement trouvés dans la nature, mais de nombreux minéraux communs peuvent être considérés comme une combinaison chimique de ces oxydes avec d'autres pour former une matrice de silicates.

Lorsque l'on injecte du CO₂ dans un réservoir sédimentaire (renfermant de l'eau, des hydrocarbures ou de l'eau salée par exemple – ces deux dernières possibilités correspondant aux options « classiques » de la séquestration géologique), une partie du CO₂ se trouve convertie en carbonates et est donc séquestrée sous forme minérale. Mais il s'agit là d'un processus limité, au moins à l'échelle de temps humaine, et le

« piégeage minéralogique » est alors le terme employé pour désigner ce processus (par opposition au « piégeage hydrodynamique »).

En revanche, par « **séquestration minérale** », on désigne bien une option de séquestration à part entière où le processus de piégeage devient le processus majeur qui guide le devenir du CO₂, soit que :

- l'on maîtrise les paramètres chimiques et physiques favorisant la conversion du CO₂ en carbonates (matériaux adaptés et préparés, température, pression, biologie du système...) ce qui implique une mise en œuvre en milieu industriel et l'on parle alors de « **séquestration minérale *ex situ*** » ;

ou que :

- l'injection soit réalisée dans un milieu naturel dont la chimie favorise largement le piégeage minéral du CO₂ : réservoirs aquifères dans des roches basiques d'origine magmatique ; et l'on parle alors de « **séquestration minérale *in situ*** ».

Il est à noter que seule la séquestration minérale *ex situ* élimine définitivement la contrainte d'un monitoring lourd et coûteux des sites et elle présente de ce fait un avantage considérable sur toutes les autres options de séquestration du CO₂. En fait, la séquestration minérale *in situ*, objet du présent rapport, relève davantage de la séquestration géologique à la différence qu'elle favorise la précipitation du carbone. Elle concerne dès lors des environnements géologiques spécifiques du point de vue de leur composition minéralogique.

3. Formations favorables

3.1. MINÉRAUX FAVORABLES

Il a été démontré que les silicates de calcium et magnésium ordinaires s'altèrent en leurs carbonates respectifs par une réaction légèrement exothermique et sous des conditions thermodynamiquement favorables (Lackner *et al.*, 1995). Ce processus se produit naturellement à l'échelle des temps géologiques. Les principaux minéraux ainsi que la réaction de carbonatation associée sont donnés au tableau 1.

Mineral and Carbonation Reaction	
Calcium Oxide	$\text{CaO} + \text{CO}_2 \rightarrow \text{CaCO}_3$
Magnesium Oxide	$\text{MgO} + \text{CO}_2 \rightarrow \text{MgCO}_3$
Calcium Hydroxide	$\text{Ca}(\text{OH})_2 + \text{CO}_2 \rightarrow \text{CaCO}_3 + \text{H}_2\text{O}$
Magnesium Hydroxide	$\text{Mg}(\text{OH})_2 + \text{CO}_2 \rightarrow \text{MgCO}_3 + \text{H}_2\text{O}$
Wollastonite	$\text{CaSiO}_3 + \text{CO}_2 \rightarrow \text{CaCO}_3 + \text{SiO}_2$
Clinoenstatite (Pyroxene)	$\text{MgSiO}_3 + \text{CO}_2 \rightarrow \text{MgCO}_3 + \text{SiO}_2$
Forsterite (Olivine)	$\frac{1}{2}\text{Mg}_2\text{SiO}_4 + \text{CO}_2 \rightarrow \text{MgCO}_3 + \frac{1}{2}\text{SiO}_2$
Diopside (Pyroxene)	$\frac{1}{2}\text{CaMg}_2\text{Si}_2\text{O}_6 + \text{CO}_2 \rightarrow \frac{1}{2}\text{CaCO}_3 + \frac{1}{2}\text{MgCO}_3 + \text{SiO}_2$
Grossular (Garnet)	$\frac{1}{3}\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{Si}_3\text{O}_{12} + \text{CO}_2 \rightarrow \text{CaCO}_3 + \frac{1}{3}\text{Al}_2\text{O}_3 + \text{SiO}_2$
Anorthite (Feldspar)	$\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8 + \text{CO}_2 \rightarrow \text{CaCO}_3 + \text{Al}_2\text{O}_3 + 2\text{SiO}_2$
Anorthite Glass	$\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8 + \text{CO}_2 \rightarrow \text{CaCO}_3 + \text{Al}_2\text{O}_3 + 2\text{SiO}_2$
Pyrope (Garnet)	$\frac{1}{3}\text{Mg}_3\text{Al}_2\text{Si}_3\text{O}_{12} + \text{CO}_2 \rightarrow \text{MgCO}_3 + \frac{1}{3}\text{Al}_2\text{O}_3 + \text{SiO}_2$
Talc	$\frac{1}{3}\text{Mg}_3\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_2 + \text{CO}_2 \rightarrow \text{MgCO}_3 + \frac{4}{3}\text{SiO}_2 + \frac{1}{3}\text{H}_2\text{O}$
Tremolite (Amphibole)	$\frac{1}{7}\text{Ca}_2\text{Mg}_5\text{Si}_8\text{O}_{22}(\text{OH})_2 + \text{CO}_2 \rightarrow \frac{2}{7}\text{CaCO}_3 + \frac{5}{7}\text{MgCO}_3 + \frac{8}{7}\text{SiO}_2 + \frac{1}{7}\text{H}_2\text{O}$
Chrysotile (Serpentine)	$\frac{1}{3}\text{Mg}_3\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4 + \text{CO}_2 \rightarrow \text{MgCO}_3 + \frac{2}{3}\text{SiO}_2 + \frac{2}{3}\text{H}_2\text{O}$

Tableau 1 - Liste des minéraux et de leur réaction de carbonatation.

Ces minéraux, associés sous la forme de roches diverses, sont présents dans des contextes géologiques différents.

3.2. ROCHES FAVORABLES

De façon à piéger de grandes quantités de CO₂ économiquement, il est nécessaire d'utiliser des roches communes qui sont riches en magnésium ou calcium. Bien entendu, les calcaires, dolomites et magnésite sont exclus car ils sont déjà carbonatés. Au contraire, les roches ignées sont essentiellement exemptes de carbonates et sont donc particulièrement bien adaptées à la séquestration de CO₂ (Huijgen et Comans, 2003). Parmi elles, les roches les plus favorables sur la base de leur seule minéralogie sont :

- les roches magmatiques basiques contenant peu de silice et riches en Mg, Fe et Ca ;
- les roches magmatiques ultrabasiques contenant moins de 45 % en poids de silice et très riches en Mg, Fe et Ca (plus de 40 %).

Les roches (minéraux) silicates contenant des oxydes de calcium et de magnésium sont fréquentes à travers le monde. Une sélection de roches abondantes qui sont riches en oxydes de magnésium et calcium a été compilée par Lackner *et al.* (1995). Les résultats de cette étude sont illustrés au tableau 2 . Les concentrations en oxydes de calcium, et donc la part de silicate réactive, sont de l'ordre de 9 à 13 % (tabl. 2), tandis que les oxydes de magnésium peuvent atteindre jusqu'à 50 % ou plus, bien qu'il doit être noté que ces oxydes (de magnésium et calcium) sont enfermés dans la matrice de silicates. D'une manière générale, les oxydes de magnésium sont donc plus abondants que les oxydes de calcium. Ceci indique clairement que d'un point de vue du processus minéralogique, des quantités considérablement plus faibles de roche contenant du magnésium seraient nécessaires pour toute réaction de séquestration en comparaison avec les roches contenant des oxydes de calcium.

Les principales roches ultramafiques candidates riches en magnésium sont les dunités¹, péridotites² et serpentinites³. C'est leur contenu en olivine qui constitue l'atout des premières. Les gisements d'olivine peuvent contenir des produits d'altération tels que serpentine et talc, ce qui ne constitue pas un handicap pour la carbonatation. La serpentine peut prendre la forme d'antigorite, de lizardite et de chrysotile. Le principal candidat contenant du calcium est la wollastonite. Les basaltes et gabbros contiennent de l'ordre de 10 % chacun d'oxydes de calcium et de magnésium.

¹ **Dunite** : péridodite contenant 90 % ou plus d'olivine

² **Péridotite** : roche magmatique grenue avec 90 à 100 % de minéraux ferro-magnésiens avec olivine dominante accompagnée de pyroxène et spinelle principalement.

³ **Serpentinite** : roche dérivant, par altération et/ou métamorphisme, de roches magmatiques basiques ou ultrabasiques, et composée en totalité, ou presque, de serpentine (chrysotile et/ou antigorite).

Type de roche	MgO (% poids)	CaO (% poids)	R _C	R _{CO₂}
Péridotite : dunite	49,5	0,3	6,8	1,8
Péridotite : harzburgite ⁴	45,4	0,7	7,3	2,0
Péridotite : lherzolite ⁵	28,1	7,3	10,1	2,7
Serpentinite	~40,0	~0,0	~8,4	~2,3
Gabbro	~10,0	~13,0	~17,0	~4,7
Basalte tholéitique	6,2	9,4	26,0	7,1

Tableau 2 - Roches abondantes riches en magnésium et calcium où R_C est le rapport de masse entre la roche nécessaire à la fixation de CO₂ et la masse de carbone

R_{CO₂} est le rapport de masse correspondant entre roche et CO₂ (Lackner et al., 1995 ; Wu et al., 2001).

3.2.1. Basaltes

D'immenses entités basaltiques sont présentes à travers le monde et ont été reconnues comme jouant un rôle important dans le cycle global du carbone. De grandes provinces magmatiques représentent d'immenses affleurements de roches mafiques et incluent les basaltes continentaux, les marges volcaniques passives, les plateaux océaniques et les roches intrusives associées.

D'un point de vue séquestration, c'est la teneur en CaO des basaltes qui est importante. Des valeurs moyennes basées sur 26 373 analyses (Cox et al., 1979) sont données au tableau 3.

SiO ₂	TiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	FeO	MnO	MgO	CaO	Na ₂ O	K ₂ O	P ₂ O ₅
49,2	1,84	15,74	3,79	7,13	0,2	6,73	9,47	2,91	1,1	0,35

Tableau 3 - Composition moyenne d'un basalte (Cox et al., 1979).

Selon Hall (1987), les principales variétés de basaltes sont :

- les **basaltes du plancher océanique** : ils sont tholéitiques en composition et sont formés à des limites de plaques divergentes telles que les rides médio-océaniques ;
- les **arcs volcaniques andésitiques** : qui sont formés à la limite de plaques convergentes, aussi bien aux arcs insulaires. Ils varient de composition tholéitique à

⁴ **Harzburgite** : péridotite (contenant 40 à 90 % d'olivine) à orthopyroxène.

⁵ **Lherzolite** : péridotite (contenant 40 à 90 % d'olivine) à clino- et orthopyroxène.

alcaline. Généralement, ces roches sont riches en K₂O et pauvres en MgO en comparaison avec les basaltes du plancher océanique ;

- **basaltes intra-plaques** (y compris « hot spots ») : ils peuvent apparaître en contexte océanique ou continental, et possèdent souvent une composition variée, du tholéitique au fortement alcalin.

D'après McGrail *et al.* (2003), l'injection de CO₂ dans un aquifère basaltique va décroître le pH de l'eau souterraine de valeurs entre 8,5 et 9,2 à 3,5 ou moins. Les phases riches en fer telles que le pyroxène, l'olivine, spinelle et la mésostase vitreuse sont instables à pH bas et se dissolvent. L'ion ferreux largué dans la phase aqueuse réagit avec le CO₂ pour former des minéraux de carbonate de fer tels que la sidérite qui séquestre définitivement le CO₂. Les auteurs ont démontré, au moyen d'essais en laboratoire, le potentiel des formations basaltiques à convertir le CO₂ injecté sous forme de solide minéral.

3.2.2. Serpentinites

Les serpentinites sont des roches composées essentiellement des minéraux de serpentine lizardite, chrysotile et antigorite, avec accessoirement magnétite, brucite et des silicates de Mg et Ca-Al.

Les serpentinites sont secondaires et formées par l'altération chimique de péridotite, pyroxène, gabbro, marbre et dolomite siliceuse. Le processus d'altération peut être pénétratif au travers de la roche originelle, ou le long des fractures et joints qui conduisent à de la serpentinite sous forme de veines.

Il est bien connu que les minéraux carbonatés de magnésite, calcite et dolomite remplacent la serpentinite selon un processus de carbonatation. Ce processus se produit à faible température, résultant en un assemblage de talc + carbonate ou quartz + carbonate, avec ou sans serpentine résiduelle.

Comme point de départ de la réflexion sur le potentiel de séquestration de CO₂ des serpentinites et de leurs roches associées, le tableau 4 donne la teneur en MgO d'un certain nombre d'échantillons (Goff *et al.*, 1997).

Echantillon	1	2	3	4	5	6
Lieu	Del Puerto, Californie	Del Puerto, Californie	San Mateo, Californie	Wilbur prings, Californie	Complexe de Baltimore, Maryland	Montagne Belvidere, Vermont
Type	Péridotite altérée	Serpentinite massive	Serpentinite cisailée	Serpentinite massive	Serpentinite	Serpentinite
MgO %	42,5	34,7	33,1	36,2	35,1	38,0

Tableau 4 - Teneurs en MgO de serpentinites et roches associées (Goff *et al.*, 1997).

3.2.3. Péridotites

Péridotite est un terme générique pour définir un groupe de roches avec une minéralogie assez similaire. Les péridotites consistent en plus de 90 % d'olivine, pyroxène et hornblende, l'olivine étant prédominante. Les autres minéraux présents incluent le plagioclase, la chromite et grenat.

Toutes les péridotites sont riches en Mg et ont un rapport Mg/Fe élevé. Elles sont fréquemment altérées en serpentinites ; les deux types de roches sont donc souvent trouvés ensemble.

La plupart des péridotites alpines sont constituées d'olivine forsterite riche en magnésium, avec des quantités plus faibles d'orthopyroxène riche en Mg, de clinopyroxène et de chromite. Les péridotites alpines typiques contiennent plus de 10 % d'orthopyroxène et sont appelées harzburgites, tandis que si la composition augmente au-dessus de 10 % de clinopyroxène, la roche est appelée lherzolite. Les péridotites avec plus de 90 % d'olivine sont appelées dunités.

En ce qui concerne la capacité de séquestration potentielle, le contenu en MgO (Coleman, 1977) d'une variété de dunités, harzburgites et lherzolites est illustrée au tableau 5.

Dunités	50,6	49,8	47,7	50,9	50,3	48,1	49,3	49,1	49,7		
Harzburgites	45,9	45,3	44,4	45,7	45,2	39,6	44,7	48,1	45,7	45,2	48,4
Lherzolites	38,9	39,6	11,3	9,9	40,9*	41,3					

Tableau 5 - Contenu en MgO (Coleman, 1977) d'une variété de péridotites ophiolitiques (* : Lanzo – Italie).

3.2.4. Gabbros

Le gabbro est une roche magmatique plutonique (la roche effusive équivalente est le basalte), composée de plagioclase subautomorphe (An > 50 : labrador, bytownite, parfois anorthite) et de pyroxène interstitiel, secondairement de hornblende brune, d'olivine, de biotite.

Le gabbro est souvent associé à des péridotites dans les complexes ophiolitiques.

3.2.5. Andésites

L'andésite est une roche magmatique effusive (la roche plutonique équivalente est la diorite), microlitique fluidale à verre peu abondant, souvent bulbeuse à aspect finement scoriacé et à vacuoles. Les phénocristaux sont rares : plagioclases, biotite, hornblende ou pyroxènes.

Leur contenu en oxydes, sur la base d'une moyenne de 49 analyses, est donné au tableau 6.

SiO ₂	TiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	FeO	MnO	MgO	CaO	Na ₂ O	K ₂ O	P ₂ O ₅
54,2	1,3	17,2	3,5	5,5	0,1	4,4	7,9	3,7	1,1	0,3

Tableau 6 - Composition moyenne d'une andésite (d'après Wedepohl, 1969).

3.3. AUTRES FACTEURS

Outre la composition minéralogique spécifique de la roche aquifère, la séquestration minérale *in situ* requiert un certain nombre de contraintes similaires à celles requises par la séquestration géologique en aquifère profond.

De la littérature existante (Koide *et al.*, 1992 ; van der Meer, 1992), il apparaît que les formations adaptées au stockage géologique de CO₂ en aquifère profond doivent satisfaire un certain nombre de conditions, parfois restrictives (Bachu *et al.*, 1994) :

- géologiquement, l'aquifère profond doit être recouvert par un aquiclude régional, qui, de préférence, doit également comprendre des structures de type « piège ». Cette dernière condition est particulièrement importante pour du CO₂ non miscible et plus léger que l'eau ;
- d'un point de vue physique et géochimique, le sommet de l'aquifère doit être localisé à plus de 800 m de profondeur pour disposer de CO₂ à l'état supercritique ;
- en termes de propriétés des roches, la formation doit avoir une porosité et une perméabilité suffisantes. Plus particulièrement, la perméabilité proche du puits devrait être élevée pour des raisons d'injection ;
- d'un point de vue économique et écologique, les formations profondes adaptées au stockage de CO₂ doivent être préférentiellement localisées dans un voisinage proche des zones émettrices de CO₂.

D'un point de vue environnemental, il est important de considérer une cinquième condition, à savoir ne pas menacer un aquifère exploité ou potentiellement exploitable à des fins d'alimentation en eau potable, pour l'agriculture, l'industrie, etc.. En effet, l'injection de CO₂ et la carbonatation qui en résulte d'une part détériorent le chimisme de l'eau souterraine et limitent d'autre part les capacités de stockage et d'exploitation de l'aquifère en réduisant, respectivement, sa porosité et sa perméabilité.

3.3.1. Géologie – couverture et piège

La présence d'une couverture aquiclude et de structures « pièges » tels que ceux à l'origine des gisements d'hydrocarbures (fig. 1) permet de réduire considérablement les risques de fuite de CO₂ vers la surface après injection dans la formation réservoir.

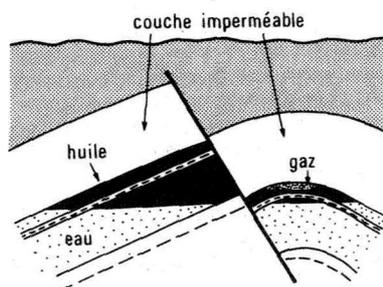


Figure 1 - Exemples de pièges structuraux sur des gisements d'hydrocarbures.

Dans le cadre de roches réservoir volcaniques telles que celles visées dans le cadre de la séquestration minérale *in situ*, les pièges typiques seront essentiellement liés à des formations sédimentaires peu perméables reposant en discordance sur les formations volcaniques selon le schéma de la figure 2a ou associées à une faille selon la figure 2b. Des pièges intra formations volcaniques peuvent également exister.

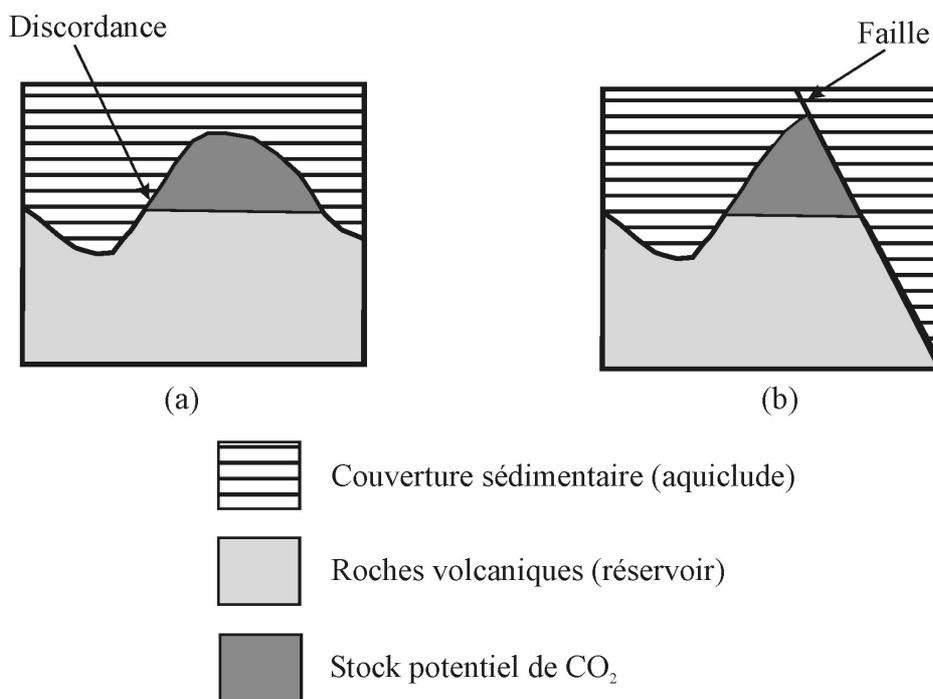


Figure 2 - Exemples de pièges possibles pour la séquestration minérale de CO₂ *in situ*.

Certains auteurs considèrent toutefois que la contrainte de la présence d'une couverture aquiclude peut être contournée. Ainsi, à titre d'exemple, les formations profondes du bassin de l'Alberta satisfont à une autre contrainte qui est celle du temps de résidence du CO₂. Selon les auteurs (Bachu *et al.*, 1994), dans cet aquifère à faible perméabilité et faible gradient hydraulique, une fois en dehors du rayon d'influence du puits d'injection, le CO₂ dissous se déplacera à une vitesse extrêmement faible, avec

un temps de résidence dans l'aquifère de l'ordre du million d'années. Etant donné ces longs temps de résidence, il n'y a plus besoin d'un piège fermé dans les formations régionales comme condition de stockage de CO₂. Le piégeage du CO₂ à l'échelle de temps géologique dans des aquifères régionaux profonds, dû à une vitesse d'écoulement très faible, est appelé « **piégeage hydrodynamique** », car il dépend du régime hydrodynamique de l'eau de l'aquifère (Bachu *et al.*, 1994).

Dans cette perspective, la possibilité de stocker du CO₂ en l'absence de couverture imperméable constitue un des avantages déterminants de la séquestration minérale par rapport à la séquestration géologique classique. Il conviendra alors de raisonner en terme de temps de séjour dans l'aquifère par rapport à la cinétique de carbonatation. Les données sur la cinétique de carbonatation *in situ* sont encore rares. Certains auteurs (Bachu *et al.*, 1994) mentionnent des durées de l'ordre de plusieurs milliers d'années pour une carbonatation de 90 % de CO₂ injecté.

3.3.2. Profondeur

Les recherches de van der Meer (1992) montrent qu'il est préférable d'injecter le CO₂ à des profondeurs supérieures à 800 m, où le CO₂ est à l'état supercritique et occupe un volume minimal.

Profondeur et structure du réservoir (y compris présence éventuelle de piège) constituent des paramètres conditionnant la possibilité d'effectuer de la séquestration minérale *in situ*. Dès lors, contrairement à la séquestration minérale *ex situ* où les affleurements en surface de roches basiques à ultrabasiques sont répertoriés, l'information en profondeur et les coupes géologiques des occurrences de ces roches sont primordiales pour la séquestration minérale *in situ*. Dans la suite de ce rapport, on s'attachera dans la mesure du possible à illustrer les contextes investigués au moyen des coupes géologiques disponibles plutôt que de cartes géologiques afin de permettre au lecteur d'appréhender les contextes structuraux en relation avec les contraintes nécessaires au stockage *in situ*.

3.3.3. Propriétés du réservoir (perméabilité/porosité)

a) Perméabilité

Les simulations numériques d'injection de CO₂ supercritique montrent que la perméabilité est un des principaux paramètres contrôlant le stockage de CO₂ dans les aquifères et les réservoirs d'hydrocarbures épuisés (van der Meer, 1992). Pour des aquifères à faible perméabilité (moins de 0,025 μm² ou 25 md), ces simulations montrent qu'il y aura de forts gradients de pressions près du puits. Donc, une perméabilité élevée de l'aquifère serait souhaitable. D'autre part, la solubilité du CO₂ dépend essentiellement de la pression (augmentation de la solubilité lorsque P augmente), de la température (diminution de la solubilité lorsque T augmente) et de la salinité de l'eau de formation (diminution de la solubilité lorsque S augmente) (Koide *et al.*, 1992). Quand il est dissous dans l'eau, le transport de CO₂ dans l'aquifère se produit par diffusion, dispersion et advection.

Dès lors, une très faible vitesse de l'eau (c'est-à-dire le produit de la perméabilité par le gradient hydraulique régnant dans l'aquifère) est un pré requis essentiel pour du stockage à long terme de CO₂ à l'état dissous (Koide *et al.*, 1992). Dans le cas de la séquestration minérale, comme évoqué plus haut, cette condition est moins contraignante. En fait, il conviendra de considérer le rendement global de l'opération pour une durée de stockage donnée, c'est-à-dire la masse de CO₂ définitivement séquestré par rapport à la masse totale de CO₂ injecté (ou masse injectée - masse perdue/masse injectée). Donc, il semble que **pour des raisons d'injection, la perméabilité de l'aquifère doit être relativement élevée à l'échelle du puits (Bachu *et al.*, 1994). Cependant, elle ne doit pas forcément être faible à l'échelle de l'aquifère comme ces mêmes auteurs le suggèrent.** Au contraire, la disponibilité d'un aquifère à perméabilité et porosité élevées devrait permettre de réduire les coûts d'injection en limitant, en particulier, le nombre de forages d'injection.

La précipitation de carbonate peut réduire la perméabilité de l'aquifère. Cependant, la dissolution est le processus prédominant dans les premiers stades de la réaction géochimique dans un aquifère silicaté (Bachu *et al.*, 1994). Donc, à une échelle locale proche du puits d'injection, la porosité et la perméabilité de l'aquifère devraient augmenter. La précipitation prendra place dans la région éloignée du puits pendant une période très longue. Durant ce temps, les eaux de formation chargées en CO₂ seront exposées à une très grande masse de roche, augmentant le volume de CO₂ immobilisé en souterrain. En fait, durant des milliers d'années, ces réactions avec les minéraux de base dans les aquifères peuvent éliminer jusqu'à 90 % du CO₂ initialement injecté (Bachu *et al.*, 1994).

b) Porosité

La capacité de stockage de CO₂ des aquifères dépend évidemment du volume de l'aquifère, de sa **porosité**, de la saturation en CO₂ et de son efficacité de déplacement.

La précipitation de carbonate peut réduire la porosité de l'aquifère suite à un accroissement du volume de minéral lié à la capture de CO₂ (exemple de la réaction du feldspath calcique). En réalité, cet accroissement n'est pas très fort. Dans le cas d'une porosité efficace de 10 % et d'un contenu de 5 % (en poids) d'anorthite (feldspath Ca), la porosité efficace serait réduite à 9 % seulement (Gunter *et al.*, 1993). D'un autre côté, le volume de fluide serait réduit de 10 à 7 % par cette réaction. Il en résulte un gain net en volume équivalent à 1 % de porosité efficace (Bachu *et al.*, 1994).

3.3.4. Localisation des émissions de CO₂

L'efficacité écologique et économique d'un stockage de CO₂ dépend en partie de la distance entre le lieu d'émission du CO₂ et le site potentiel de stockage. Le stockage étant destiné aux émissions concentrées de CO₂ telles que celles des centrales thermiques et des industries, les sites de stockage potentiel situés à proximité de ces zones industrielles seront privilégiés.

La figure 3 indique la localisation des principales sources d'émission de CO₂ en France. Il s'agit principalement de centrales thermiques, cimenteries, raffineries et

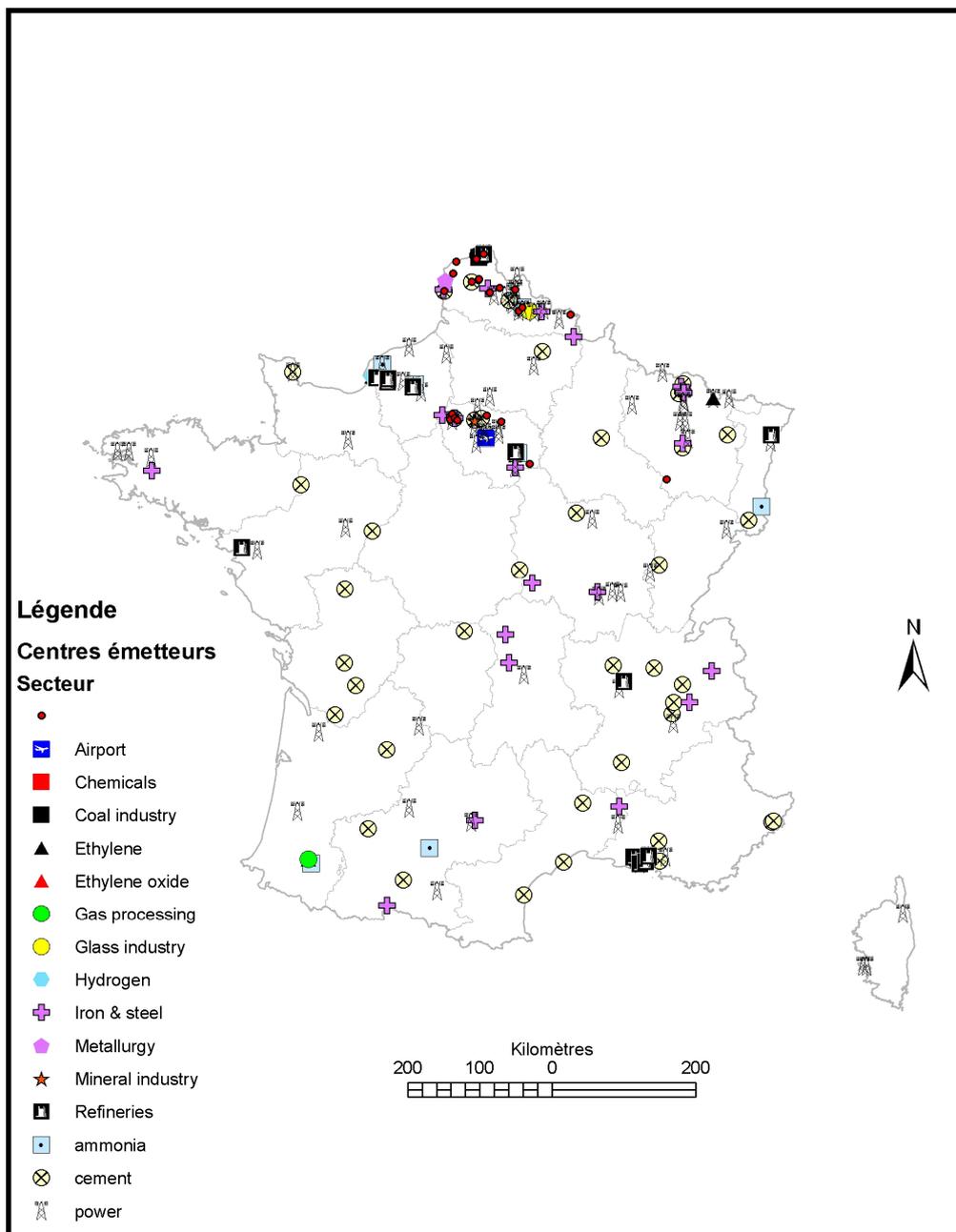


Figure 3 - Localisation des principales sources d'émission de CO₂ en France (Bonjoly et al., 2003).

industries sidérurgiques. Les régions qui comptent les plus grandes concentrations en sources d'émission de CO₂ sont :

- de la région parisienne (centrales thermiques) au Havre où les raffineries dominent ;
- la région Rhône-Alpes de Lyon - Grenoble où les cimenteries dominent à Marseille où les raffineries sont nombreuses en bordure de mer ;
- la région Nord – Pas de Calais où les émissions sont d'origine très diverses, avec une dominance des centrales thermiques.

3.3.5. Ressources en eau potable

L'injection de CO₂ dans un aquifère va altérer la qualité de l'eau souterraine au moins temporairement. Par ailleurs, la précipitation de carbonates tend à réduire la porosité et la perméabilité de l'aquifère de façon irréversible. Dès lors, la séquestration minérale *in situ* de CO₂ dans un aquifère risque très probablement de rendre cet aquifère inexploitable à l'avenir. Il convient dès lors de vérifier que l'aquifère réservoir visé n'est pas le siège d'une ressource en eau stratégiquement et/ou économiquement importante.

Cette contrainte est toutefois modérée par les profondeurs d'investigation envisagées (> 800 m). En effet, hormis dans le bassin de Paris, il est rare d'exploiter des aquifères à de telles profondeurs. Dans une perspective d'avenir, s'il est nécessaire de faire appel à des aquifères très profonds dans l'optique de l'utilisation de leur eau, il est probable que ceux-ci soient des aquifères à fort potentiel comme les aquifères sédimentaires contrairement à des aquifères en roches magmatiques basiques.

4. Gisements de formations favorables

4.1. DANS LE MONDE

4.1.1. Basaltes du plancher océanique

La carte suivante (fig. 4) indique la répartition et l'âge de la croûte océanique à l'échelle mondiale.

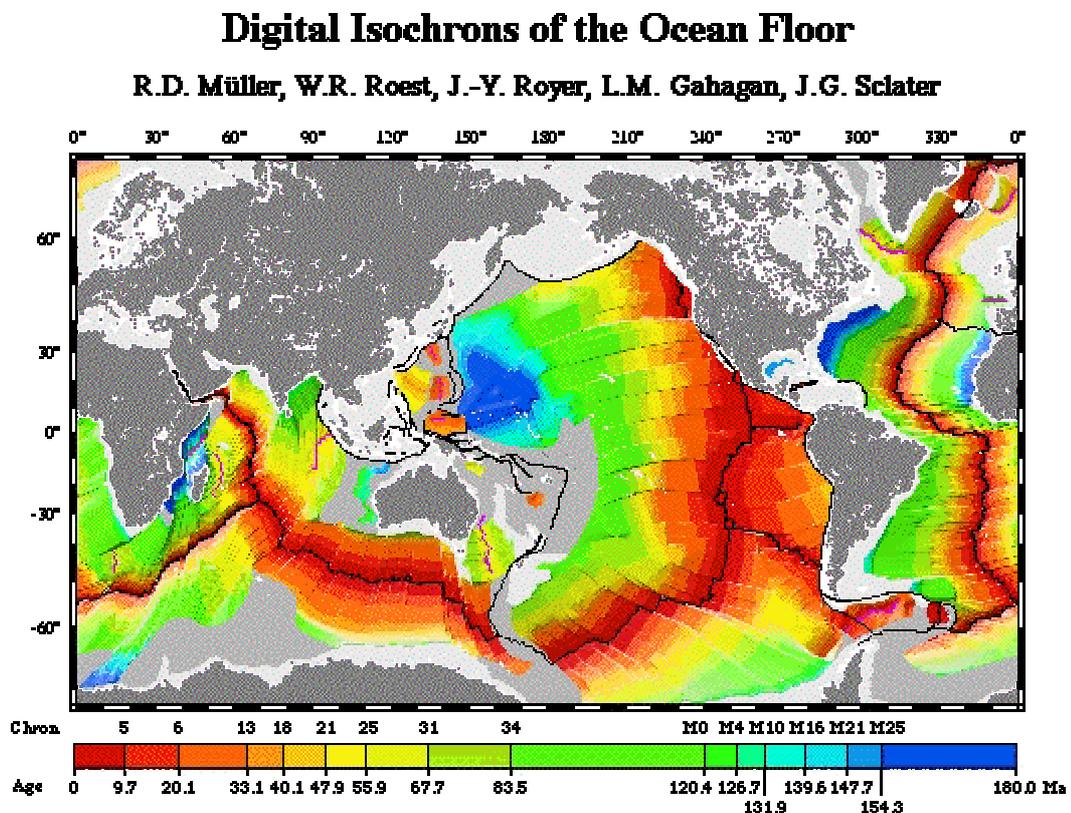


Figure 4 - Carte d'isochrones du plancher océanique.

L'injection de CO₂ sous le fond de la mer a été précédemment recommandée comme approche de stockage « offshore » (Koide *et al.*, 1997). Des aquifères naturels existent dans plusieurs environnements sous les océans et constituent donc des cibles attractives car ils sont difficilement exploitables pour la ressource en eau. Ils restent stables à l'échelle des temps géologiques et peuvent s'auto-fermer par la formation d'hydrate de CO₂ au contact avec l'eau froide de l'océan (Shindo *et al.*, 1995). Ces aquifères peuvent prolonger le temps de résidence du CO₂, peut-être de milliers d'années, tout en ayant un impact

minimum sur le biotope benthique de l'environnement marin. De plus, les études thermodynamiques sur les hydrates indiquent que la densité du CO₂ devient plus grande que l'eau de mer à des pressions supérieures à 30-35 MPa et ceci peut aider à l'injection de CO₂ en dessous des profondeurs correspondantes (3 000-3 500 m de profondeur) (Koide *et al.*, 1997 ; Sasaki *et al.*, 1999). Des questions majeures subsistent cependant, notamment de savoir si l'injection de CO₂ à ces profondeurs est techniquement et économiquement faisable (Goldberg, 1999).

Le potentiel de séquestration géologique (non minérale, par piégeage hydrodynamique) de certains aquifères particuliers sous le fond de la mer pour injecter et retarder le retour du CO₂ dans l'atmosphère a fait l'objet d'une étude préliminaire très succincte (Goldberg, 1999). Parmi les deux types d'aquifères étudiés - un dans des sédiments contenant des hydrates de méthane d'origine naturelle et l'autre dans du basalte de la croûte océanique - seul le second nous intéresse du point de vue de la séquestration minérale.

Le contexte idéal est celui d'un basalte de croûte océanique recouvert par une série de sédiments peu perméables. Plusieurs sites de croûte océanique ont été forés et diagraphiés par les projets DSDP (Deep Sea Drilling Project) et ODP (Ocean Drilling Program) à différents endroits où des sédiments recouvrent des aquifères basaltiques à perméabilité élevée.

A titre d'exemple, l'un d'entre eux est le site 395A qui est un des forages les plus profonds en basalte océanique (93 m de sédiments sur 500 m de basaltes) situés à environ 780 km à l'ouest de l'axe de la ride médio-atlantique. Les mesures *in situ* de température et de flux dans le forage indiquent que la partie supérieure du socle est assez perméable. Les mesures de perméabilité directes n'ont pu être effectuées qu'au-delà d'une profondeur de 580 m, dans un basalte de très faible perméabilité. Sur la base de profils de porosité obtenus à partir de logs de résistivité, les auteurs déterminent une zone *a priori* favorable pour l'injection de CO₂ au sein des basaltes.

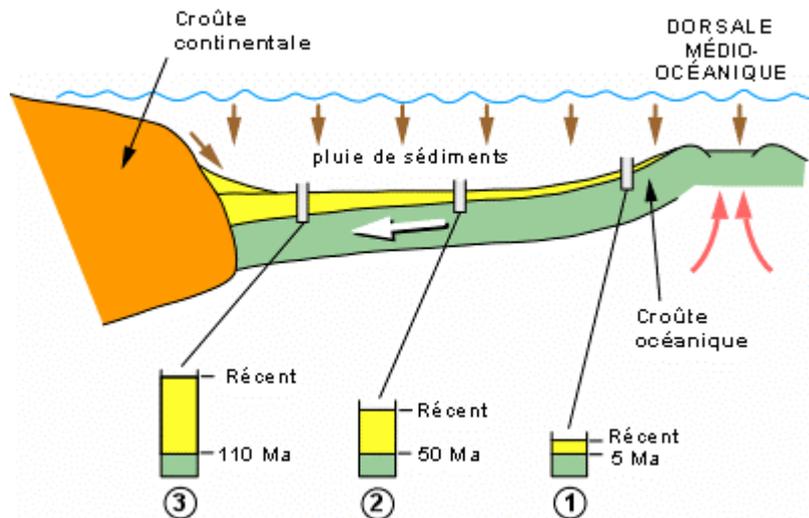


Figure 5 - Coupe géologique schématique d'une croûte océanique.

Dans le bassin océanique profond, la plaine abyssale s'étend de chaque côté de la crête médio-Atlantique, jusqu'aux marges continentales. Elle est constituée par un socle basaltique de 4 à 6 km d'épaisseur, recouvert par 0,1 à 2 km d'épaisseur de sédiments accumulés. Les sédiments (limon pélagique) sont en grande partie composés des restes d'organismes microscopiques (surtout des foraminifères et des diatomées) provenant des eaux qui les surplombent, ainsi que de petites quantités de poussière atmosphérique amenée par le vent et les courants de turbidité. Une des incertitudes concernant le stockage de CO₂ dans ce type de formation est liée à la profondeur à laquelle la roche réservoir (basalte) peut être atteinte sous les sédiments. Etant donné l'épaississement de la couverture de sédiments de la ride médio-océanique vers la croûte continentale (fig. 5), il convient de localiser le réservoir de façon à assurer une couverture de sédiments suffisante pour le confinement, mais pas trop importante d'un point de vue économique afin de réduire la profondeur de stockage.

Il convient également de s'interroger sur les processus d'altération qui se produisent une fois le plancher océanique mis en place au niveau de la ride médio-océanique. En effet, l'âge des basaltes mis en place ainsi que leur état d'altération augmentent lorsqu'on s'éloigne de la ride. Ceci peut avoir une conséquence sur leurs propriétés hydrodynamiques (perméabilité et porosité) dont il convient de tenir compte.

4.1.2. Arcs volcaniques en zones de subduction

Les zones d'affrontement de plaques (zones de subduction) sont le siège d'un volcanisme de type calco-alcalin, andésitique. C'est, en particulier, le volcanisme de la « ceinture de feu » du Pacifique. Trois possibilités peuvent se présenter :

- affrontement de deux plaques océaniques. Exemple : arc des Petites Antilles ;
- affrontement d'une plaque océanique et d'une plaque continentale. Exemple : volcanisme andin ;
- suture de deux plaques continentales. Exemple : volcanisme himalayen.

La nature des plaques qui s'affrontent intervient dans la composition des produits volcaniques émis.

A ce jour, aucune information n'est disponible dans la littérature quant à l'aptitude de ces formations à une séquestration minérale *in situ* de CO₂ ; on se référera donc aux éléments présentés au sein du chapitre 4.2.2. a) et b).

4.1.3. Basaltes intra-plaques

a) Basaltes de plateaux

Les basaltes des plateaux sont les plus grandes masses émergées de basaltes (exemple des basaltes miocènes dans l'Ouest américain). Les laves très fluides, émises par des fissures, couvrent de vastes surfaces et reposent directement sur des

substrats sédimentaires ou cristallins. Les deux grands ensembles les plus célèbres sont ceux de la Colombie britannique (Canada) et du Plateau du Deccan (Inde), qui furent émis pendant une durée de 9 à 15 millions d'années, avec un taux de 0,1 km³ pour 1 000 ans et par 1 000 km².

Les grandes formations basaltiques dans le Monde sont données au tableau 7. Les principales sont situées aux Etats-Unis, en Chine et en Inde. Parce que la Chine et l'Inde sont déjà des émetteurs majeurs de CO₂ et qu'ils dépasseront les Etats-Unis en émission totale de gaz à effet de serre dans les 10 à 25 prochaines années, ces formations pourraient constituer une option de séquestration importante pour le CO₂ dans ces pays.

LIP	Localisation	Surface (km ²)	Volume (km ³)
OJP, Ontong Java Plateau	Southwestern Pacific	1 900 000	44 400 000
KER, Kerguelen Plateau	Southern Indian Ocean	2 300 000	9 100 000
NAV, North Atlantic Volcanic Province	United Kingdom and Greenland	1 300 000	6 600 000
PEP, Paraná-Etendeka Province	Brazil, Namibia, and Angola	2 200 000	>1 000 000
KEW, Keweenaw Basalts	Northcentral U.S.	160 000	640 000*
DEC, Deccan Traps	India and Pakistan	600 000	512 000
SIB, Siberian Traps	Eastern Siberia	340,000	400,000
YET, Yemen-Ethiopian Traps	Yemen and Ethiopia	>600,000	>350,000
EME, Emeishan Basalts	Southwest China	>250 000	>300 000
CRBG, Columbia River Basalt Group	Northwestern U.S.	200 000	224 000
HCB, Hannuoba-Chifeng Basalts	Northeastern China	20 000	1 400*
NB/HB, Newark Basin and Hartford Basin	Northeastern U.S.	500*/400*	50*/40*

*Tableau 7 - Extension et volumes des principales provinces ignées (LIP : "Large Igneous Provinces") *Estimé - Volumes estimés à partir de la surface et avec des épaisseurs moyennes de 70 m (HCB), 4 km (KEW), et 100 m (NB/HB), (d'après Mc Grail et al., 2003).*

Les structures internes dans les basaltes continentaux font d'eux des cibles attractives pour la séquestration de CO₂. Les structures internes formées durant la mise en place et la solidification de la lave résultent de variations dans les taux de refroidissement, dégazage, contraction thermique et interactions avec l'eau. Ces structures peuvent être continues sur de grandes distances bien que leur épaisseur soit souvent fortement variable. Les parties supérieure et inférieure d'une coulée de basalte (fig. 6) sont constituées de basalte vésiculaire ou bréchifié et sont la principale structure dans laquelle le CO₂ serait injecté.

Les joints ou fissures sont les structures intra-coulées dominantes et sont le résultat de contraintes de tension induites de la contraction thermique différentielle durant le refroidissement. Les joints verticaux (« colonnade » et « entablature » sur la figure 6) offrent un chemin possible pour l'écoulement du CO₂ vers la couche sus-jacente. Cependant, la saprolite (sol altéré) et les lits de sédiments (ou les autres formations volcaniques peu perméables) présents dans la plupart des empilements de coulées de basaltes forment des horizons confinants.

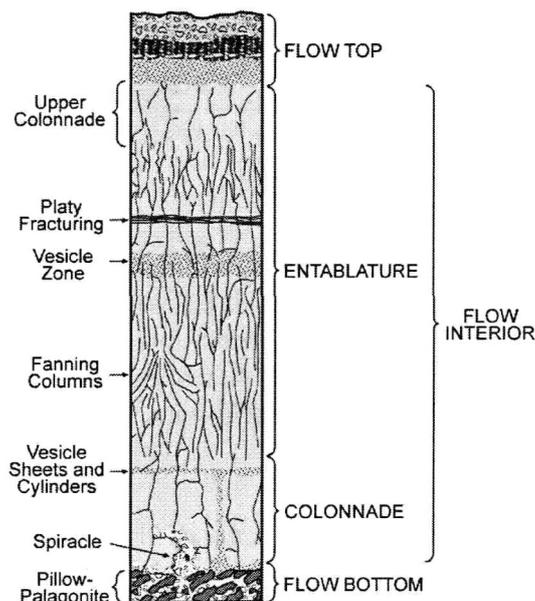


Figure 6 - Caractères internes majeurs d'une coulée élémentaire (épaisseur de quelques mètres) d'un épanchement de lave basaltique de type Columbia River (d'après McGrail et al., 2003).

La forte épaisseur de ces ensembles basaltiques rend possible le stockage à des profondeurs de l'ordre de 800–900 m. Toutefois, l'hétérogénéité et la structure souvent tabulaire de ces ensembles rendent aléatoire l'existence de pièges efficaces et l'efficacité des formations potentiellement confinantes sera assez difficile à prouver. Par ailleurs, l'hydrogéologie de ces formations (particulièrement à grande profondeur) est encore mal connue : leurs potentialités en terme de stockage de CO₂ restent donc à déterminer.

b) Points chauds

Sur 120 points chauds recensés, un peu plus de la moitié est située sous les continents, en particulier sous l'Afrique. Le Piton de la Fournaise (île de La Réunion), les îles Hawaii et peut-être les volcans du Massif central appartiennent à ce type de volcanisme où la composition des laves est variable depuis le pôle tholéitique jusqu'au pôle alcalin.

Les îles de la *Réunion* ou de *Mayotte* ainsi que la plupart des îles volcaniques de Polynésie résultent essentiellement de l'empilement de laves basaltiques, sur plusieurs milliers de mètres d'épaisseur. Les coulées, d'épaisseur unitaire en moyenne métrique, se sont en général mises en place sur des surfaces relativement planes et peu inclinées, formant des planèzes. Elles sont interstratifiées de paléosols et, de manière plus subordonnée, de formations pyroclastiques⁶. Des produits plus différenciés (phonolites, néphélinites, ponces) se mettent parfois en place, sous forme d'intrusions ou de coulées et épanchements, souvent au sein de paléovallées, principalement lors de la fin des grandes phases d'activité volcanique. Par ailleurs, certains édifices sont soumis à des processus de démantèlement qui concourent au dépôt, à leur périphérie, en particulier au sein de paléovallées, de formations sédimentaires, de type alluvial en particulier. Les îles les plus anciennes sont aussi affectées par des phénomènes de subsidence qui se marquent par l'édification de ceintures coralliennes.

A ce jour, aucune information n'est disponible dans la littérature quant à l'aptitude de ces formations à une séquestration minérale *in situ* de CO₂ ; on se référera donc aux éléments présentés au sein du chapitre 4.2.2. a) et b).

4.1.4. Complexes ophiolitiques

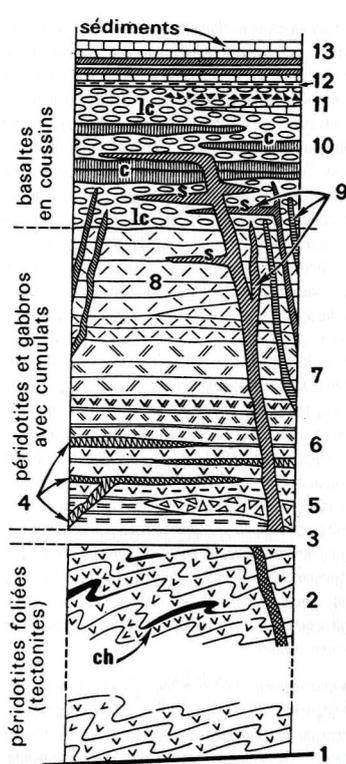
Les complexes ophiolitiques désignent un ensemble comportant schématiquement de bas en haut (fig. 7) :

- des péridotites foliées ayant subi des déformations tectoniques à l'état solide, à haute température et haute pression ;
- des gabbros et des péridotites lités à structures de cumulats (cristallisation fractionnée et dépôts successifs, par densité, des cristaux dans une chambre magmatique) ;
- des basaltes en coussins ou pillow lavas (effusions souterraines).

Ils représentent des portions de la croûte océanique et du manteau supérieur d'anciens océans, portions qui ont été charriées sur de la croûte continentale lors de collisions entre deux continents ou entre un continent et un arc insulaire.

Ils contiennent donc un cortège de roches basiques à ultrabasiques qui, du point de vue minéralogique, sont potentiellement intéressantes pour la séquestration minérale. De plus, ces complexes se situent généralement dans des zones très tectonisées, avec superposition de plusieurs phases de charriage. La forte activité tectonique dont ils ont été l'objet peut être à l'origine de structures favorables à la création de pièges.

⁶ **Pyroclastique** : s'applique aux débris de roches éjectés par les volcans et dont l'accumulation donne les roches pyroclastiques : cendres, lapillis, tufs, ignimbrites.



Colonne synthétique et théorique d'un complexe ophiolitique.

- 13 : sédiments avec en général nombreux niveaux siliceux (radiolarites, calc. à silex) surmontant les laves ou intriqués avec elles (complexe volcano-sédimentaire).
 - 12 : « terre d'ombre » : mince niveau d'argilites particulièrement riches en Fe et Mn.
 - 11 : coulées de basaltes soit massives et prismées, soit en coussins (lc, pillow); intercalations de brèches de coussins et de niveaux à hyaloclastites.
 - 10 : basaltes spilitisés (albitophyres) en coulées compactes (c) ou en coussins; parfois intercalations de picrites et/ou d'andésites. Les basaltes de 11 et 10 sont tholéitiques et/ou alcalins. Superposition à 9 ou 8 rarement visible, le plus souvent contact tectonique à la base de 10.
 - 9 : ensemble plus ou moins développé de dykes, filons, et sills (s) de dolérites, basaltes, lamprophyres.
 - 8 : ensemble très variable avec dolérites massives, diorites, diorites quartziques, trondjémites, granophyres (termes enrichis en SiO₂ représentant la cristallisation du magma résiduel après formation des niveaux 7 à 5).
 - 7 : gabbros non lités surmontant les gabbros lités à cumulats (norites en général).
 - 6 : alternances de péridotites, avec ou sans plagioclase, de gabbros, et de pyroxénolites.
 - 5 : péridotites litées (cumulats de dunite, lherzolite); localement, brèches magmatiques de cumulats péridotitiques dans un ciment gabbroïque.
 - 4 : dykes, sills, et lits de pyroxénolites (webstérites) et de pegmatoides basiques gabbroïques.
 - 3 : coupure tectonique ou zone confuse.
 - 2 : ensemble basal des péridotites fortement tectonisées (tectonites ultrabasiques) avec foliation et déformation des minéraux (phases de HP - HT). En général harzburgites, avec intercalations de chromite (ch) liées à des dunités.
 - 1 : contact anormal basal systématique, le complexe ophiolitique étant charrié sur des terrains variés, métamorphiques ou non.
- Épaisseur totale : souvent 4 à 5 km, pouvant atteindre 10-15 km, se décomposant, p. ex., en : 11 et 10 = 0,5 à 1 km; 8 = 0,5 km; 7 et 6 = 0,5 km; 5 = 0,2 km; 2 = 2 à 3 km.

Figure 7 - Colonne synthétique et théorique d'un complexe ophiolitique (Foucault et Raoult, 1988)

Hormis l'Afrique où ils sont peu présents, on retrouve les complexes ophiolitiques partout à travers le Monde (fig. 8). Suite à leur association avec des frontières de plaques, les ophiolites sont souvent localisées le long de ceintures. Les ceintures ophiolitiques bien documentées sont les suivantes : les montagnes Troodos à Chypre, les ophiolites des Alpes européennes, l'ophiolite Simail en Oman, l'ophiolite de Bay of Islands à Newfoundland, la ceinture des Caraïbes, l'ophiolite Chaucas au Guatemala, la ceinture de la Cordillère sur la côte ouest des USA, la ceinture appalachienne aux USA, les montagnes Zagros en Iran, le Complexe Lizard en Grande-Bretagne et différentes unités ophiolitiques au Japon.

D'un point de vue hydrodynamique, les ophiolites sont encore assez mal connues. La partie superficielle des ophiolites d'Oman a fait l'objet d'une récente étude à différentes échelles (Dewandel, 2002). A l'échelle de l'essai de pompage, les ophiolites y montrent un comportement de type double porosité. A la perméabilité des fissures se surimpose une perméabilité de fracture associée aux fractures héritées de la tectonique à la paléo-dorsale que les pompages d'essai ont permis de caractériser. Les transmissivités, comprises entre 10⁻⁴ et 10⁻¹ m²/s et les emmagasineurs, entre 10⁻³ et 10⁻¹, sont relativement élevés. Les aquifères testés sont caractérisés par une forte perméabilité de fracture, et se sont révélés être souvent hétérogènes en terme de fracturation, parfois de faible extension, et limités aux zones de fractures et d'altération (Dewandel, 2002).

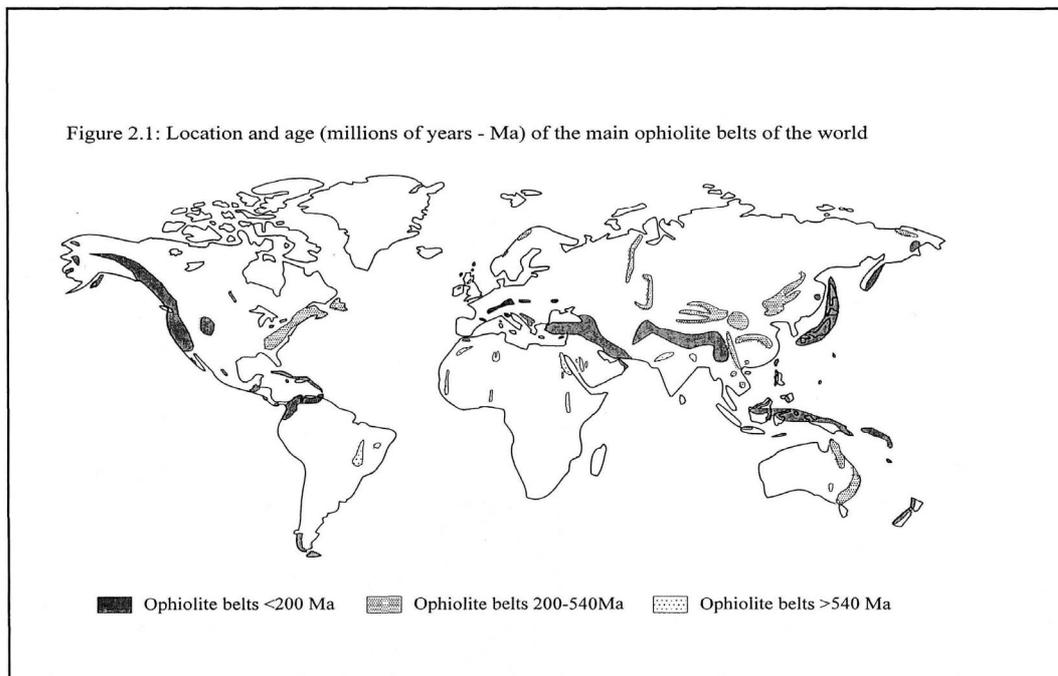


Figure 8 - Localisation et âges des principaux complexes ophiolitiques (d'après (Newall et al., 1999).

A ce jour, aucune information n'est disponible dans la littérature quant à l'aptitude de ces formations à une séquestration minérale *in situ* de CO₂ ; on se référera donc aux éléments présentés au sein du chapitre 4.2.3.

4.1.5. Aquifères salins profonds

Parmi les différents types de sites potentiels de séquestration, les aquifères salins profonds associés à des roches basiques (ex. basaltes) offrent de grandes capacités ainsi qu'un stockage sûr avec un long temps de résidence du CO₂ (Takabashi *et al.*, 2000). Ceci est basé sur l'immobilisation du CO₂ sous forme de carbonates stables de Ca et Mg au moyen de réactions de CO₂ avec les eaux salines et les roches basiques.

Les contextes géologiques désirés sont des aquifères profonds associés avec des roches basiques telles que les basaltes disposant d'une perméabilité d'interstices, de fissures ou de fractures. Les ions Ca⁺⁺ et Mg⁺⁺ présents dans les eaux de l'aquifère réagissent d'abord avec le CO₂ injecté pour précipiter des cristaux de carbonates. En conséquence, les eaux de l'aquifère deviennent acides. Les eaux acidifiées seront lentement neutralisées par des réactions avec les roches basaltiques encaissantes et largueront plus d'ions Ca⁺⁺ et Mg⁺⁺. Ces ions réagiront avec le CO₂ injecté pour former plus de cristaux de carbonates selon une séquestration permanente de CO₂. Cependant, les vitesses lentes des réactions de neutralisation avec les basaltes devraient donner assez de temps au CO₂ injecté pour se disperser dans la roche hôte

avant de former du carbonate solide. Cela empêche le colmatage de la zone autour du point d'injection. La formation de minéraux carbonatés réduira éventuellement la perméabilité des roches hôtes et les flux de fluide. Pour cette raison, la vitesse des réactions basaltes CO₂-eau ainsi que l'effet de ces réactions sur la perméabilité et les autres propriétés mécaniques devraient être étudiés en laboratoire (Takabashi *et al.*, 2000).

Par rapport aux aquifères basaltiques classiques, cette technique ne met pas en danger une ressource en eau exploitable car l'eau de l'aquifère est saline et donc non potable. Cette technique peut être utilisée dans des aquifères basaltiques salins continentaux ou océaniques. Par ailleurs, l'existence, en milieu continental, d'eaux profondes salines est généralement indicatrice de longs temps de séjour de l'eau et d'un probable isolement par rapport aux eaux souterraines potables utilisées par les hommes.

4.2. EN FRANCE

4.2.1. Basaltes du plancher océanique

Les possibilités sont examinées grâce aux données issues des grands profils de sismique profonde disponibles uniquement autour de la France métropolitaine.

En mer Méditerranée, selon la coupe structurale interprétative de la marge du golfe du Lion d'après les profils de sismique réflexion et les forages à terre et en mer (Seranne, 1999), la croûte océanique est située à des profondeurs prohibitives, de l'ordre de 10 km sous la mer et les sédiments (fig. 9).

Ses caractéristiques sont encore assez mal connues en raison de la couverture évaporitique et des multiples du fond qui masquent les structures au toit du socle acoustique. Les mesures de sismique réfraction ont montré la structure particulière de la croûte très mince de cette région : il ne s'agit ni d'une croûte continentale très amincie, ni d'une croûte océanique caractéristique.

D'après les faciès sismiques, des formations volcaniques peuvent être présentes dans cette région à croûte très mince. Il est aussi probable que le manteau serpentinsé y affleure au moins localement (Guennoc *et al.*, 2000).

Du côté atlantique, le profil sismique WAM a été implanté perpendiculairement à la direction d'ouverture du golfe de Gascogne. Privilégiant l'étude de la marge passive, le profil recoupe obliquement les directions hercyniennes du plateau continental celtique. Il se rattache aux profils les plus occidentaux de la campagne SWAT (fig. 10).

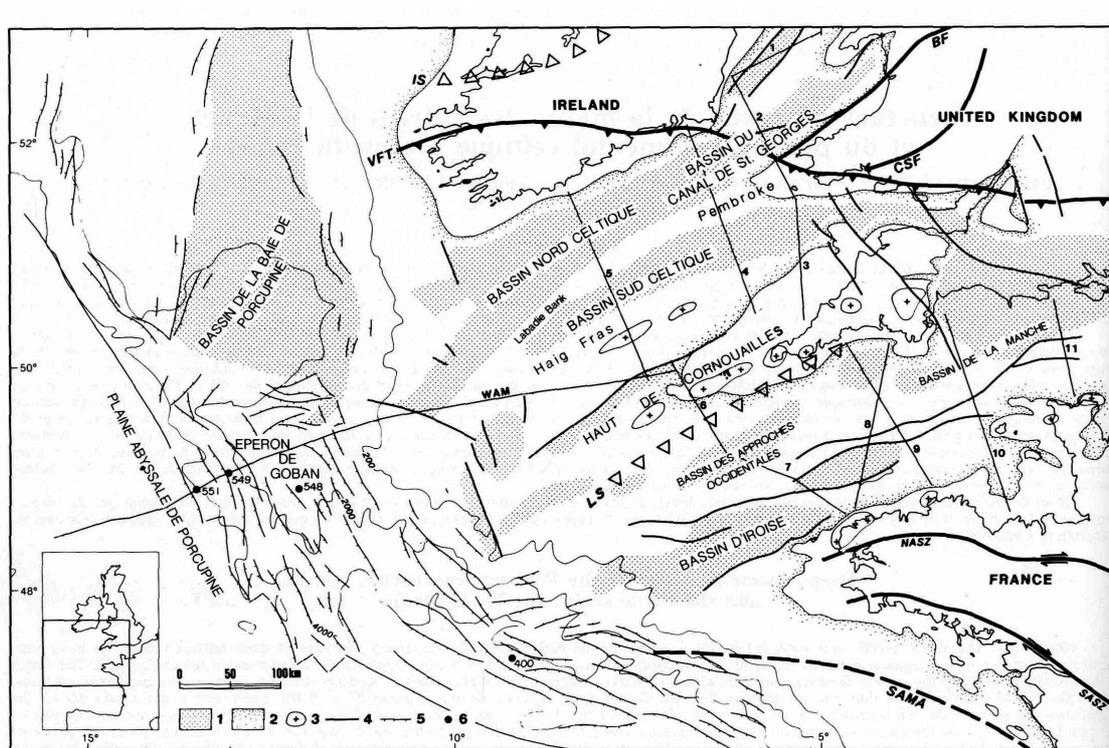


Figure 10 - Cadre géologique et structural des profils sismiques SWAT et WAM (d'après Pinet et al., 1991). 1 : principaux dépocentres mésozoïques. 2 : bordure du domaine sédimentaire. 3 : batholite de granite. 4 : faille. 5 : faille normale. 6 : sondage DSDP.

Le profil WAM fournit (Pinet et al., 1991), sur une centaine de kilomètres, une image sismique de la plaine abyssale Atlantique. La croûte océanique a été atteinte au site 550, situé quelques kilomètres au sud du PT 2800. Elle est constituée de basaltes en coussins recouverts de calcaires pélagiques de l'Albien terminal. Sur le profil WAM, comme sur d'autres profils sismiques voisins, la croûte apparaît découpée par des failles normales qui témoigneraient d'une tectonique distensive contemporaine ou légèrement postérieure à l'activité de la dorsale. Il faut noter la topographie mouvementée du toit de la croûte océanique, probablement amplifiée par la réactivation d'anciennes zones de faiblesse de la croûte pendant la phase de compression pyrénéenne (Eocène-Oligocène inférieur ?). Un important sill volcanique (anté-Cénomaniens) à affinité tholéitique se trouve à la jonction entre la croûte océanique et la croûte continentale à plusieurs centaines de kilomètres de la pointe occidentale de la Bretagne (fig. 11). La croûte est située à une profondeur de 6 à 7 km sauf au droit du sill volcanique où les roches basiques se situent à environ 5 km de profondeur sous le niveau de la mer (fig. 11).

La grande profondeur du réservoir basique, son éloignement du littoral et dans une moindre mesure la nature des sédiments le recouvrant (calcaires) ne semblent a priori pas favorables au stockage de CO₂ à l'entrée de la Manche.

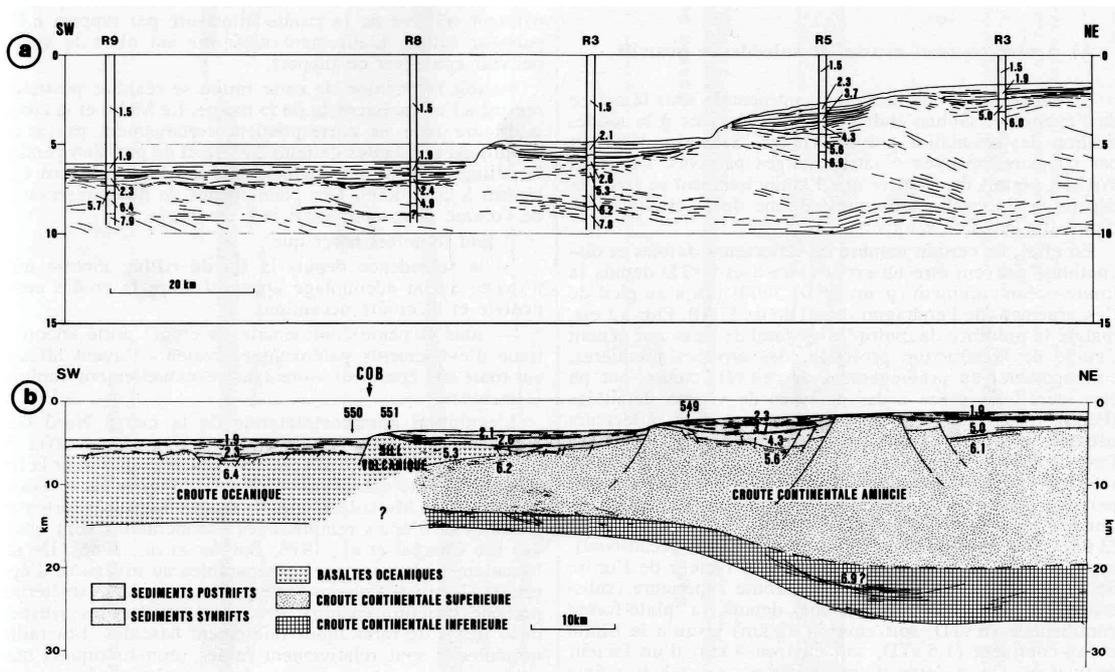


Figure 11 - Passage entre croûte continentale et croûte océanique le long du profil WAM au niveau de la mer Celtique (Pinet et al., 1991).

Bien que la position de la limite entre croûtes océanique et continentale soit encore mal connue dans le golfe de Gascogne (Boillot *et al.*, 1984), il semble que la profondeur et l'éloignement par rapport à la côte du plancher océanique constituent également un écueil à la séquestration dans cette région.

4.2.2. Volcans

a) Formations volcaniques représentées en France et dans les DOM/TOM

Les affleurements de basaltes, andésites, basanites, hawaïtes et tephrites du territoire métropolitain ont été regroupés sur la carte jointe (fig. 12).

On distingue deux principaux types de formations volcaniques : le volcanisme à dominante **basaltique** et le volcanisme à dominante **andésitique** qui sont à l'origine de produits volcaniques de nature sensiblement différente qui, par voie de conséquence, ont des propriétés hydrogéologiques qui diffèrent significativement. Ces principaux types de formations volcaniques sont présents sur le territoire français, en Métropole et Outre-Mer.

Le volcanisme à dominante basaltique est représenté essentiellement par :

- des *volcans boucliers*, mis en place directement sur le plancher océanique (intraplaque océanique) et ayant pour origine des points chauds. Ils montrent en général un volcanisme peu différencié, à dominante de coulées basaltiques.

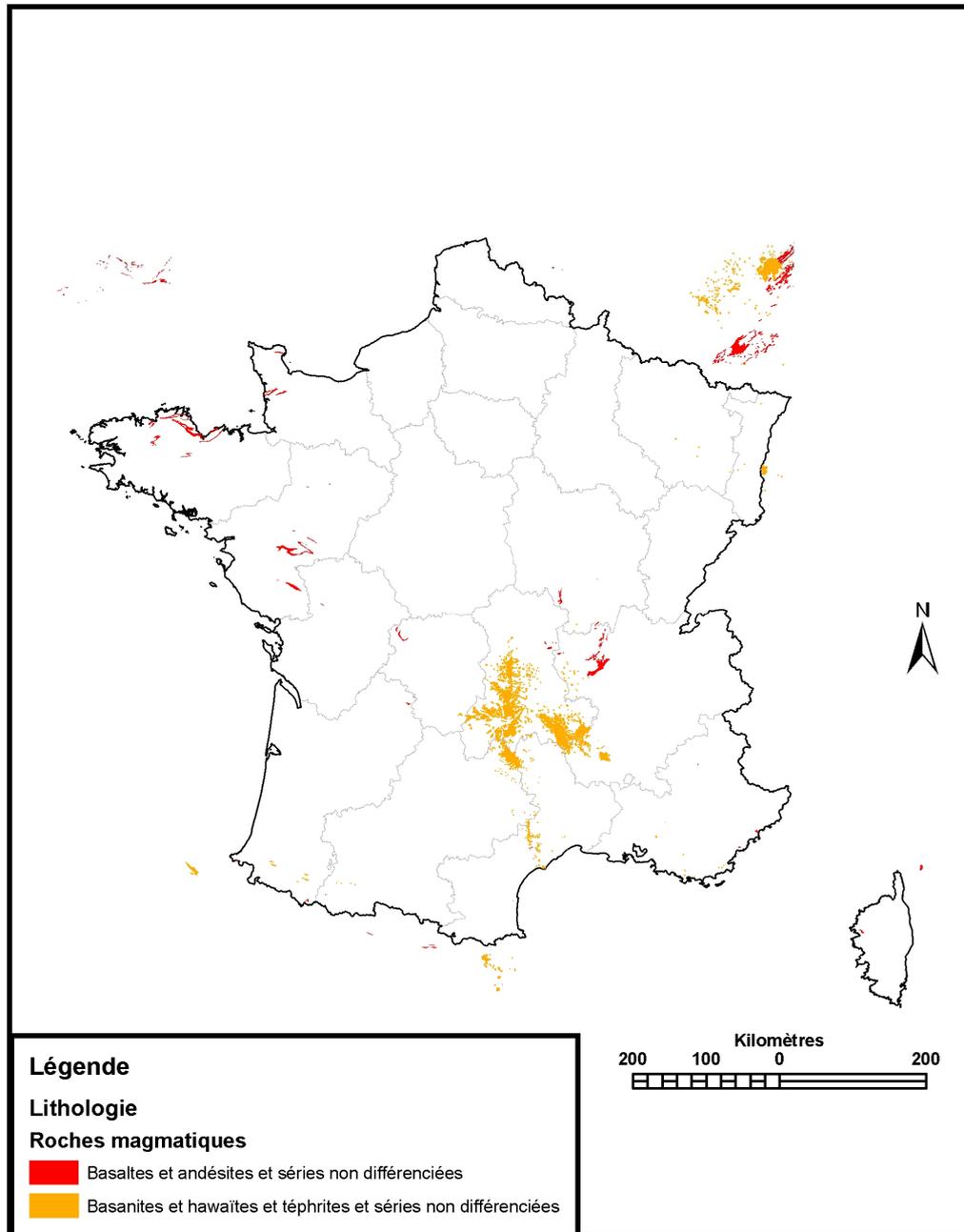


Figure 12 - Aires d'affleurement de basaltes, andésites, basanites, hawaïtes et téphrites en France métropolitaine d'après la carte géologique de la France à 1/1 000 000 (Bailly, 2004).

- Les îles de la *Réunion* ou de *Mayotte* ainsi que la plupart des îles volcaniques de Polynésie résultent essentiellement de l'empilement de laves basaltiques, sur plusieurs milliers de mètres d'épaisseur. Les coulées, d'épaisseur unitaire en moyenne métrique, se sont en général mises en place sur des surfaces relativement planes et peu inclinées, formant des planèzes. Elles sont interstratifiées de paléosols et, de manière plus subordonnée, de formations pyroclastiques⁷. Des produits plus différenciés (phonolites, néphélinites, ponces) se mettent parfois en place, sous forme d'intrusions ou de coulées et épanchements, souvent au sein de paléovallées, principalement lors de la fin des grandes phases d'activité volcanique. Par ailleurs, certains édifices sont soumis à des processus de démantèlement qui concourent au dépôt, à leur périphérie, en particulier au sein de paléovallées, de formations sédimentaires, de type alluvial en particulier. Les îles les plus anciennes sont aussi affectées par des phénomènes de subsidence qui se marquent par l'édification de ceintures coralliennes ;
- des *ensembles volcaniques à dominante basaltique*, d'épaisseur et d'extension variable, mis en place en contexte continental, et qui reposent de ce fait sur un substratum non volcanique (socle cristallin ou métamorphique, bassins sédimentaires).

Les ensembles présentant une histoire relativement courte (la chaîne des Puys par exemple, avec une activité sur moins de 100 000 ans, la partie ouest du Velay, etc.) comportent des maars, résultant de l'interaction explosive entre une venue de magma et des eaux superficielles, des cônes de scories, situés à proximité des points d'émission, et des coulées, mises en place en général au sein de paléovallées. Ces deux derniers types de formations sont en général prépondérants. Des épaisseurs importantes de produits volcaniques, dans la chaîne des Puys en moyenne une centaine de mètres, localement plus de 200 m, sont ainsi rencontrées à l'aplomb de ces paléovallées qui entaillaient le substratum des formations volcaniques. Au droit des cônes, les épaisseurs peuvent aussi atteindre ou dépasser ces valeurs. Des produits plus différenciés (trachytes, phonolites, etc.) se mettent en place sous forme de dômes et de protrusions. Des formations sédimentaires (alluvions, tourbes, diatomites, etc.) et des paléosols constituent une partie du remplissage des paléovallées et des dépressions que forment les maars.

Les ensembles ayant fonctionné sur une période plus longue (plus de 5 Ma pour le Devès par exemple) et/ou ayant émis de plus gros volumes de produits volcaniques sont caractérisés par des séries plus épaisses, ce qui a pu conduire à la constitution d'**entablements basaltiques**. Le Cézallier, l'Aubrac, la partie est du Velay, les Coirons, l'Escandorgue sont ainsi rattachés à ce volcanisme fissural de plateaux.

Enfin, des pointements plus dispersés, essentiellement basaltiques, sans grand intérêt hydrogéologique, existent du Languedoc à l'Alsace.

Le volcanisme de type andésitique est présent grâce aux volcans de l'arc insulaire antillais, qui résulte de la subduction de la plaque océanique nord-atlantique sous la plaque caraïbe. La Martinique, la Basse-Terre de Guadeloupe et une partie de son archipel (Saint-Martin, Saint-Barthélemy, Les Saintes) sont composées quasi

⁷ **Pyroclastique** : s'applique aux débris de roches éjectés par les volcans et dont l'accumulation donne les roches pyroclastiques : cendres, lapillis, tufs, ignimbrites.

exclusivement de formations volcaniques de type andésitique, tertiaires et quaternaires (seules la Basse-Terre et la Martinique comportent des volcans actifs : Soufrière de Guadeloupe et Montagne Pelée). Les formations sédimentaires y sont limitées aux alluvions récentes, aux formations de plage et de mangrove, et à quelques niveaux calcaires déposés lors de périodes prolongées d'arrêt du volcanisme.

Ces formations volcaniques sont très variées. Les hyaloclastites⁸, témoins des phases initiales sous-marines du volcanisme, forment en général le soubassement des îles, sur plusieurs milliers de mètres d'épaisseur. Alternent ensuite différents types de laves, depuis des termes assez fluides (basaltes, andésites basiques, représentés par exemple par le volcan bouclier du Morne Jacob en Martinique, les coulées décamétriques de la Madeleine en Guadeloupe) jusqu'à des laves plus visqueuses (andésites, dacites, rhyolites). Les produits de nature explosive, nuées ardentes, ponces, cendres, etc., sont très représentés, en particulier au sein des édifices récents. Enfin, les formations de démantèlement (lahars⁹, coulées de débris, produits d'effondrement de type « Mount Saint Helens », conglomérats, etc.) peuvent occuper de très grandes surfaces et combler des paléovallées larges et profondes.

Compte tenu de leur histoire longue (plus de 25 Ma pour la Martinique par exemple), majoritairement aérienne, polyphasée, affectée par la tectonique, par des phases de bombement, de subsidence et d'effondrement, d'érosion, etc., les îles andésitiques présentent une structure géologique complexe.

Qu'elles soient à dominante basaltique ou andésitique, les **îles volcaniques** présentent la spécificité de s'être tout d'abord édifiées en milieu sous-marin puis, une fois émergées, en contexte aérien, avec parfois des récurrences (effondrements, édification de nouvelles parties, adjacentes à l'île principale). Des produits de type « aérien » dominent en général au sein des formations volcaniques les plus récentes, tandis que le soubassement des édifices est souvent constitué de formations de type hyaloclastique. Par voie de conséquence, les formations géologiques observables à l'affleurement ne sont pas toujours représentatives de celles qui pourront être recoupées en forage sur les îles ou à leur périphérie, surtout lorsque les forages sont profonds.

Les **stratovolcans** (les Monts du Cantal et le Mont Dore/Sancy, la montagne Pelée par exemple), constituent des édifices composites, mis en place sur une longue période (plus de 15 Ma pour le Cantal, environ 4 Ma pour le Mont Dore/Sancy), de manière polyphasée et couvrant des aires importantes (600 km² pour le Mont Dore/Sancy, 2 700 km² pour le Cantal). Ils présentent une structure complexe, marquée par une alternance de laves, en coulées et intrusions, et de formations pyroclastiques et de démantèlement. Ils ont aussi été affectés par des phases successives d'érosion et la formation de calderas.

⁸ **Hyaloclastite** : brèche fine à éléments de verre volcanique, associée à des coulées de lave souvent en « coussins » ou autobréchifiées.

⁹ **Lahar** : coulée boueuse à débris de roches volcaniques de toutes tailles, et qui affecte fréquemment les pentes raides et mal consolidées des volcans.

b) Propriétés hydrogéologiques

Les laves présentent en général une très faible perméabilité de matrice. Leurs propriétés aquifères dépendent donc étroitement de leurs conditions de mise en place, de fissuration et de fracturation. Par ailleurs, leur degré d'altération joue également un rôle important.

Les laves présentent ainsi une forte variabilité de leurs propriétés hydrodynamiques au sein d'une même coulée qui se traduit, en forage, par des variations de la perméabilité selon la verticale. Cette variabilité s'explique majoritairement par la structure interne des coulées, liée à leur mode de mise en place. Les coulées comprennent ainsi généralement, de haut en bas (fig. 13) :

- une surface scoriacée montrant soit des gratons, soit un niveau scoriacé ;
- un cœur de coulée plus massif souvent diaclasé (fissures de refroidissement) ;
- une brèche de base de coulée présentant des éléments scoriacés, en gratons, et reprenant fréquemment des blocs de la coulée sous-jacente.

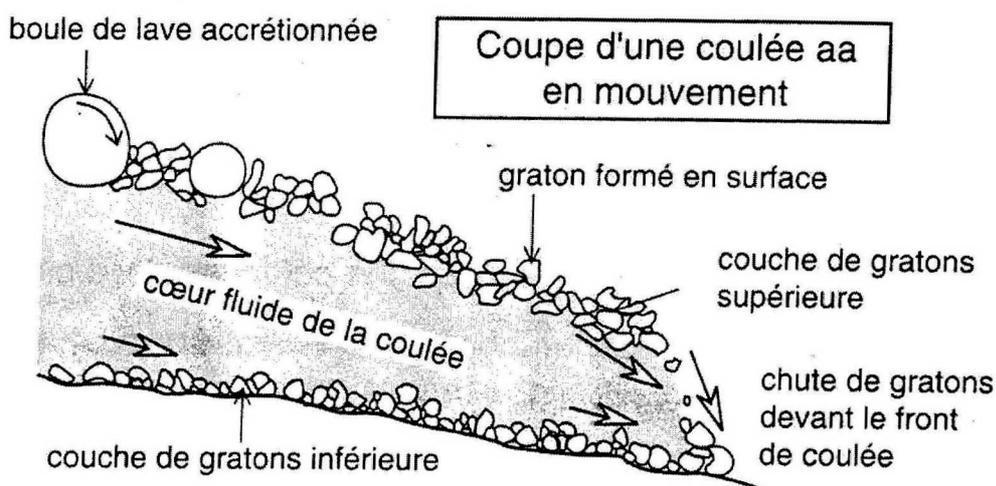


Figure 13 - Coupe d'une coulée « aa » en mouvement.

L'écoulement de la lave est à l'origine d'une fissuration de la roche qui se traduit par un débit en plaquettes, des figures de flux souvent parallèles au substratum, etc.. Le refroidissement de la lave génère lui aussi une fissuration (prismation avec des fissures en général perpendiculaires à la surface de refroidissement). Ces processus confèrent aux laves des caractéristiques hydrauliques intéressantes surtout si cette perméabilité initiale est renforcée par une fracturation d'origine tectonique. Cette dernière s'exprime bien au sein de ces matériaux compétents.

L'altération climatique ou hydrothermale de la roche se traduit par une argilisation partielle ou totale de ses minéraux constitutifs qui oblitère, en partie ou complètement, une éventuelle perméabilité. L'altérabilité des différents faciès constitutifs d'une coulée

est variable. Dans un schéma type de coulée à la lave relativement fluide, les faciès de bordure (brèches et scories des murs, toits et flancs de coulée) présentent, du fait de leurs porosité et perméabilité initiales, une plus forte aptitude à s'altérer rapidement que le cœur de l'écoulement, massif car refroidi lentement. Ainsi, un même ensemble lithologique peut constituer à la fois des niveaux aquifères (dans ses parties non altérées) et un substratum ou toit imperméable aux formations sus ou sous-jacentes (pour ce qui concerne ses parties argilisées). En outre, les laves montrent souvent, du fait de la composition du magma, une forte viscosité. Celle-ci entraîne une bréchification de la roche lors de sa mise en place. Leur dépôt en contexte sous-aquatique génère également des faciès bréchiques. Dans ces conditions, la progression des fronts d'altération peut être beaucoup plus homogène et régulière.

L'examen des paramètres hydrodynamiques mesurés sur des basaltes montre combien les coulées volcaniques peuvent se révéler imperméables si elles sont massives et compactes. Ce fait est également souligné par Lachassagne *et al.*, 2002 (soumis). Les résultats d'une campagne de forages visant à étudier les potentialités aquifères de l'île de Mayotte ont montré que les cœurs de coulées de type aa pouvaient se révéler comme étant les horizons les plus productifs lorsqu'ils sont fissurés, ce qui n'est pas systématiquement le cas et dépend de la mise en place et de la genèse de la coulée.

Concernant les coulées basaltiques, Custodio (1985) souligne l'anisotropie importante de ces formations avec un rapport de la perméabilité horizontale sur la perméabilité verticale allant de 20 à 50 et des circulations souterraines prépondérantes dans les plans horizontaux.

• Hétérogénéité à différentes échelles

Les formations volcaniques présentent donc une structure géologique fréquemment complexe, liée à des hétérogénéités à toutes les échelles, en particulier lorsqu'elles se sont mises en place en contexte aérien :

- **à l'échelle cartographique**, la dynamique active de mise en place de ces formations concourt à une forte variabilité spatiale, latérale et verticale, des formations géologiques volcaniques. Des formations perméables et imperméables peuvent ainsi coexister à cette échelle ;
- **à l'échelle d'une formation donnée**. Au sein de laves par exemple, les différentes coulées, d'épaisseur très limitée, peuvent être séparées par des paléosols isolant différents niveaux perméables. Au sein d'une même paléovallée, les laves sont fréquemment interstratifiées de formations alluviales (perméabilité variable selon les cas) ou de démantèlement (en général imperméables) ;
- **à l'échelle d'un même ensemble lithologique**, considéré globalement comme perméable, coexistent des niveaux très perméables et d'autres quasi imperméables. Ainsi, au sein de coulées basaltiques, les faciès en gratons, scoriacés et fissurés donnent de très forts débits instantanés tandis que les parties massives sont « sèches » ; ces niveaux ou formations peu perméables, ainsi que les pendages originels parfois forts des coulées, peuvent générer une structure en « tuiles ». La présence, au sein de hyaloclastites, considérées globalement comme peu

perméables, de petites coulées de lave, peut augmenter significativement la productivité globale de ces formations. La présence d'intrusions (dykes en particulier) peut contribuer à un compartimentage des aquifères.

• Types de perméabilité des formations volcaniques

Comme vu plus haut, au sein des laves volcaniques, coexistent perméabilité de fissures et perméabilité d'interstices.

La **perméabilité d'interstices** s'exprime au sein des formations basaltiques scoriacées : par les cônes de scories, lorsqu'ils ne sont pas altérés, par les niveaux scoriacés (en « gratons ») de toit et de base de coulée. Dans ce dernier cas, la porosité peut parfois être très grossière, avec des vides de taille centimétrique, voire même décimétrique. Ainsi, les coulées d'andésite basique de la Madeleine, en Guadeloupe, d'épaisseur pluridécamétrique, montrent des sources à très fort débit qui émergent, en front de coulée, au sein de blocs de taille décimétrique à plurimétrique, refroidis sur le toit de la coulée et tombés à son front lors de sa mise en place, et sur lesquels elle s'est épanchée à la manière des roues d'un bulldozer sur leur chenille,

La **perméabilité de fissures** est présente aussi bien au sein des :

- laves basiques (basaltes), essentiellement sous la forme de fissures de refroidissement, bien connues lorsque la fissuration se traduit par un débit en orgues. Certaines de ces fissures peuvent atteindre une grande ouverture de l'ordre de plusieurs centimètres à décimètres ;
- que des laves acides (plus visqueuses), où elle s'exprime surtout sous la forme de figures d'écoulement (figures de flux pouvant conférer aux laves un débit en plaquettes, d'épaisseur centimétrique).

Exceptionnellement, la présence de tunnels de laves (au sein de basaltes fluides), de troncs de végétaux décomposés ultérieurement à la mise en place de la formation qui les a fossilisés (lahars, cendres, etc.) concourent aussi à la perméabilité des roches volcaniques et, parfois, à l'émergence de sources. Au contraire, l'existence de structures localisées, imperméables, peut contribuer à compartimenter l'aquifère ; en particulier des faisceaux de dykes imperméables, des intrusions massives et le métamorphisme associé.

A ces hétérogénéités dépendant de la lithologie des formations volcaniques, est fréquemment associée une variabilité de leurs propriétés hydrodynamiques liée à leur **fracturation** d'origine tectonique.

• Altération

Les processus d'altération contribuent eux aussi à l'hétérogénéité de ces milieux en contribuant à la diminution de la perméabilité des roches, principalement du fait de leur argilisation et de la précipitation de minéraux secondaires. L'*altération météorique* d'une part, dont l'action est particulièrement importante sous les climats de type

tropical humide, et l'*altération hydrothermale* d'autre part, exacerbent ainsi les hétérogénéités décrites plus haut.

L'altération météorique est particulièrement marquée lors de phases prolongées d'exposition des formations volcaniques en surface. Les profils d'altération associés peuvent atteindre plusieurs dizaines de mètres d'épaisseur et sont alors structurés dans l'espace (surfaces ou paléosurfaces d'altération). Lorsqu'elle s'exerce sur de courtes périodes, l'altération affecte les formations sur de faibles épaisseurs (décimétriques à métriques).

L'altération hydrothermale est liée principalement à des circulations de fluides chauds au sein des roches. Elle est donc particulièrement fréquente en contexte volcanique. Elle s'exprime à différentes échelles :

- celle de l'édifice volcanique dans son ensemble, avec une plus forte occurrence au sein de la partie centrale et profonde des édifices que dans leur périphérie,
- celle de chaque formation volcanique, en raison de la chaleur héritée de sa mise en place. Sont plus particulièrement concernées les formations mises en place à haute température ou interstratifiées entre des formations mises en place à haute température,
- celle de structures spécifiques en général sécantes aux formations concernées : intrusions, zones de fractures constituant le lieu privilégié de circulations de fluides chauds, etc..

Ainsi, des formations qui, saines, apparaissent comme très perméables (faciès perméables de coulées, scories, etc.) peuvent s'avérer très peu perméables après une phase d'altération. Les formations les plus perméables sont ainsi fréquemment les plus affectées par les processus d'altération.

L'altération différentielle (alternances de niveaux ponçoux, rapidement altérés, et de nuées ardentes, comme sur le flanc est de la Montagne Pelée par exemple, ou au sein du massif du Mont Dore - Sancy) peut conférer aux aquifères une structure de type « sandwich ».

Sur le massif du Piton de la Fournaise, une estimation de la perméabilité des formations anciennes a été obtenue à l'aide d'une approche combinant des analyses géologiques et des mesures locales de la conductivité hydraulique. Ces mesures ont été réalisées à l'aide d'un appareillage spécifique, portable, permettant des injections d'air comprimé en milieu non saturé (Folio, 2001). L'ensemble des valeurs obtenues montre clairement une diminution progressive de la perméabilité en fonction de la profondeur et de l'âge des terrains. Cette diminution de la perméabilité des terrains avec la profondeur, qui contribue à relever la piézométrie générale dans la Fournaise, peut être mise en relation avec l'occurrence de phénomènes mécaniques (compression lithostatique) et chimiques (minéralisation secondaire liée à l'hydrothermalisme) qui peuvent être considérés comme universels quel que soit le type de volcan bouclier considéré.

4.2.3. Complexes ophiolitiques et gabbros

Différents complexes ophiolitiques ont été identifiés sur le territoire français. Outre-Mer, la Nouvelle-Calédonie est essentiellement constituée d'une ophiolite. En France métropolitaine, les péridotites affleurent dans la région du Limousin, les Pyrénées, les Alpes et la Corse, ces deux dernières régions étant les plus riches en affleurements (fig. 14).

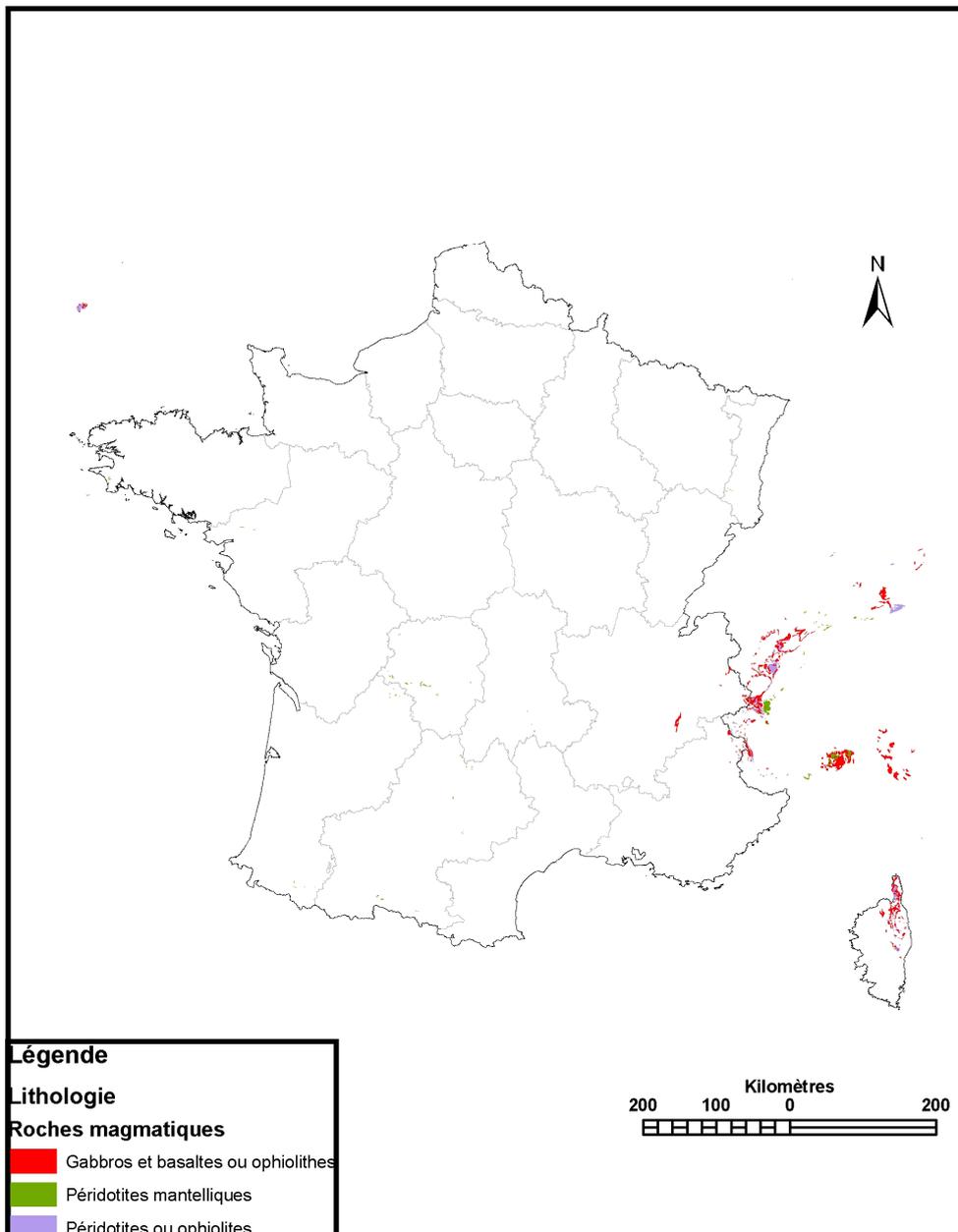


Figure 14 - Affleurements de péridotites en France
(d'après la carte géologique de France à 1/1 000 000, Bailly, 2004).

La structure plissée, telle qu'illustrée à la figure 15 dans les Alpes et à la figure 16 en Corse, de leur mode d'affleurement est favorable à l'existence potentielle de pièges en profondeur. La contrepartie en est la complexité et la mauvaise connaissance de leur géométrie. L'existence d'un toit imperméable est à vérifier. Ainsi, en Corse, les schistes lustrés sont *a priori* peu perméables. Il conviendrait toutefois de le vérifier.

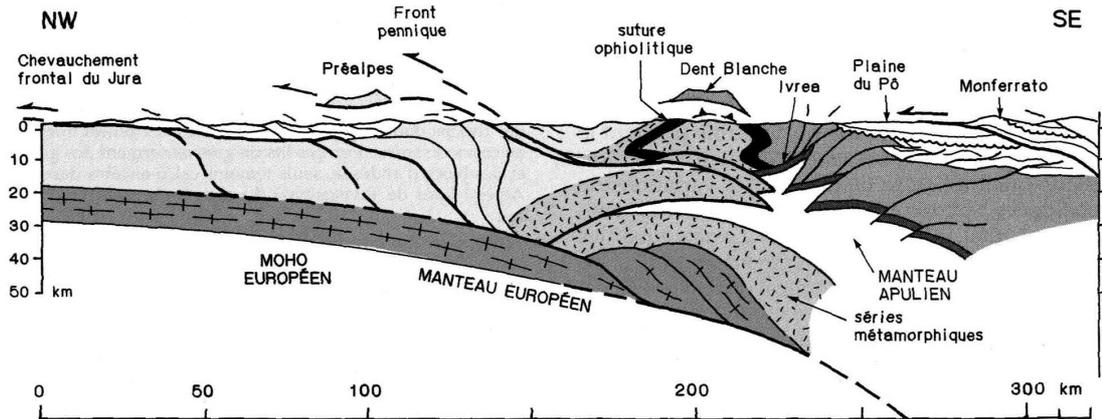


Figure 15 - Coupe géologique au travers des Alpes françaises passant par le massif de Belledonne (d'après Roure et al., 1990).

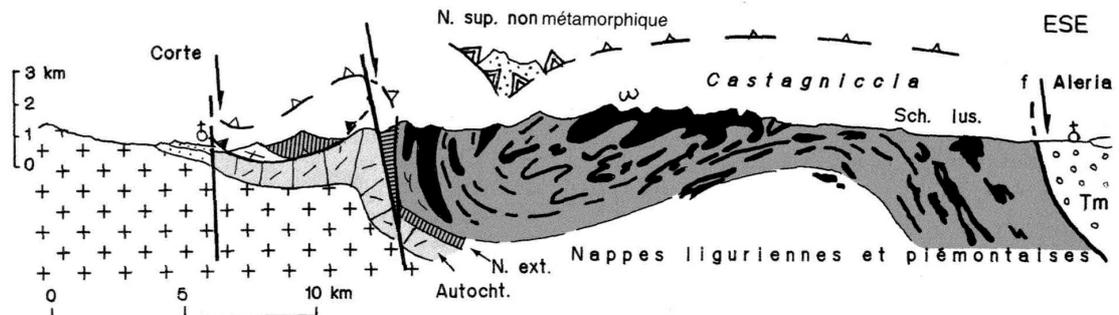


Figure 16 - Coupe de la Corse alpine - en gris : schistes lustrés, en noir : ophiolites (d'après Caron, 1993).

Les gabbros sont peu présents sur le territoire français (fig. 17). Leurs faibles teneurs en oxydes de Ca et Mg ainsi que leur faible occurrence réduisent considérablement leurs capacités de séquestration.

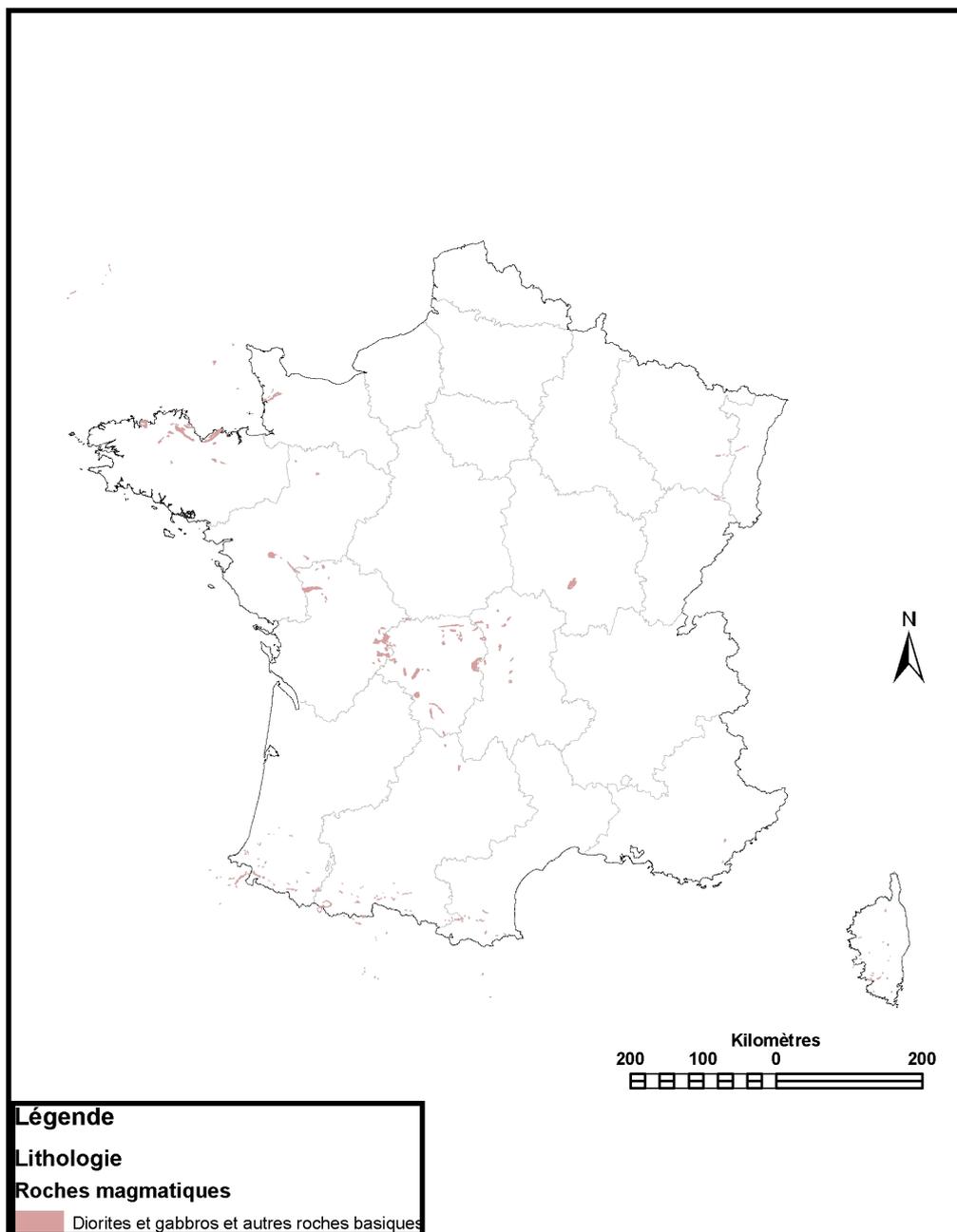


Figure 17 - Affleurements de gabbros en France
(d'après la carte géologique de France à 1/1 000 000, Bailly, 2004).

5. Conclusion

Hierarchisation des formations potentiellement favorables

Les milieux hydrogéologiques visés par la séquestration géologique en roches basiques sont complexes d'un point de vue géométrique (édifices volcaniques, complexes ophiolitiques...). Par ailleurs, leurs propriétés hydrodynamiques sont en règle générale de type discontinu. L'estimation du potentiel de séquestration d'un site est dès lors plus complexe que pour des milieux poreux.

D'un point de vue géologique et hydrogéologique (sans prise en compte des critères économiques de proximité des lieux d'émission de CO₂), les formations favorables, en France, à la séquestration géologique en roches basiques (séquestration minérale *in situ*) sont classées ci-dessous par ordre décroissant de potentiel :

- les complexes **volcaniques** :
 - les **îles volcaniques basaltiques** (réunion, Polynésie, Mayotte...) sont constituées d'horizons puissants de roches essentiellement basiques aux propriétés hydrodynamiques favorables (nombreux horizons perméables au sein d'empilements de coulées qui peuvent conduire, en grand, à leur assimilation à un milieu poreux). Elles peuvent satisfaire à la contrainte de profondeur étant donné la forte épaisseur de coulées basaltiques reposant sur le plancher océanique. La problématique cruciale réside dans l'efficacité du piégeage. Les lieux les plus favorables pour l'implantation d'un forage seraient en mer ou le long de la bordure littorale où l'altération hydrothermale est plus faible qu'au cœur de l'île et où l'aquifère éventuellement utilisé est salin et ne fait pas l'objet d'une autre valorisation ;
 - les **îles volcaniques andésitiques** (Guadeloupe, Martinique) sont lithologiquement plus hétérogènes et comportent aussi moins de roches basiques. Hormis cette différence lithologique, les commentaires faits sur les îles basaltiques s'y rapportent également ;
 - le **volcanisme métropolitain** (Cantal, Mont Dore). De faible puissance, il est peu évident d'y trouver un piège au-delà de la profondeur limite de 800 mètres. Par ailleurs, leur partie superficielle contient des aquifères potentiellement intéressants déjà exploités ou qu'il convient de préserver pour une exploitation future.
- les formations **ophiolitiques** :
 - la **Nouvelle-Calédonie** est essentiellement composée d'un complexe ophiolitique. Des configurations favorables à la séquestration minérale *in situ* doivent y exister ; en particulier en bordure littorale, ce qui permettrait d'injecter dans des aquifères salins ;
 - les **ophiolites des Alpes/Corse/Pyrénées** sont, de par leur passé tectonique mouvementé, potentiellement fracturées. De plus, leur contexte structural est

favorable à la présence de pièges. Toutefois, il existe une très forte incertitude géologique quant à leur géométrie et la taille des réservoirs potentiels de séquestration.

- le **plancher océanique** constitue *a priori* une alternative intéressante. Malheureusement, il apparaît que, dans le contexte de la France métropolitaine, la croûte océanique est située à des profondeurs et distances par rapport à la côte qui pourraient être rédhibitoires d'un point de vue économique.

La France ne comporte pas (sauf au voisinage des Kerguelen) de configuration de type « basaltes de plateaux » (émergés ou immergés) qui, à l'échelle mondiale, constituent, avec les volcans boucliers basaltiques et éventuellement les zones de dorsales situées à proximité des continents (ex. : Californie, Canada, Islande...), une des cibles les plus favorables à la séquestration *in situ*.

En terme de perspective, il semble opportun de mieux estimer la cinétique des réactions de carbonatation *in situ*. Leur vitesse conditionne en effet les contraintes, par ailleurs fortes, sur les caractéristiques hydrodynamiques de l'aquiclude (niveau d'imperméabilité) et sur la nécessité de l'existence d'une structure de type « piège ». En effet, plus la cinétique de carbonatation sera rapide, plus les fuites de CO₂ par migration verticale (ou latérale) seront acceptables car le CO₂ sera de toute façon destiné à précipiter avant d'avoir rejoint la surface. En d'autres termes, la « séquestration hydrodynamique » telle que définie au chapitre 3.3.1. sera d'autant plus efficace que la cinétique de carbonatation sera rapide. A l'inverse, si la cinétique de carbonatation est très lente, il convient de confiner le CO₂ dans un piège recouvert d'un aquiclude très imperméable afin de réduire considérablement les fuites. Une analyse de sensibilité de la vitesse de migration verticale du gaz en fonction de la perméabilité de l'aquiclude pourrait être envisagée au moyen de simulations numériques par modèle mathématique.

Cette étude bibliographique a par ailleurs mis en évidence le manque de connaissance dans le domaine de la séquestration minérale *in situ*, contrairement à la séquestration minérale *ex situ* qui fait l'objet de nombreuses publications. Il n'existe à l'heure actuelle aucun article général de référence traitant de ce sujet dans sa globalité.

6. Bibliographie

Bachu S., Gunter W.D., Perkins E.H. (1994) - Aquifer disposal of CO₂: hydrodynamic and mineral trapping. *Energy Conversion and Management*, vol. 35, 4, p. 269-279.

Bailly L. (2004) - Séquestration minérale *ex situ* du CO₂ - inventaire français des roches basiques et ultrabasiques.- Rapport BRGM en préparation.

Boillot G., Montadert L., Lemoine M., Biju-Duval B. (1984) - Les marges continentales actuelles et fossiles autour de la France. Masson, Paris.

Bonijoly D., Barbier J., Matray J.M. et al. (2003) - Feasibility of CO₂ storage in geothermal reservoirs. Example of the Paris basin, France. Rapport BRGM-CFG-ANTEA contribution to the GESTCO project. Fifth RTD Framework Programme (ENK6-CT-1999-00010). BRGM/RP-52349-FR.

Caron J.M. (1993) - Géologie de la Corse alpine. Association des Professeurs de Biologie-Géologie, Paris, 16 p..

Coleman R.G. (1977) - Ophiolites. Springer-Verlag, Berlin, 229 p.

Cox K.G., Bell J.D., Pankhurst R.J. (1979) - The interpretation of igneous rocks. Chapman & Hall, UK. 450 p.

Custodio E. (1985) - Hydrogeology of rocks of low permeability, edited by I.A.o. Hydrogeologists.

Dewandel B. (2002) - Structure et fonctionnement hydrogéologique d'un aquifère discontinu : l'ophiolite d'Oman. Université de Montpellier 2, Montpellier.

Folio J.L. (2001) - Distribution de la perméabilité dans le massif du Piton de la Fournaise : apport à la connaissance du fonctionnement hydrogéologique d'un volcan-bouclier. Université de la Réunion.

Foucault A., Raoult J.F. (1988) - Dictionnaire de géologie. Masson, Paris.

Goff F., Guthrie G., Counce D., Kluk E. et al. (1997) - Preliminary investigations on the CO₂ sequestering potential of ultramafic rocks. Rapport Los Alamos National Laboratory LA-13328-MS.

Goldberg D. (1999) - CO₂ sequestration beneath the seafloor: evaluating the *in situ* properties of natural hydrate-bearing sediments and oceanic basalt crust.- *Int. J. of The Soc. Mat. Eng. Resources*, vol. 7, 1, p. 11-16.

Guennoc P., Gorini C., Mauffret A. (2000) - Histoire géologique du golfe du Lion et cartographie du rift oligo-aquitainien et de la surface messinienne. *Géologie de la France*, vol. 3, 67-97.

Gunter W.D., Perkins E.H., McCann T.J. (1993) - Aquifer Disposal of CO₂ rich gases: Reaction Design for Added Capacity. *Energy Conversion and Management*, vol. 34, 9-11, p. 941-948.

Hall A. (1987) - *Igneous petrology*. Longman Scientific & Technical, 573 p.

Koide H., Shindo Y., Tazaki Y., Iijima M., Ito K., Kimura N., Omata K. (1997) - Deep sub-seabed disposal of CO₂ - the most protective storage. *Energy Conversion and Management*, vol. 38, S253-S258.

Koide H., Tazaki Y., Nogushi Y et al. (1992) - Subterranean containment and long-term storage of carbon dioxide in unused aquifers and in depleted natural gas reservoirs. *Energy Conversion and Management*, vol. 33, 619-???

Lachassagne P., Cruchet M., Gérard A et al. (2002, soumis) - Structure hydrogéologique des îles basaltiques anciennes : un modèle conceptuel distinct de ceux des îles récentes. Apport d'une campagne de forages de reconnaissance à Mayotte (Comores, France). *Bulletin de la Société Géologique de France*, vol.

Lackner K.S., Wendt C.H., Butt D.P. et al (1995) - Carbon dioxide disposal in carbonate minerals.- *Energy (Oxford)*, vol. 20, 11, p. 1153-1170.

McGrail B.P., Ho A.M., Reidel S.P., Schaef H.T. (2003) - Use and features of basalt formations for geologic sequestration. *In Greenhouse Gas Control Technologies*, edited by J.G.a.Y. Kaya, Elsevier Science Ltd.

Newall P.S., Clarke S.J., Haywood H.M., Scholes H., et al. (1999) - CO₂ storage as carbonate minerals. Rapport IEA.

Pinet B., Sibuet J.C., Lefort J.P. et al. (1991).- Structure profonde de la marge des entrées de la Manche et du plateau continental celtique : le profil WAM. *Mém. Soc. géol Fr.*, vol. 159, p. 167-183.

Roure F., Polino R., Nicolich R. (1990) - Early Neogene deformation beneath the Po plain constraints on the post-collisional Alpine evolution. *In Structure of the Alps. Mém. Soc. Géol. Fr.*, vol. 156, edited by F. Roure, P. Heitzman and R. Polino, p. 309-322, Paris.

Sasaki K., Akibayashi S., Hachiya A. (1999) - A calculation model for liquid CO₂ injection into shallow sub-seabed aquifer. *Int. J. Soc. Mat. Eng. for Resources*, vol. 7, 1 p.

Seifritz, W. (1990) - CO₂ disposal by means of silicates. *Nature*, vol. 345, 486.

Seranne M. (1999) - The Gulf of Lion continental margin (NW Mediterranean) revisited by IBS: an overview. In *The Mediterranean Basins: Tertiary Extension within the Alpine Orogen*, Special Publications, vol. 156, edited by B. Durand, L. Jolivet, G.F. Horvath and M. Seranne, p. 15-36, Geological Society, London.

Shindo Y., Fujioka Y., Yaniagisawa Y. et al. (1995) - Formation and stability of CO₂ hydrate. In *Direct Ocean Disposal of Carbon Dioxide*, edited by N. Handa and T. Ohsumi, p. 217-231, Terra Publishing, Tokyo.

Takabashi T., Goldberg D., Mutter J.C. (2000) - Secure, long-term sequestration of CO₂ in deep saline aquifers associated with oceanic and continental basaltic rocks. In *SRI International Symposium "Deep sea & CO₂ 2000"*, Mitaka.

van der Meer L.G.H. (1992) - Investigations regarding the storage of carbon dioxide in aquifers in the Netherlands. *Energy Conversion and Management*, vol. 33, 611-???

Wu, J.C.S., Sheen J.D., Chen S.Y et al. (2001) - Feasibility of CO₂ fixation via artificial rock weathering. *Industr.l Eng. Chem res.*, vol. 40, 18 p. 3902-3905.



**Centre scientifique et technique
Service Eau**

3, avenue Claude-Guillemin
BP 6009 – 45060 Orléans Cedex 2 – France – Tél. : 02 38 64 34 34