

Document public



**Origines des variations cycliques  
des teneurs en sulfate observées au  
voisinage du forage de Nogaro 2 :  
investigations de terrain, validation des  
hypothèses envisagées par modélisation  
hydrodynamique et de transport de masse**

Rapport final

BRGM/RP-69552-FR

Décembre 2019

1.89 3740.46 -625.5



Document public

# Origines des variations cycliques des teneurs en sulfate observées au voisinage du forage de Nogaro 2 : investigations de terrain, validation des hypothèses envisagées par modélisation hydrodynamique et de transport de masse

Rapport final

**BRGM/RP-69552-FR**

Décembre 2019

Étude réalisée dans le cadre du Projet de Recherche GAIA  
du BRGM PDR13AQI02

**J.-C. Manceau, L. André et P. Bourbon**

Avec la collaboration de

**A. Wuilleumier**

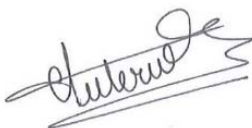
**Vérificateur :**

Nom : C. AUTERIVES

Fonction : Hydrogéologue du  
BRGM Orléans

Date : 17/01/2020

Signature :



**Approbateur :**

Nom : N. PEDRON

Fonction : Directeur du BRGM  
Nouvelle-Aquitaine

Date : 28/01/2019

Signature :



Le système de management de la qualité et de l'environnement  
est certifié par AFNOR selon les normes ISO 9001 et ISO 14001.

Contact : [qualite@brgm.fr](mailto:qualite@brgm.fr)

**Mots-clés** : analyse des eaux, sulfate, bore, isotopie, modélisation hydrodynamique, transport de masse, piézométrie, Sables Infra-Molassiques, Aquitaine, Occitanie

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

**Manceau J.-C., André L., Bourbon P., Wuilleumier A.** (2019) - Origines des variations cycliques des teneurs en sulfate observées au voisinage du forage de Nogaro 2 : investigations de terrain, validation des hypothèses envisagées par modélisation hydrodynamique et transport de masse. Rapport final. BRGM/RP-69552-FR, 94 p., 64 ill., 4 tab., 2 ann.

## Synthèse

Dans le cadre du programme GAIA, financé par TEREKA, l'Agence de l'Eau Adour-Garonne et le BRGM, et piloté par le BRGM, l'objectif majeur vise à améliorer la connaissance géologique et hydrogéologique des aquifères profonds du sud du Bassin aquitain, s'inscrivant en cela dans la lignée des travaux de recherche conduits au cours des vingt dernières années sur ces aquifères. Ce projet s'appuie sur des études nombreuses, touchant à la géologie, à l'hydrogéologie et à l'hydrogéochimie.

Au cours du programme, une base de données récapitulant les données hydrogéochimiques existantes a été construite. L'analyse de celle-ci a notamment montré que les eaux des Sables Infra-Molassiques (SIM) sont généralement peu minéralisées et présentent des concentrations en éléments majeurs très stables dans le temps.

Néanmoins, dans un ouvrage (le forage de Nogaro 2), de fortes variations des concentrations en sulfate, de 10 mg.L<sup>-1</sup> jusqu'à 100 mg.L<sup>-1</sup>, ont été mesurées. Ces variations sont cycliques et sont anti-corrélées avec les charges mesurées dans les SIM, ce qui semble plaider pour un impact des conditions hydrogéologiques de la zone sur les fluctuations en sulfate dans les eaux.

Un suivi hydrogéochimique plus poussé a été mis en place dans le cadre de ce programme pour étudier l'évolution temporelle de la concentration en sulfate, mais aussi celle d'autres éléments majeurs, traces et isotopes des eaux du forage de Nogaro 2 et de quatre autres forages avoisinants, captant tous l'aquifère des SIM. L'objectif a été de déterminer si d'autres éléments suivaient la même évolution que la concentration en sulfate et d'utiliser ces résultats pour en déduire des informations sur les processus géochimiques responsables de ces fluctuations.

Ces suivis, dans le temps, des concentrations en éléments majeurs et en éléments traces font apparaître :

- une confirmation des variations cycliques et saisonnières dans le forage de Nogaro 2. Si les variations en sulfate étaient connues, il ressort de cette étude que ces fluctuations sont accompagnées de variations de la teneur en bore (en concentration et en isotopie) et en carbone (<sup>13</sup>C et <sup>14</sup>C) ;
- des variations cycliques dans le forage d'Eauze. Ces variations sont moins prononcées qu'à Nogaro 2, mais des variations de concentration en sulfate et en bore (concentration et isotopie) ont aussi été observées dans ce forage ;
- des variations plus aléatoires sont observées dans LUG57 et dans IZA 5, mais compte tenu de leur proximité avec les stockages, il est difficile d'en tirer des conclusions précises ;
- une absence de variations dans le forage de Dému, avec des concentrations très stables au cours du temps.

Un modèle géochimique, basé sur des mélanges entre 3 types d'eau, plus ou moins enrichies en sulfate et en bore, a permis de reproduire les concentrations observées au cours du temps ; il ne s'agit que d'un modèle exploratoire mais il permet de fixer des valeurs moyennes des pôles de mélange (à la fois en termes de concentration et d'isotopie). L'étude géologique menée dans le secteur confirme la présence de gypse et composés sulfurés (pyrite) respectivement dans les horizons adjacents et dans le réservoir. Une étude minéralogique plus poussée, notamment pour identifier les phases porteuses de soufre et de bore, permettrait de mieux contraindre l'approche mise en œuvre.

Outre les aspects géochimiques et minéralogiques, une approche hydrodynamique / hydrodispersive a aussi été proposée au cours de cette étude, afin de comprendre les processus responsables de ces variations cycliques de composition chimique. L'objectif a été de tenter de reproduire les observations de concentration en sulfate à l'aide d'un modèle numérique maillé, en adoptant le cas échéant des modèles conceptuels distincts. En fin de compte, deux modèles conceptuels ont été établis, tous deux pouvant *a priori* expliquer ces variations cycliques : le premier suppose que les concentrations en sulfate observées et leurs variations proviennent d'échanges entre la base molasse argilo-sableuse, riche en sulfate, et les SIM ; alors que le second explique les variations observées par des échanges au sein même des SIM, dans lequel un panache riche en sulfate serait présent.

Le premier modèle n'est pas rejeté mais nécessite des conditions particulières pour expliquer les observations faites *in situ*, notamment l'existence d'écoulements préférentiels au sein des SIM permettant une homogénéisation des concentrations en sulfate au sein de l'aquifère.

Le second modèle nécessite moins d'hypothèses, notamment concernant les paramètres hydrogéologiques utilisés. Cependant, la question de la constitution d'un panache de sulfate reste pour l'instant une hypothèse qu'il faudrait pouvoir vérifier (origine de ce panache, comportement au sein de l'aquifère depuis sa mise en place...).

## Sommaire

|   |           |
|---|-----------|
| <b>1. Introduction .....</b>  | <b>11</b> |
| <b>2. Suivi hydrogéochimique.....</b>   | <b>13</b> |
| 2.1. OBSERVATIONS CHIMIQUES DES EAUX DE NOGARO 2 JUSQU'EN 2015 .....  | 13        |
| 2.2. OBSERVATIONS CHIMIQUES DES EAUX D'AUTRES FORAGES.....  | 15        |
| 2.3. SUIVI TRIMESTRIEL DE LA COMPOSITION CHIMIQUE DES EAUX.....   | 17        |
| 2.3.1. Paramètres physico-chimiques .....   | 18        |
| 2.3.2. Eléments majeurs .....   | 18        |
| 2.3.3. Eléments traces .....  | 22        |
| 2.3.4. Isotopie.....  | 24        |
| 2.4. INTERPRÉTATIONS GÉOCHIMIQUES DANS LE FORAGE NOGARO 2 .....   | 30        |
| 2.5. CONCLUSIONS.....   | 35        |
| <b>3. Origine potentielle des sulfates présents dans les eaux souterraines issues des Sables Infra-Molassiques .....</b>            | <b>37</b> |
| 3.1. CONTEXTES GÉOLOGIQUE ET PALÉO-ENVIRONNEMENTAL .....  | 37        |
| 3.1.1. Évolution paléo-environnementale au début du Tertiaire sud-aquitain .....  | 37        |
| 3.1.2. Structuration tectonique et géologie de la base du Tertiaire dans le secteur d'étude .....                                   | 39        |
| 3.2. GÉOMETRIE DU SOUS-SOL.....   | 39        |
| 3.3. HYPOTHÈSES SUR L'ORIGINE DES SULFATES « CYCLIQUES » .....  | 43        |
| 3.3.1. Généralités.....   | 43        |
| 3.3.2. Indices relevés dans le secteur d'étude .....  | 43        |
| 3.3.3. Discussion et conclusion.....  | 45        |
| <b>4. Éléments de compréhension des phénomènes observés à Nogaro 2 : modélisation hydrodynamique et de transport de masse .....</b> | <b>47</b> |
| 4.1. MODELES CONCEPTUELS POUVANT EXPLIQUER LES VARIATIONS CYCLIQUES DES TENEURS EN SULFATE OBSERVEES A NOGARO 2.....                | 47        |
| 4.2. MODELE CONCEPTUEL N°1 : SOURCE DE SULFATE EN BASE MOLASSE ET ECHANGES VERTICAUX PERIODIQUES AVEC LES SIM .....                 | 47        |
| 4.2.1. Construction du modèle numérique : adaptation du Modèle Sud Adour-Garonne.....   | 47        |
| 4.2.2. Modélisation hydrodynamique : analyse de sensibilité .....   | 55        |
| 4.2.3. Modélisation par transport de masse .....  | 64        |

|  |           |
|--|-----------|
| 4.3. MODELE CONCEPTUEL N°2 : PRESENCE D'UNE SOURCE DE SULFATE AU SEIN DES SIM ET DEPLACEMENTS « HORIZONTALS » PERIODIQUES DU PANACHE RICHE EN SULFATE..... | 77        |
| 4.4. CONCLUSIONS SUR LES MODELES TESTES.....   | 89        |
| <b>5. Conclusions de l'étude .....</b>   | <b>91</b> |
| <b>6. Bibliographie .....</b>  | <b>93</b> |

## Liste des illustrations

|   |    |
|---|----|
| Illustration 1 - Concentrations en sulfate disponibles dans le forage Nogaro 2, entre 1980 et 2015.....   | 13 |
| Illustration 2 - Concentrations en cations majeurs disponibles dans le forage de Nogaro 2, entre 1980 et 2016 .....   | 13 |
| Illustration 3 - Niveaux piézométriques vs. mesures des concentrations en sulfate disponibles dans le forage de Nogaro 2.....   | 14 |
| Illustration 4 - Amplitude des fluctuations piézométriques vs. concentration maximale en sulfate, dans le forage de Nogaro 2, pour les années recensant plus de 5 mesures de concentration en sulfate .....   | 14 |
| Illustration 5 - Localisation des forages (points oranges) pour lesquels l'évolution des concentrations en sulfate a été analysée lors de cette étude. La localisation des stockages de gaz d'Izaute (points rouges) et de Lussagnet (points verts) est indiquée par les puits principaux associés à ces deux sites ..... | 15 |
| Illustration 6 - Concentrations en sulfate (en rouge) et piézométrie mesurées (en bleu) dans le forage IZA 5. Figure de gauche : entre 1979 et 2014 ; figure de droite : zoom entre 1999 et 2002 .....  | 16 |
| Illustration 7 - Concentrations en sulfate (en rouge) et piézométrie mesurées (en bleu) dans le forage LUG 57. Figure de gauche : entre 1990 et 2014 ; figure de droite : zoom entre 1999 et 2002 .....   | 16 |
| Illustration 8 - Concentrations en sulfate et piézométrie mesurées dans le forage d'Eauze (2007-2014)..   | 16 |
| Illustration 9 - Concentrations en sulfate et piézométrie mesurées dans le forage de Dému (1996-2014)   | 17 |
| Illustration 10 - Variations des concentrations en cations majeurs pour les eaux des forages de Nogaro 2, Eauze, LUG 57, IZA 5 et Dému .....  | 20 |
| Illustration 11 - Variations du rapport (Ca+Mg) / SO <sub>4</sub> en fonction du temps pour les eaux des forages de Dému, LUG 57, Eauze et Nogaro 2.....  | 21 |
| Illustration 12 - Variations de la concentration en sulfate et de la piézométrie en fonction du temps, pour les forages de Nogaro 2 (à gauche) et d'Eauze (à droite).....   | 22 |
| Illustration 13 - Variations des concentrations en éléments traces pour les eaux des forages de Nogaro 2, Eauze, Dému, LUG 57 et IZA 5 .....  | 23 |
| Illustration 14 - Variations des teneurs en $\delta^{13}\text{C}$ et activités en $^{14}\text{C}$ pour les eaux des forages de Dému, LUG 57, Nogaro 2 et Eauze .....  | 26 |
| Illustration 15 - Comparaison entre variations des teneurs en $\delta^{13}\text{C}$ et la piézométrie pour les forages Dému, LUG 57, Nogaro 2 et EAUZE .....  | 27 |
| Illustration 16 - Variations des teneurs en $\delta^{34}\text{S}$ pour les eaux des forages de Dému, LUG 57, Nogaro 2 et Eauze .....  | 28 |



|  |    |
|--|----|
| Illustration 17 - Variations des concentrations totales en bore (à gauche) et des teneurs $\delta^{11}\text{B}$ (à droite) pour les eaux des forages de Dému, LUG 57 et IZA 5.....   | 29 |
| Illustration 18 - Comparaison entre variations des teneurs en $\delta^{11}\text{B}$ et concentration en bore pour le forage de Nogaro 2 (à gauche) et le forage d'Eauze (à droite) .....   | 30 |
| Illustration 19 - Mise en évidence des phases de dilution et de concentration affectant la composition chimique des eaux de l'aquifère dans le forage de Nogaro 2 .....  | 31 |
| Illustration 20 - Représentation conceptuelle de la modélisation géochimique des phases de dilution et de concentration, affectant la composition chimique des eaux de l'aquifère dans le forage de Nogaro 2 .....   | 32 |
| Illustration 21 - Variations modélisées en fonction du temps (a) de la teneur en bore total, (b) de $\delta^{11}\text{B}$ , (c) de la teneur en sulfate, (d) de $\delta^{34}\text{S}$ des eaux de l'aquifère dans le forage de Nogaro 2..  | 33 |
| Illustration 22 - Résultats des expériences de mise en solution des échantillons solides provenant du forage de LUG 74 (à gauche les sulfates et à droite, le bore).....   | 34 |
| Illustration 23 - Cartes paléo-environnementales régionales : a) au Thanétien ; b) à l'Yprésien ; c) au Lutétien (Synthèse géologique et géophysique des Pyrénées, BRGM-AGSO, 2018).....   | 38 |
| Illustration 24 - Carte structurale du secteur d'étude : localisation des structures anticlinales et de la flexure celtaquitaine (Serrano, 2001).....  | 39 |
| Illustration 25 - Carte de la zone d'étude : positions des 6 forages et des 3 coupes (en gris) extraites du modèle géologique 3D GAIA (Grataloup et al., à paraître ; fond carte IGN au 1/100 000).....  | 40 |
| Illustration 26 - Coupes extraites du modèle géologique 3D GAIA (version 12/12/2019).....  | 42 |
| Illustration 27 - Images, au microscope optique, des grains de pyrite enrobés de quartz provenant d'une extraction (batée + bromoforme) sur un échantillon prélevé dans le forage de LUG 101 à une profondeur de 797 m/sol.....  | 44 |
| Illustration 28 - Extraction du modèle MSAG ; couche des SIM et conditions aux limites.....  | 49 |
| Illustration 29 - Vue ouest-est en coupe du modèle utilisé ; l'échelle de couleur correspond à l'épaisseur des différentes couches.....  | 49 |
| Illustration 30 - Présentation schématique du modèle conceptuel n°1 : les formations et couches considérées dans la modélisation hydrodynamique sont les couches de couleurs .....   | 50 |
| Illustration 31 - Charge hydraulique dans les SIM au niveau de différents ouvrages.....  | 51 |
| Illustration 32 - Carte des différences de charges entre les charges calculées à Nogaro 2 et celles calculées ailleurs dans le secteur d'intérêt : comparaison entre les cartes produites à partir du modèle initial et celles produites à partir du modèle simplifié, pour trois dates différentes .....                          | 52 |
| Illustration 33 - Comparaison entre les résultats du modèle initial et ceux du modèle simplifié : charges calculées à Nogaro 2 (haut), différence de charges entre Lussagnet et Nogaro 2 (milieu), différence de charges entre Izaute et Nogaro 2 (bas).....   | 53 |
| Illustration 34 - [Haut] Charge hydraulique au droit de Nogaro 2, dans les SIM et dans les deux couches sus-jacentes représentant la molasse / [Bas] Différence de charge entre les SIM et chacune des couches de la base molasse.....   | 54 |
| Illustration 35 - Débit de drainance entre les SIM et la base molasse .....  | 55 |
| Illustration 36 - Simulation avec une perméabilité de la couche argileuse de la base molasse de $10^{-8}$ m/s [Haut] Charge hydraulique au droit de Nogaro 2, dans les SIM et dans les deux couches sus-jacentes représentant la molasse / [Bas] Différence de charge entre les SIM et chacune des couches de la base molasse..... | 56 |
| Illustration 37 - Simulation avec une perméabilité de la couche argileuse de la base molasse de $10^{-9}$ m/s [Haut] Charge hydraulique au droit de Nogaro 2, dans les SIM et dans les deux couches  |    |

|                   |   |    |
|-------------------|---|----|
|                   | sus-jacentes représentant la molasse / [Bas] Différence de charge entre les SIM et chacune des couches de la base molasse .....   | 57 |
| Illustration 38 - | Simulation avec une perméabilité de la couche argileuse de la base molasse de $10^{-11}$ m/s [Haut] Charge hydraulique au droit de Nogaro 2, dans les SIM et dans les deux couches sus-jacentes représentant la molasse / [Bas] Différence de charge entre les SIM et chacune des couches de la base molasse .....                                      | 58 |
| Illustration 39 - | Simulation avec une perméabilité de la couche argileuse de la base molasse de $10^{-12}$ m/s [Haut] Charge hydraulique au droit de Nogaro 2, dans les SIM et dans les deux couches sus-jacentes représentant la molasse / [Bas] Différence de charge entre les SIM et chacune des couches de la base molasse .....                                      | 59 |
| Illustration 40 - | Différence de charge entre les SIM et chacune des couches de la base molasse pour la configuration de référence avec variation de l'épaisseur de la couche argileuse : [Haut] 2m / [Bas] 20m .....  | 60 |
| Illustration 41 - | Simulation avec un coefficient d'emmagasinement spécifique de la couche argileuse de la base molasse de $10^{-5}$ m <sup>-1</sup> [Haut] Charge hydraulique au droit de Nogaro 2, dans les SIM et dans les deux couches sus-jacentes représentant la molasse / [Bas] Différence de charge entre les SIM et chacune des couches de la base molasse ..... | 61 |
| Illustration 42 - | Simulation avec un coefficient d'emmagasinement spécifique de la couche sableuse de la base molasse de $10^{-5}$ m <sup>-1</sup> [Haut] Charge hydraulique au droit de Nogaro 2, dans les SIM et dans les deux couches sus-jacentes représentant la molasse / [Bas] Différence de charge entre les SIM et chacune des couches de la base molasse .....  | 62 |
| Illustration 43 - | Présentation schématique du modèle conceptuel n°1 avec la configuration « lentille sableuse isolée » .....  | 63 |
| Illustration 44 - | Simulation avec une extension limitée de la lentille sableuse [Haut] Charge hydraulique au droit de Nogaro 2, dans les SIM et dans les deux couches sus-jacentes représentant la molasse / [Bas] Différence de charge entre les SIM et chacune des couches de la base molasse .....   | 63 |
| Illustration 45 - | Présentation schématique du modèle conceptuel n°1, avec les concentrations initiales en sulfate considérées pour la modélisation par transport de masse .....   | 64 |
| Illustration 46 - | Concentration en sulfate (en mg/l) dans les SIM au droit de Nogaro 2, les charges hydrauliques au même point sont tracées également - configuration hydrodynamique de référence .....   | 65 |
| Illustration 47 - | Concentration en sulfate (en mg/l) dans les SIM au droit de Nogaro 2, les charges hydrauliques au même point sont tracées également - configuration hydrodynamique de référence sans source de sulfate à 1 000 mg/l .....   | 65 |
| Illustration 48 - | Concentration en sulfate (en mg/l) dans les SIM au droit de Nogaro 2 - configuration hydrodynamique n°2 qui maximise les échanges par drainance .....   | 66 |
| Illustration 49 - | Concentration en sulfate (en mg/l) dans les SIM au droit de Nogaro 2 utilisant la configuration hydrodynamique qui maximise les échanges par drainance : transport de masse avec et sans prise en compte de la dispersion .....   | 67 |
| Illustration 50 - | Concentration (en mg/l) dans les SIM au droit de Nogaro 2 - configuration hydrodynamique de référence ; les SIM sont divisés en deux sous-couches .....   | 68 |
| Illustration 51 - | [Haut] Concentration (en mg/l) dans les SIM au droit de Nogaro 2 - configuration hydrodynamique n°2 qui maximise les échanges par drainance ; les SIM sont divisés en deux sous-couches / [Bas] Les charges dans les SIM sont affichées en plus de la concentration mesurée dans la sous-couche « haute » des SIM .....                                 | 69 |
| Illustration 52 - | Concentration (en mg/l) dans les SIM au droit de Nogaro 2 - configuration hydrodynamique de l'illustration 51 avec une concentration source de 1 500 mg/l .....   | 70 |

|  |    |
|--|----|
| Illustration 53 - Concentration (en mg/l) dans les SIM au droit de Nogaro 2 - configuration hydrodynamique de l'illustration 51 avec changement de la concentration dans la couche argileuse au droit de Nogaro 2 .....  | 71 |
| Illustration 54 - Concentration (en mg/l) dans les SIM au droit de Nogaro 2 - modification de la configuration de l'illustration 51 au niveau de l'extension de la lentille sableuse et de son coefficient d'emmagasinement ; les SIM sont divisés en deux sous-couches.....   | 73 |
| Illustration 55 - Débit d'eau (m <sup>3</sup> /j) échangé entre les SIM et la base molasse en fonction de l'extension de la lentille sableuse de base molasse .....  | 75 |
| Illustration 56 - Concentration (en mg/l) dans les SIM au droit de Nogaro 2 - modification de la configuration de l'illustration 51 au niveau de la perméabilité de la couche argileuse / [Bas] 10 <sup>-8</sup> m/s au niveau de toute la couche / [Haut] 10 <sup>-8</sup> au niveau de toute la couche sauf au droit de Nogaro 2 (10 <sup>-7</sup> m/s)..... | 76 |
| Illustration 57 - Trajectoire au sein de la maille du forage de Nogaro 2 ; un zoom est fourni sur la figure de droite (On rappelle que l'extension des mailles est de 2 km x 2 km. La direction du gradient hydraulique induit par les opérations de stockage et de soutirage de gaz est indiquée par la flèche orange) .....                                  | 78 |
| Illustration 58 - Modèle local discrétisé, établi pour évaluer le modèle conceptuel alternatif .....   | 79 |
| Illustration 59 - [Haut] Localisation et concentration du panache au sein du modèle local discrétisé pour la première configuration testée / [Bas] Concentration obtenue au droit de Nogaro 2 pour cette configuration, les charges hydrauliques au même point sont tracées également....  | 80 |
| Illustration 60 - Concentration obtenue au droit de Nogaro 2 pour la première configuration testée, avec prise en compte des effets de dispersion ; les charges hydrauliques au même point sont tracées également .....  | 81 |
| Illustration 61 - [Haut] Localisation et concentration du panache au sein du modèle local discrétisé pour la seconde configuration testée / [Bas] Concentration obtenue au droit de Nogaro 2 pour cette configuration, les charges hydrauliques au même point sont tracées également....   | 82 |
| Illustration 62 - [Haut] Vue de dessus / [Bas] Vue en coupe du modèle local raffiné verticalement.....   | 84 |
| Illustration 63 - Concentration obtenue au droit de Nogaro 2 pour la configuration présentée à l'illustration 62, les charges hydrauliques au même point sont tracées également [Haut] Sans dispersion, [Bas] Avec dispersion.....   | 85 |
| Illustration 64 - Champs de concentration à différentes dates au cours de la simulation [Partie gauche] Arrivée des sulfates au forage prélevé / [Partie droite] Déplacement du panache au cours d'un cycle stockage/soutirage. La zone où le pompage a lieu est encadrée en rouge.....  | 87 |

## Liste des tableaux

|   |    |
|---|----|
| Tableau 1 - Enrichissement des eaux de Nogaro 2, en bore et en sulfate, en fonction du temps, en prenant comme référence (ref) la concentration de ces deux éléments en juillet 2016 .....  | 24 |
| Tableau 2 - Mesures δD et δ <sup>18</sup> O lors des premières campagnes de prélèvements dans les 5 forages .....   | 24 |
| Tableau 3 - Mesures du ratio <sup>87</sup> Sr/ <sup>86</sup> Sr lors des premières campagnes de prélèvements dans les 5 forages .....   | 25 |
| Tableau 4 - Coupes lithostratigraphiques synthétiques des 6 forages (indices : * = gypse / ** = pyrite ; les valeurs correspondent à des profondeurs exprimées par rapport au sol) ; Eauze, IZA 5, Dému, LUG 57 et Nogaro 2 font référence aux noms des forages présentés au chapitre 2 . | 40 |

## Liste des annexes

|  |    |
|--|----|
| Annexe 1 Coupe technique et géologique du forage de Nogaro 2 .....                               | 95 |
| Annexe 2 Compositions chimiques des eaux des forages de Nogaro 2, Eauze, Dému, LUG 57 et IZA 5 . | 99 |

# 1. Introduction

Dans le cadre du projet GAIA, une base de données récapitulant les données hydrogéochimiques existantes a été construite (Wuilleumier et al., 2015). L'analyse de celle-ci a notamment montré que les eaux des Sables Infra-Molassiques (SIM) sont généralement peu minéralisées et présentent des concentrations en éléments majeurs très stables dans le temps.

Néanmoins, dans un ouvrage (à savoir le forage de Nogaro 2, 09528X0026/F), de fortes variations des concentrations en sulfate, allant de  $10 \text{ mg.L}^{-1}$  jusqu'à  $100 \text{ mg.L}^{-1}$ , ont été mesurées. Ces variations sont cycliques et sont anti-corrélées avec les charges hydrauliques mesurées dans les SIM, ce qui semble plaider pour un impact des conditions hydrogéologiques de la zone sur les fluctuations en sulfate dans les eaux.

Afin d'avoir une meilleure connaissance des mécanismes sous-jacents à ces fluctuations, un suivi hydrogéochimique plus poussé a été mis en place dans le cadre du projet GAIA. Cette étude s'est focalisée en particulier sur l'évolution, dans le temps, de la concentration en sulfate, mais aussi des autres éléments majeurs, traces et des isotopes des eaux du forage de Nogaro 2 et de quatre autres forages avoisinants, tous captant l'aquifère des SIM. L'objectif est de déterminer si d'autres éléments suivent la même évolution que la concentration en sulfate dans le temps et d'utiliser ces résultats pour en déduire des informations sur les processus géochimiques responsables de ces fluctuations. Comme expliqué dans le chapitre 2 de ce rapport, les nouvelles analyses ont notamment montré que d'autres éléments présentent également des variations cycliques. Suite à ces nouvelles analyses chimiques, une modélisation géochimique a été réalisée afin de caractériser, à partir d'un modèle de mélange, les différents pôles (eaux de différents horizons) qui pourraient être responsables de ces variations de concentration.

Pour compléter l'approche géochimique focalisée sur les concentrations en sulfate des eaux, une étude géologique et minéralogique a consisté à établir les sources potentielles de ce soufre. Comme indiqué dans André (2002), du soufre est présent et identifié dans les molasses sus-jacentes. Mais, d'autres sources sont possibles, comme dans les sables, où le soufre est présent sous forme de pyrite. Le chapitre 3 de ce rapport permet de mieux définir les types de dépôts et les occurrences potentielles de ces sources de soufre dans le secteur géographique de Nogaro.

Les variations cycliques des sulfates et d'autres éléments chimiques dans les eaux du forage de Nogaro laissent supposer que des échanges se produisent dans le secteur de ce forage. Pour aller plus loin dans l'analyse de ces mécanismes et afin de pouvoir quantifier ces échanges, une modélisation hydrodynamique et de transport de masse a alors été mise en place pour tenter d'expliquer les fortes fluctuations de concentrations. Plusieurs horizons géologiques ont été considérés dans le modèle (SIM, base molasse, lentilles sableuses ...) et les variations de charges des SIM dues au stockage de gaz ont été prises en compte, pour tenter de se rapprocher des conditions réelles du site. Différents modèles hydrodynamiques et hydrodispersifs ont été construits à partir de modèles conceptuels, issus des hypothèses de transfert pouvant expliquer les variations de concentration au cours du temps. Ces modèles sont décrits et testés dans le chapitre 4 de ce rapport.



## 2. Suivi hydrogéochimique

### 2.1. OBSERVATIONS CHIMIQUES DES EAUX DE NOGARO 2 JUSQU'EN 2015

Le forage de Nogaro 2 (09528X0026/F - BSS002EFSB) est utilisé pour l'alimentation en eau potable de la ville de Nogaro (voir annexe 1). Foré en 1982, ce forage a fait l'objet d'un suivi régulier de la composition chimique de ses eaux. L'analyse de ce suivi hydrogéochimique, au début de cette étude, a permis de mettre en évidence la variabilité de la concentration en sulfate au cours du temps (illustration 1). Ainsi, pendant les années 2003-2015, entre 6 et 12 mesures par an ont été réalisées. Habituellement, la composition chimique des eaux de l'aquifère des Sables Infra-Molassiques ne varie que modérément au cours du temps. Les eaux de Nogaro 2 présentent *a contrario* une variation saisonnière des concentrations en sulfate (illustration 1). Les concentrations les plus basses sont de l'ordre de 10 mg.L<sup>-1</sup>, alors que les plus fortes peuvent atteindre des valeurs supérieures à 100 mg.L<sup>-1</sup>.

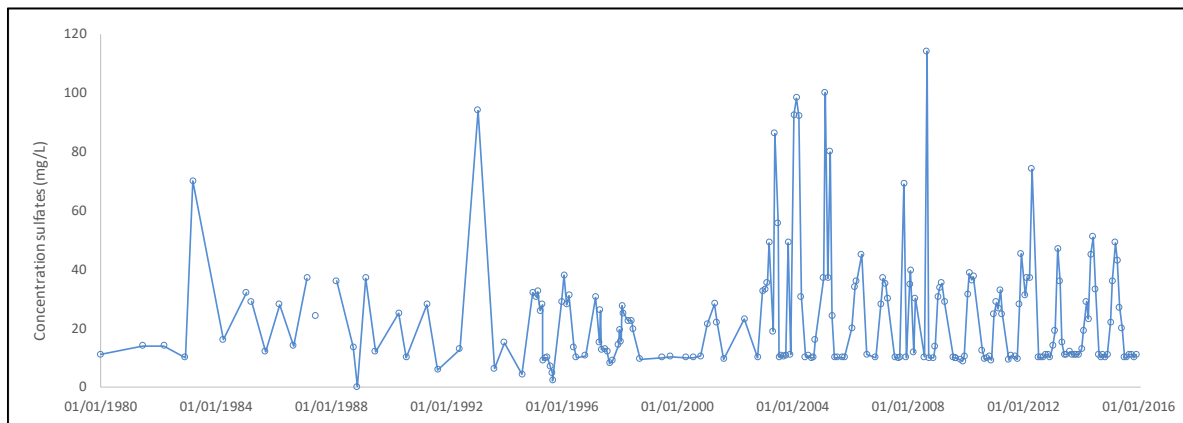


Illustration 1 - Concentrations en sulfate disponibles dans le forage Nogaro 2, entre 1980 et 2015

Si les sulfates ont fait l'objet d'un suivi régulier, les analyses d'eau disponibles sont souvent incomplètes et il est ainsi difficile de pouvoir corréliser ces variations de teneurs en sulfate avec des variations d'autres éléments chimiques (illustration 2). Sur cette figure, les points n'ont volontairement pas été reliés par une courbe, car il s'agit très souvent de données ponctuelles (très souvent, une valeur par an), ce qui empêche toute interprétation d'évolution dans le temps.

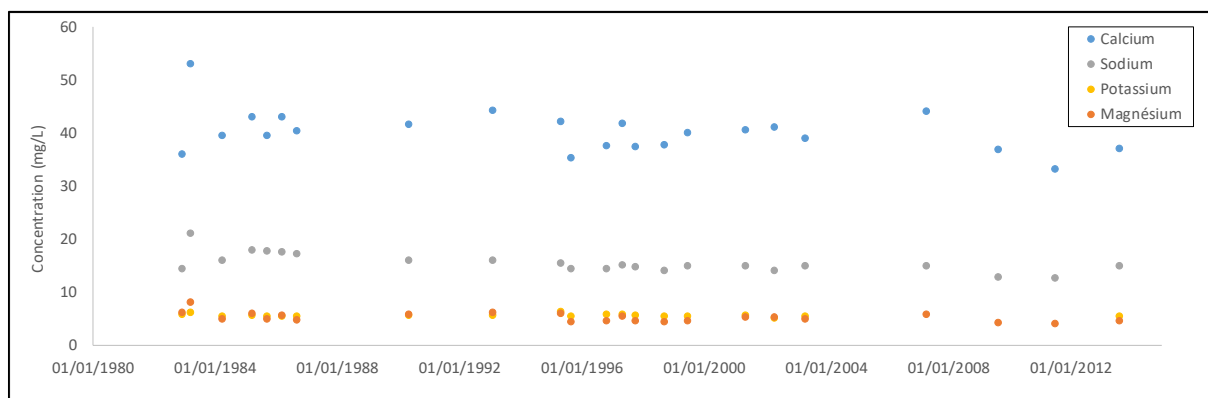


Illustration 2 - Concentrations en cations majeurs disponibles dans le forage de Nogaro 2, entre 1980 et 2016

Une comparaison visuelle des niveaux piézométriques et des concentrations mesurées montre que les concentrations fortes en sulfate se retrouvent dans le forage de Nogaro 2, lorsque les niveaux piézométriques sont bas (illustration 3). On a donc une anti-corrélation apparente entre les mesures de niveaux et les mesures de concentrations en sulfate. On remarque également que les cycles de concentration ont une forme différente des cycles de piézométrie : on a une succession de « plateaux » entre les phases d'augmentation puis de diminution des concentrations et non des sinusoides. Ce plateau des teneurs en sulfate fait ainsi apparaître une concentration minimale en cet élément ( $10 \text{ mg.L}^{-1}$ ) dans l'aquifère sollicité par le forage.

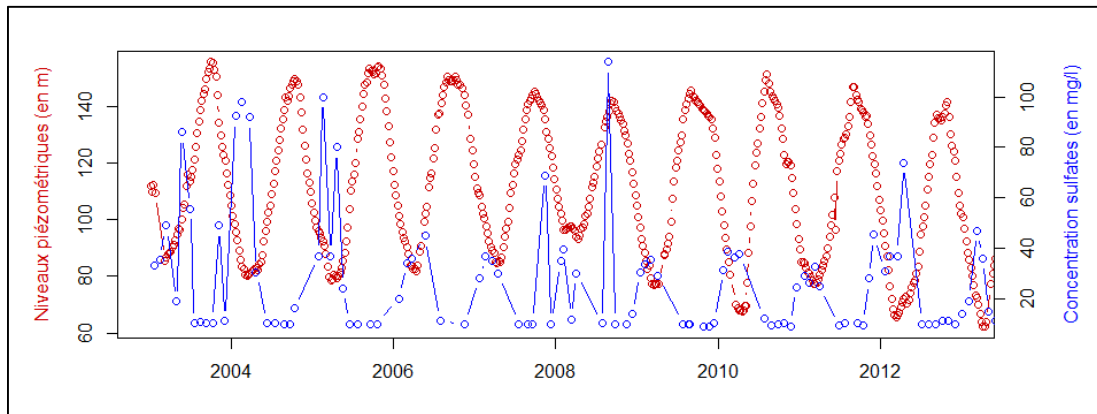


Illustration 3 - Niveaux piézométriques vs. mesures des concentrations en sulfate disponibles dans le forage de Nogaro 2

On peut également s'intéresser aux corrélations entre amplitude des fluctuations piézométriques annuelles et les concentrations maximum observées chaque année. Pour cette analyse, on se restreint aux années ayant plus de 5 mesures annuelles (ce qui représente 16 années entre 1982 et 2018). La corrélation n'est pas évidente, comme le montre l'illustration 4. Cela ne veut pas forcément dire qu'il n'en existe pas : les niveaux piézométriques ont été mesurés au moins 30 fois par an pour la période considérée (1982-2018) et plus d'une cinquantaine de fois, la majeure partie du temps, ce qui signifie que les amplitudes piézométriques sont plutôt bien caractérisées ; alors qu'au maximum 12 mesures de concentrations en sulfate existent pour les années les plus fournies (notamment pour la période 2016-2018). La concentration maximale mesurée chaque année est donc plus sujette à discussion quant à sa capacité à représenter la concentration maximale annuelle réelle.

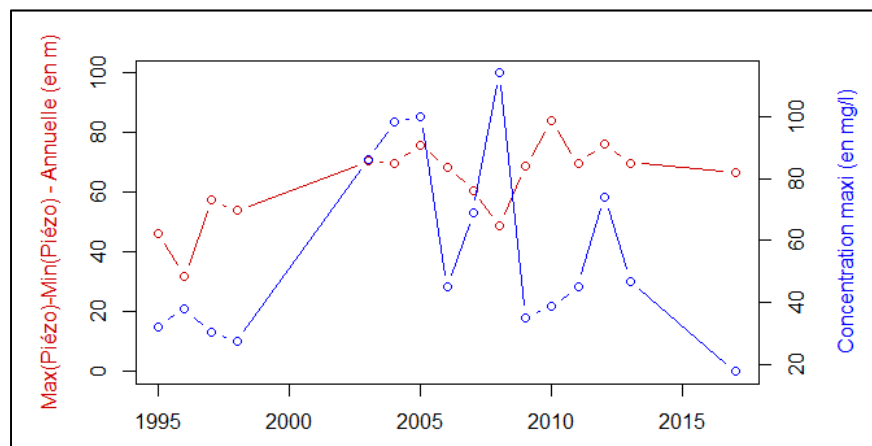


Illustration 4 - Amplitude des fluctuations piézométriques vs. concentration maximale en sulfate, dans le forage de Nogaro 2, pour les années recensant plus de 5 mesures de concentration en sulfate



## 2.2. OBSERVATIONS CHIMIQUES DES EAUX D'AUTRES FORAGES

Dans le cadre de cette étude, une analyse du suivi hydrogéochimique des eaux de forages, situés à proximité immédiate du forage de Nogaro 2 et captant l'aquifère des SIM, a été réalisée pour la même période (historique des données jusqu'à fin 2015). Cette analyse visait à vérifier si les concentrations en sulfate dans ces eaux montrent des similarités avec les observations faites à Nogaro 2. Nous nous sommes intéressés aux forages LUG 57 (09526X0210/F - BSS002EFMD), IZA 5 (09527X0018/F - BSS002EFPD), Eauze (09536X0030/F - BSS002EGAG) et Dému (09536X0008/F - BSS002EFZJ) (illustration 5). Les données piézométriques et les analyses de composition chimique des eaux antérieures à 2016 sont ici présentées.

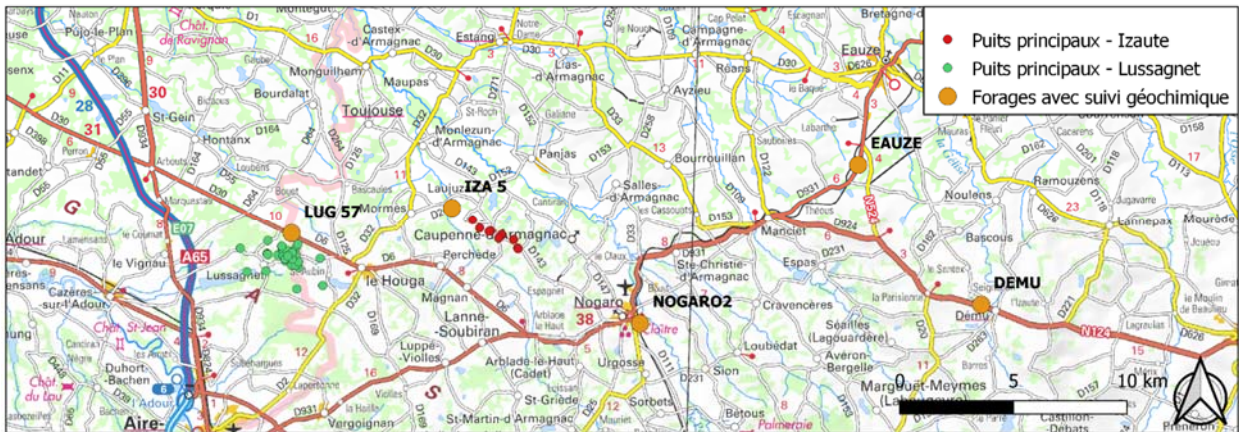


Illustration 5 - Localisation des forages (points oranges) pour lesquels l'évolution des concentrations en sulfate a été analysée lors de cette étude. La localisation des stockages de gaz d'Izaute (points rouges) et de Lussagnet (points verts) est indiquée par les puits principaux associés à ces deux sites.

Les illustrations 6 à 9 montrent les évolutions des concentrations en sulfate pour ces différents ouvrages. La première remarque concerne la fréquence des analyses chimiques. Il est difficile de pouvoir identifier une évolution précise des concentrations en sulfate dans le temps, compte tenu de la durée entre deux échantillonnages. Néanmoins, on remarque, sur l'ensemble des points de suivis, que l'ordre de grandeur des concentrations en sulfate mesurées est hétérogène, variant en moyenne de 0 à 25 mg.L<sup>-1</sup>, selon les ouvrages consultés. Les concentrations maximales en sulfate, de même que les amplitudes de variations les plus élevées, sont observées dans le forage de Nogaro 2. Pour les autres forages, les observations sont :

- **IZA 5** (illustration 6) : le faible nombre de données disponibles rend difficile l'analyse des variations des concentrations en sulfate au cours d'une même année (ceci est notamment dû aux difficultés d'échantillonnage dans ce puits - artésianisme saisonnier). Au cours de la période 1979-1987, des variations de concentrations en sulfate relativement fortes, entre 0 et 15 mg.L<sup>-1</sup>, sont observées. Il s'agit d'un processus connu dans ce puits : des mécanismes biologiques de sulfato-réduction ont notamment été mis en évidence et expliqueraient ces baisses importantes des concentrations en sulfate dans les eaux. Pour la période 2000-2002, on peut simplement soupçonner une anti-corrélation entre piézométrie et concentrations en sulfate, mais les variations sont extrêmement faibles (< 2 mg.L<sup>-1</sup>).
- **LUG 57** (illustration 7) : malgré le faible nombre de données, un zoom sur la période 1999-2002 laisse supposer une anti corrélation entre piézométrie et concentrations en sulfate.
- **Eauze** (illustration 8) : il n'existe pas, à notre connaissance, de suivi régulier de la concentration en sulfate pour ce forage (seules 4 données sont disponibles pour la période 2007-2016). Néanmoins, compte tenu des amplitudes de piézométrie au cours de cette

période et de la proximité géographique avec le forage de Nogaro 2, la question du comportement des sulfates dissous dans les eaux de ce forage se pose.

- *Dému* (illustration 9) : ce forage, sensiblement plus éloigné de Nogaro, subit également des amplitudes élevées de son niveau piézométrique (de l'ordre de 30 m). Cependant, au vu des données disponibles, aucune corrélation entre piézométrie et concentrations n'a pu être mise en évidence.

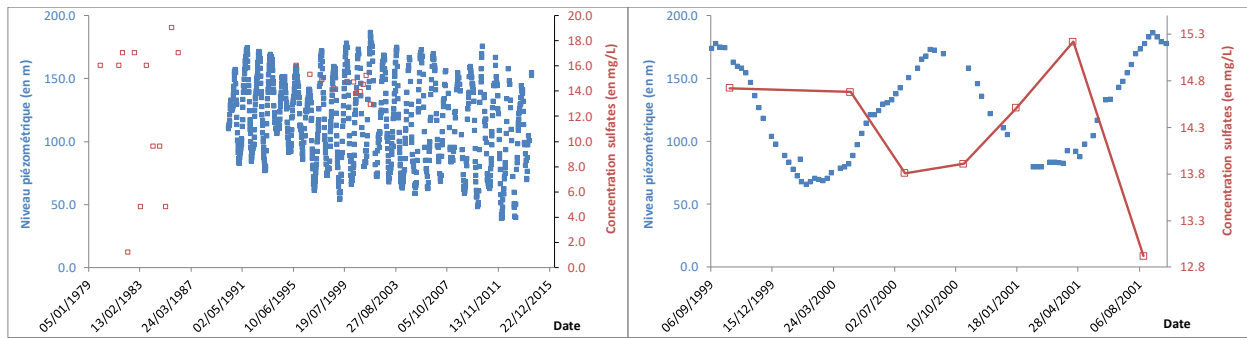


Illustration 6 - Concentrations en sulfate (en rouge) et piézométrie mesurées (en bleu) dans le forage IZA 5. Figure de gauche : entre 1979 et 2014 ; figure de droite : zoom entre 1999 et 2002

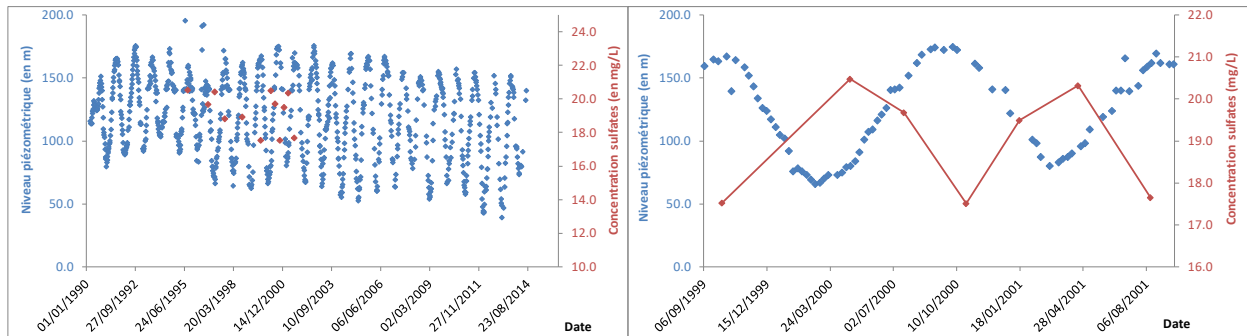


Illustration 7 - Concentrations en sulfate (en rouge) et piézométrie mesurées (en bleu) dans le forage LUG 57. Figure de gauche : entre 1990 et 2014 ; figure de droite : zoom entre 1999 et 2002

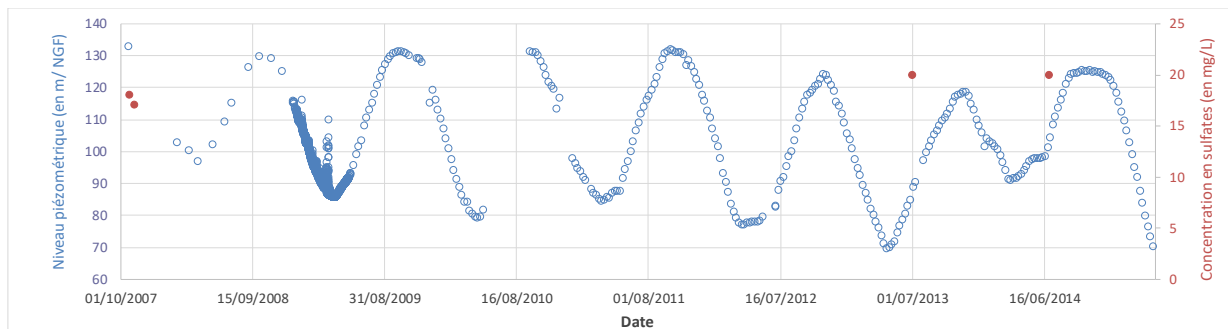


Illustration 8 - Concentrations en sulfate et piézométrie mesurées dans le forage d'Eauze (2007-2014)

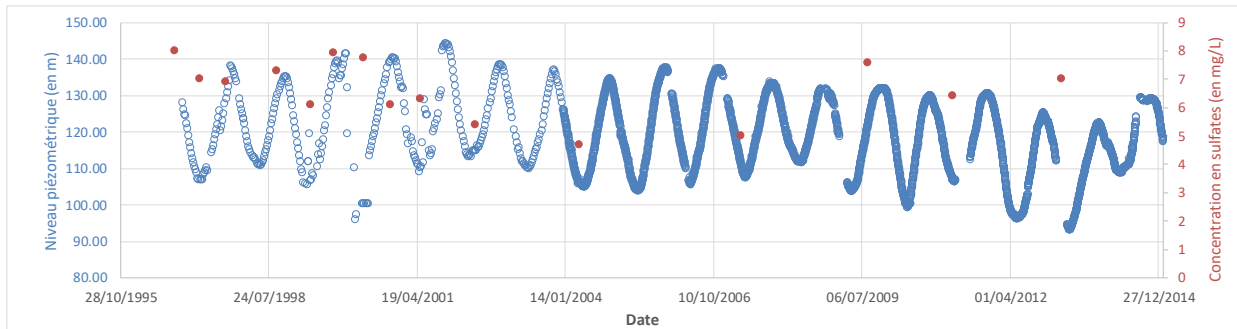


Illustration 9 - Concentrations en sulfate et piézométrie mesurées dans le forage de Dému (1996-2014)

En conclusion, il apparaît que le comportement observé à Nogaro 2 est particulier, dans le sens où l'ampleur de la cyclicité observée est unique dans le secteur. Une cyclicité en lien avec celle de la piézométrie est soupçonnée dans un autre forage (LUG 57), ce qui pourrait indiquer que des phénomènes similaires, mais de moindre ampleur, pourraient se produire dans cet ouvrage. Les relations piézométrie-concentrations en sulfate n'ont cependant pas pu être établies pour certains points, comme à Eauze, faute de données suffisantes. Le forage de Dému, situé dans la zone d'influence des stockages, avec de fortes amplitudes piézométriques, ne semble pas affecté par ces variations cycliques de concentration, même si des fluctuations sont observées.

Compte tenu de ces observations concernant les historiques de données, et en raison du faible nombre de données chimiques complètes, il a été décidé, dans le cadre du programme GAIA, de réaliser un suivi trimestriel de la composition chimique des eaux de ces 5 forages. L'objectif a été de pouvoir comprendre la raison de ces variations, à la fois en termes de chimie, mais aussi de comportement hydrodynamique du système.

### 2.3. SUIVI TRIMESTRIEL DE LA COMPOSITION CHIMIQUE DES EAUX

Comme indiqué précédemment, les données de composition chimique des eaux des 5 forages ciblés sont trop parcellaires pour déterminer des corrélations entre éléments chimiques et pour comprendre l'origine de ces variations. C'est pourquoi, neuf campagnes de prélèvements (avril, juillet, octobre 2016, janvier, mars, juin, octobre, décembre 2017 et mars 2018) et d'analyses chimiques ont été menées pendant 2 ans, dans ces 5 forages. Les paramètres étudiés sont les suivants :

- les *données physico-chimiques mesurées sur site* : température, conductivité, potentiel redox (Eh), pH (cf. Annexe 2) ;
- les *compositions en éléments majeurs* : il s'agit des concentrations en calcium, magnésium, sodium, potassium, chlorure, sulfate et hydrogénocarbonate ;
- les *concentrations en éléments traces* : ces analyses concernent l'aluminium, le bore, le baryum, le fluor, le fer total, le lithium, le manganèse, le strontium, les bromures ;
- les *données isotopiques* : il s'agit des données en isotopes stables ( $^2\text{H}$  et  $^{18}\text{O}$  de la molécule d'eau,  $^{34}\text{S}$  et  $^{18}\text{O}$  de l'ion sulfate,  $^{11}\text{B}$ ,  $^{87}\text{Sr}$ ) et en isotopes radioactifs ( $^{13}\text{C}$  et  $^{14}\text{C}$ ).

### 2.3.1. Paramètres physico-chimiques

Les températures mesurées en tête de puits présentent des variations qui sont principalement liées aux régimes d'exploitation des puits (puits utilisés pour l'AEP, non pompés en continu).

Les mesures de conductivité électrique varient sensiblement entre les prélèvements avec des variations pouvant atteindre 30 %, comme au forage de Nogaro 2. Ces variations semblent liées notamment aux fluctuations de teneurs en éléments majeurs, comme nous le verrons plus loin (cf. illustration 10).

Les potentiels redox corrigés présentent des valeurs très différentes d'un prélèvement à l'autre, avec des valeurs fluctuant entre -100 et +300 mV. Ce paramètre est toujours difficilement mesurable, en particulier dans des eaux chaudes, complexes, comprenant des espèces réduites et oxydées (présence d'H<sub>2</sub>S, de sulfate, de fer...). La mesure du potentiel est souvent un paramètre global qui est influencé par de nombreux couples redox. Ce paramètre ne sera pas utilisé pour les interprétations.

### 2.3.2. Eléments majeurs

L'illustration 10 présente l'évolution des concentrations en cations majeurs, au cours de la période avril 2016 - mars 2018, pour les forages d'Eauze, LUG 57, IZA 5 et Dému, et de janvier 2016 à avril 2018 pour le forage de Nogaro 2. Les données sont référencées dans l'annexe 2.

Cette figure fait apparaître que les concentrations en éléments majeurs tels que Na, K, Cl demeurent stables dans le temps, pour l'ensemble des forages étudiés. Selon les forages, on note des variations des concentrations en sulfate, calcium, magnésium et en silice.

Les eaux de Dému sont celles qui présentent la plus grande stabilité, avec aucune variation saisonnière observable. Le rapport  $(Ca+Mg) / SO_4$  confirme que ces concentrations restent stables au cours du temps (illustration 11).

Pour LUG 57, on note une baisse sensible de la concentration en sulfate, en juillet 2016 et mars 2018. Cette baisse se répercute sur le ratio  $(Ca+Mg) / SO_4$ , qui présente des pics à ces deux dates (illustration 11). Cette variation est *a priori* d'autant plus surprenante que les concentrations des autres ions majeurs ne semblent pas varier au cours de ces mêmes périodes. On note simplement une baisse de la concentration en silice, en juillet 2016. Cette baisse plus rapide de la teneur en sulfate est corrélée à une variation de la teneur en soufre-34 (voir paragraphe 2.3.4 - Isotopie du soufre).

Pour les eaux de Nogaro 2, il nous est apparu intéressant de rajouter, en plus des neuf campagnes de prélèvements réalisées par le BRGM, les mesures de concentration en sulfate réalisées mensuellement par l'exploitant du forage (données disponibles sous ADES). L'illustration 10 montre la présence de 3 pics de concentration en sulfate de janvier à avril 2016 (24,2 mg.L<sup>-1</sup>), de mars à juin 2017 (17,1 mg.L<sup>-1</sup>) et un dernier qui commence en mars 2018 et qui se poursuit jusqu'à mai 2018 (46,7 mg.L<sup>-1</sup>). Les concentrations en sulfate enregistrées pour ces trois événements sont de l'ordre de 1,5 à 5 fois la « concentration de base » en sulfate, estimée à 10 mg.L<sup>-1</sup>. Ces augmentations en sulfate sont corrélées avec des hausses de concentrations en calcium et en magnésium. Cependant, le rapport  $(Ca+Mg) / SO_4$  diminue lorsque la concentration en sulfate augmente indiquant clairement que les augmentations des concentrations en sulfate sont plus fortes que les augmentations en calcium et magnésium (illustration 11). Ce constat semble indiquer des apports en sulfate de calcium et de magnésium dans le système, mais aussi potentiellement soit une remobilisation de Ca et Mg (sous la forme d'une précipitation de minéraux secondaires ?), soit un apport plus important de sulfates,

correspondant par exemple à l'oxydation d'éléments sulfurés. Enfin, il est à noter la présence de deux pics particulièrement importants en sulfates : le premier, le 3 janvier 2017 (avec une valeur de près de 300 mg SO<sub>4</sub>.L<sup>-1</sup>) et un autre, le 5 septembre 2017 (avec une intensité de 82 mg SO<sub>4</sub>.L<sup>-1</sup>). Pour le prélèvement du 3 janvier 2017, cette forte augmentation en sulfate est corrélée avec une forte augmentation de la conductivité de l'eau, indiquant une forte augmentation de la minéralisation des eaux. Cependant, ne disposant pas d'une analyse complète en éléments majeurs (et éléments traces), il est impossible de déterminer l'origine de ce pic (erreur analytique, problème de filtration des échantillons, particules riches en sulfate ... ?) et avec quel autre élément chimique, les sulfates sont corrélés. Il faut également remarquer la brièveté de cet épisode puisqu'un autre prélèvement d'eau, réalisé le 10 janvier 2017, présente une concentration en sulfate très inférieure : 17,9 mg.L<sup>-1</sup>.

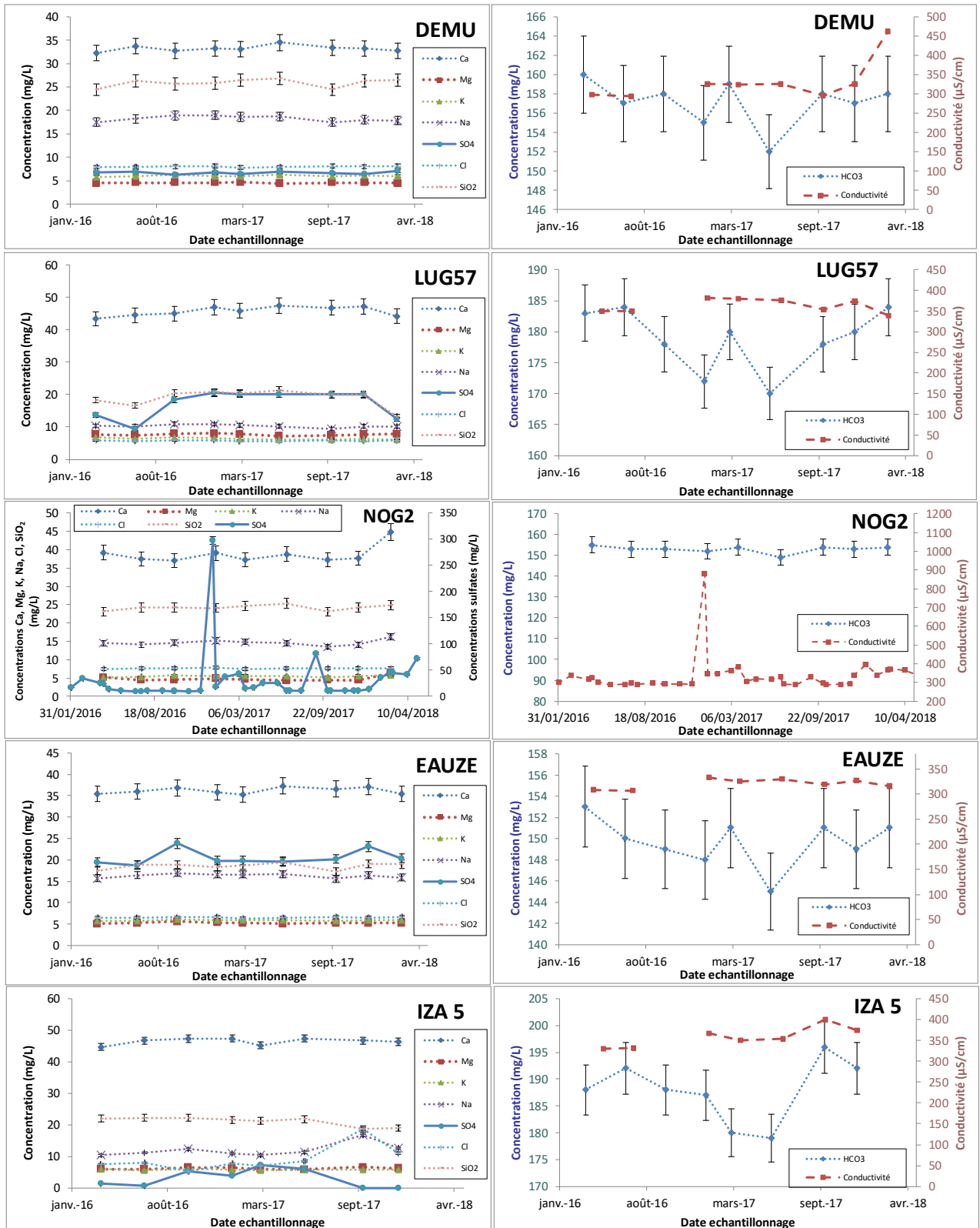


Illustration 10 - Variations des concentrations en cations majeurs pour les eaux des forages de Nogaro 2, Eauze, LUG 57, IZA 5 et Dêmu

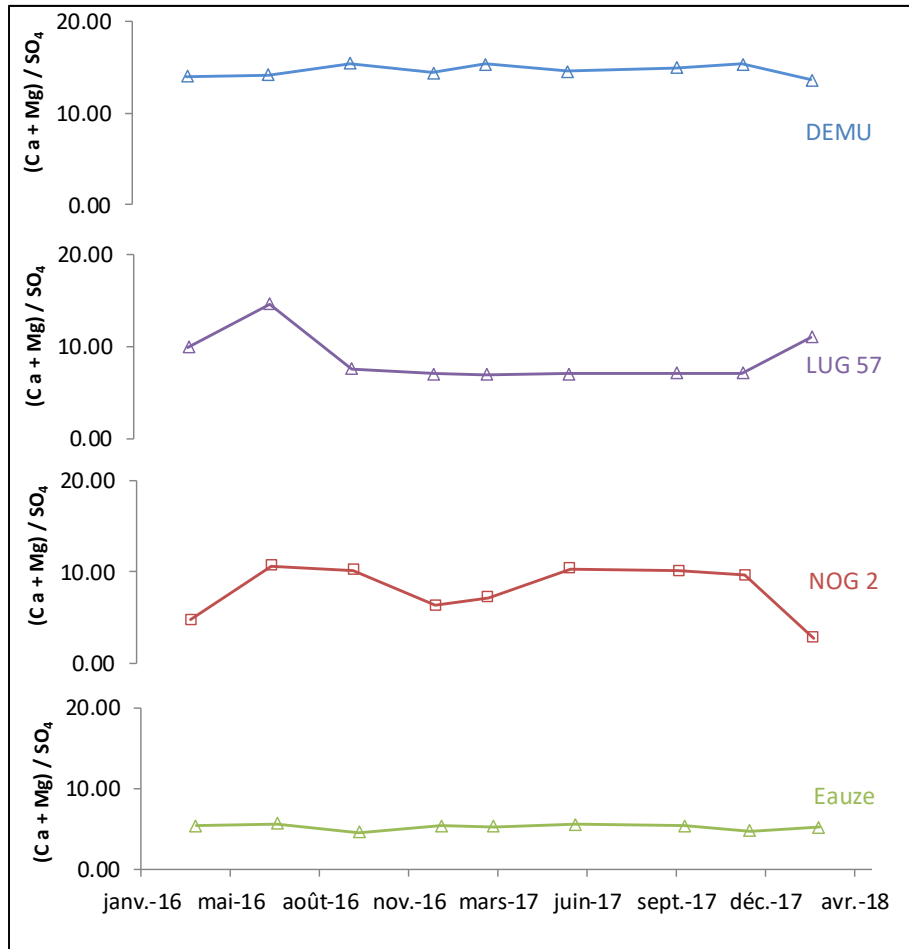


Illustration 11 - Variations du rapport  $(Ca+Mg) / SO_4$  en fonction du temps pour les eaux des forages de Dému, LUG 57, Eauze et Nogaro 2

Au forage d'Eauze, on observe des variations de la concentration en sulfate en octobre 2016 et décembre 2017. L'augmentation de concentration se produit dans des proportions beaucoup plus faibles qu'à Nogaro 2. Le facteur est de l'ordre de 1,2 par rapport à une concentration de base de l'ordre de 19-20 mg.L<sup>-1</sup> (illustration 10). A noter enfin que, contrairement à Nogaro 2, le rapport  $(Ca + Mg) / SO_4$  est stable pour les eaux d'Eauze, même lors des périodes d'augmentation de la teneur en sulfate. Ceci semble démontrer que les concentrations en Ca+Mg d'une part et  $SO_4$  d'autre part augmentent de manière similaire.

En termes de comparaison avec la piézométrie, pour le forage de Nogaro 2, les augmentations de concentrations en sulfate en fin d'hiver-début de printemps 2016, 2017 et 2018 correspondent bien à des périodes où la piézométrie est au plus bas. Par contre, on ne relève aucune anomalie dans la chronique piézométrique qui pourrait expliquer les deux pics observés en janvier et septembre 2017.

Si, à Nogaro 2, les pics de concentration en sulfate sont anti-corrélés avec la piézométrie, pour Eauze, on observe une corrélation quasiment positive entre la concentration en sulfate et la variation de piézométrie (illustration 12). Un échantillonnage beaucoup plus régulier dans le temps (comme à Nogaro 2) permettrait de mieux définir les périodes de pics et ainsi de mieux appréhender les liens entre ces deux variables (avance, retard ou simultanéité d'un signal par rapport à l'autre).

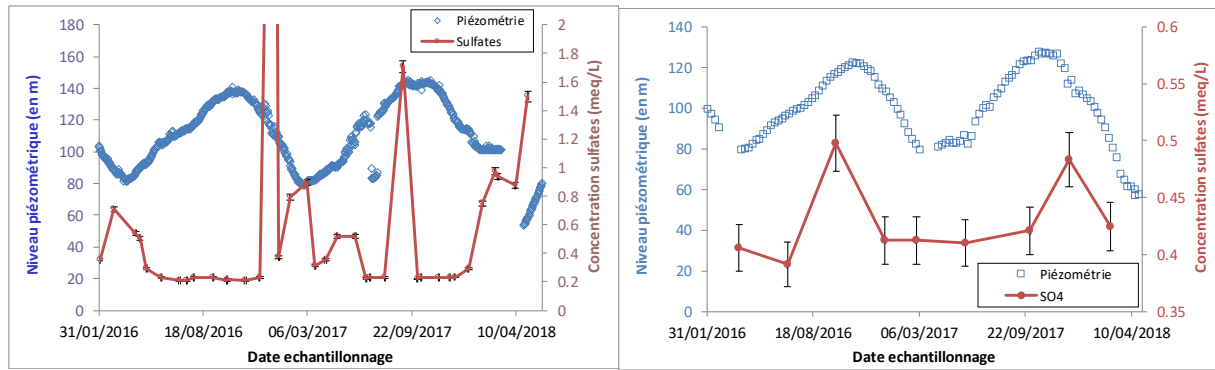


Illustration 12 - Variations de la concentration en sulfate et de la piézométrie en fonction du temps, pour les forages de Nogaro 2 (à gauche) et d'Eauze (à droite)

Les eaux du forage d'IZA 5 ont été échantillonnées jusqu'à décembre 2017 (pas d'artésianisme lors de la campagne de mars 2018). Les sulfates sont les éléments qui présentent de fortes variations de concentration, les valeurs fluctuant entre 0 et 10 mg.L<sup>-1</sup>. Comme indiqué plus haut, ce forage est connu pour être le siège de nombreux processus géochimiques, dont notamment des processus de sulfato-réduction. C'est ce qui pourrait expliquer ces variations de concentration en sulfate, notamment la disparition totale de cette espèce à certaines périodes de l'année. Les autres espèces sont stables au cours du temps (à l'exception d'une sensible augmentation en Na et Cl, lors de la campagne d'octobre 2017).

### 2.3.3. Éléments traces

Les éléments traces sont des marqueurs des interactions eau/roche ; mais ils peuvent aussi être utilisés comme traceur (pour les éléments les plus conservatifs). Dans le cadre de cette étude, les variations des concentrations en Al, B, Ba, F, Fe, Li, Mn, Sr et Br ont été mesurées dans les eaux des 5 forages, pour l'ensemble des campagnes d'échantillonnage. Les résultats tabulés sont donnés en annexe 2. Contrairement aux éléments majeurs, des variations beaucoup plus fortes sont observées pour ces éléments traces (illustration 13).

Les concentrations en strontium et baryum sont stables au cours du temps pour les 5 forages (illustration 13). Seule la campagne de décembre 2017 semble faire exception, en faisant apparaître une baisse de la teneur en strontium pour l'ensemble des points, sans aucune explication particulière (problème d'échantillonnage, analytique ?). Cette stabilité pour le strontium est d'ailleurs confirmée par l'isotope <sup>87</sup>Sr (voir § 2.3.3 - Isotopie du strontium). Le baryum est en faible concentration dans les eaux qui sont sous-saturées vis-à-vis de la barite.

Les concentrations en lithium sont constantes au cours du temps, avec des valeurs de l'ordre de 8 à 15 µg.L<sup>-1</sup>. Les concentrations en aluminium ne varient pas et n'excèdent jamais 2 µg.L<sup>-1</sup>. Pour le manganèse (dont le comportement géochimique est très proche de celui du fer, non mesuré dans cette étude), des variations importantes sont observables dans les puits de LUG 57 et IZA 5. Cependant, ces variations sont probablement liées aux conditions d'exploitation de ces deux puits (conditions de purge des forages avant prélèvement, variabilité des conditions redox...).

Enfin, le bore est l'élément trace qui présente certaines variations, notamment à Nogaro 2, Eauze et Dému. Dans les eaux de Nogaro 2, cette variation est cyclique, avec des concentrations plus fortes en avril 2016, mars 2017 et mars 2018. Ce profil de concentration au cours du temps est similaire à celui des sulfates dans ce forage, avec une augmentation en avril 2016, mars 2017 et mars 2018.



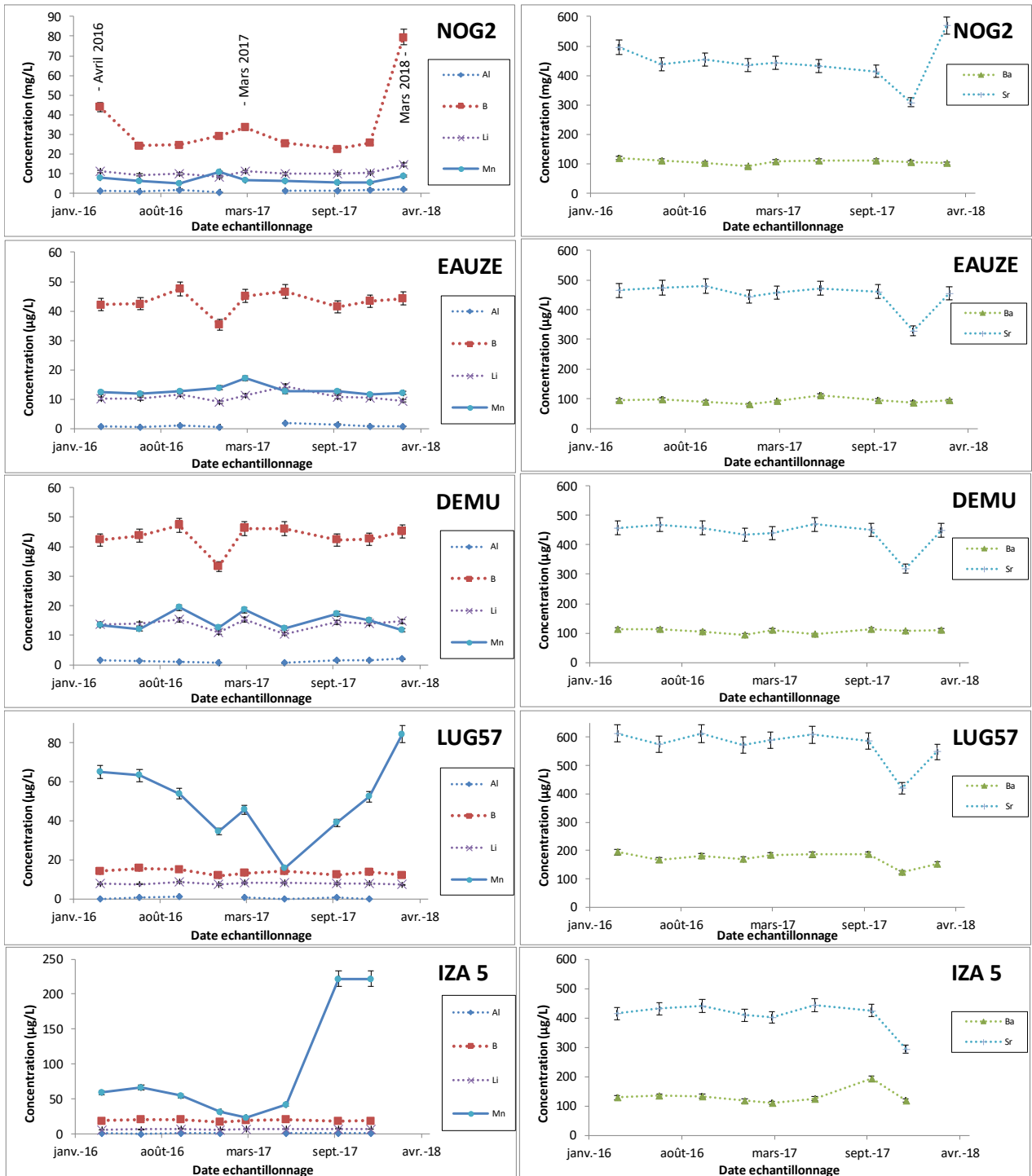


Illustration 13 - Variations des concentrations en éléments traces pour les eaux des forages de Nogaro 2, Eauze, Dému, LUG 57 et IZA 5

Afin d'analyser l'enrichissement des eaux en bore et en sulfate à Nogaro 2, nous avons considéré les concentrations mesurées de juillet 2016 comme des valeurs de référence (concentrations basses en B et SO<sub>4</sub>). Le rapport entre la concentration au cours du temps et la concentration de référence a été analysé (tableau 1). On note qu'en avril 2016, mars 2017 et mars 2018, les ratios de concentrations pour le bore et les sulfates sont similaires. Par ailleurs, les ratios montrent un enrichissement (ratio > 1) par rapport à la situation de référence (juillet 2016), à l'exception d'une valeur en octobre 2017 pour le bore.

| Date de prélèvement | [B]/[B] <sub>ref</sub> | [SO <sub>4</sub> ]/[SO <sub>4</sub> ] <sub>ref</sub> |
|---------------------|------------------------|--|
| avr.-16             | 1.81                   | 2.40   |
| juil.-16            | 1.00                   | 1.00   |
| oct.-16             | 1.02                   | 1.04   |
| janv.-17            | 1.21                   | 1.77   |
| mars-17             | 1.39                   | 1.48   |
| juin-17             | 1.05                   | 1.06   |
| oct-17              | 0.93                   | 1.05   |
| déc-17              | 1.06                   | 1.11   |
| mars-18             | 3.27                   | 4.62   |

Tableau 1 - Enrichissement des eaux de Nogaro 2, en bore et en sulfate, en fonction du temps, en prenant comme référence (ref) la concentration de ces deux éléments en juillet 2016

#### 2.3.4. Isotopie

- **Les isotopes de la molécule d'eau**

Les concentrations en isotopes de la molécule d'eau ont été mesurées lors des premières campagnes de prélèvements (d'avril 2016 à janvier 2017). Les résultats donnés dans le tableau 2 montrent que ces valeurs ne varient pas au cours du temps (variations inférieures à l'incertitude de la mesure). Face à cette absence de variation, les mesures n'ont pas été poursuivies lors des campagnes suivantes.

|                 | δD (‰ vs SMOW) |         |        |         | δ <sup>18</sup> O (‰ vs SMOW) |         |        |         |
|-----------------|----------------|---------|--------|---------|-------------------------------|---------|--------|---------|
|                 | avr-16         | juil-16 | oct-16 | janv-17 | avr-16                        | juil-16 | oct-16 | janv-17 |
| <b>NOGARO 2</b> | -54.3          | -54.7   | -54.3  | -54.5   | -8.5                          | -8.5    | -8.5   | -8.5    |
| <b>EAUZE</b>    | -52.6          | -52.5   | -52.7  | -53.0   | -8.3                          | -8.3    | -8.2   | -8.4    |
| <b>DEMU</b>     | -52.7          | -52.7   | -52.6  | -53.0   | -8.3                          | -8.3    | -8.4   | -8.3    |
| <b>LUG57</b>    | -61.6          | -61.7   | -61.9  | -62.3   | -9.4                          | -9.4    | -9.4   | -9.4    |
| <b>IZA5</b>     | -59.0          | -59.1   | -59.4  | -59.6   | -9.1                          | -9.1    | -9.1   | -9.0    |

Tableau 2 - Mesures δD et δ<sup>18</sup>O lors des premières campagnes de prélèvements dans les 5 forages

Comme indiqué dans André et al. (2019), les eaux étudiées se situent au voisinage de la droite définie par les précipitations actuelles mesurées à Dax et la droite météorique mondiale. On notera que les eaux de LUG 57 et IZA 5 sont les plus appauvries en deutérium et en oxygène-18. Ces faibles valeurs sont caractéristiques de conditions de recharge en altitude ou bien sous un climat plus froid. Selon les activités en <sup>14</sup>C mesurées, l'hypothèse d'une recharge au cours de la période glaciaire anté-holocène semble la plus probable (Négre et al., 2008 ; André et al., 2019).

- **L'isotopie du strontium**

L'isotopie du strontium a été réalisée lors des premières campagnes de prélèvements (d'avril 2016 à janvier 2017). Les résultats donnés dans le tableau 3 montrent que ces valeurs ne varient pas au cours du temps (variations inférieures à l'incertitude de la mesure). Face à cette absence de variations, les mesures n'ont pas été poursuivies lors des campagnes suivantes.

Les isotopes du Sr permettent de tracer l'origine du strontium dissous, notamment de caractériser les interactions eau/roche à l'origine de ces teneurs. Dans le projet CARISMEAU (Négre et al., 2008), 3 pôles d'origine du strontium en solution avaient été mis en évidence, à savoir les silicates, les carbonates et les évaporites. Compte tenu des résultats de mesures acquis dans ce projet, les valeurs confirment que le strontium semble provenir majoritairement de l'altération de carbonates et d'évaporites d'âge eocène (Palmer et al., 2004).

|                 | avr-16   | juil-16  | oct-16   | janv-17  |
|-----------------|----------|----------|----------|----------|
| <b>NOGARO 2</b> | 0.708704 | 0.708712 | 0.708717 | 0.708710 |
| <b>EAUZE</b>    | 0.708698 | 0.708700 | 0.708701 | 0.708700 |
| <b>DEMU</b>     | 0.708781 | 0.708778 | 0.708778 | 0.708774 |
| <b>LUG57</b>    | 0.708549 | 0.708558 | 0.708563 | 0.708547 |
| <b>IZA5</b>     | 0.708688 | 0.708671 | 0.708651 | 0.708659 |

Tableau 3 - Mesures du ratio  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  lors des premières campagnes de prélèvements dans les 5 forages

- **Les isotopes du carbone**

Le carbone-13 est un marqueur géochimique des interactions entre l'eau et la roche (notamment les carbonates) et l'activité en carbone-14 est utilisée comme indicateur de l'âge apparent des eaux. Ces deux isotopes du carbone ( $^{13}\text{C}$  et  $^{14}\text{C}$ ) ont été analysés lors de l'ensemble des campagnes de prélèvements. Seul le forage de IZA 5 initialement prévu n'a pas été échantillonné : en effet, ce forage est situé à proximité de la bulle de stockage de gaz et les mesures de carbone peuvent être perturbées par la présence du gaz. L'illustration 14 présente les évolutions de  $^{13}\text{C}$  et  $^{14}\text{C}$  au cours du temps (voir aussi annexe 2). Des âges apparents des eaux ont aussi été estimés à partir du modèle de Pearson et Hanshaw (1970). L'échantillonnage a été réalisé par prélèvement de 250 mL d'eau pour le  $^{13}\text{C}$  et d'un litre d'eau pour le  $^{14}\text{C}$ . Les analyses ont été réalisées par le laboratoire Beta Analytic Inc.

Les eaux de Dému présentent des variations de  $\delta^{13}\text{C}$  et d'activité  $^{14}\text{C}$  relativement faibles au cours du temps (illustration 14). A l'exception de l'activité en carbone-14 mesurée en avril 2016, qui semble surestimée, cette activité reste constante pour l'ensemble des autres prélèvements. Les âges apparents suivent la même tendance avec une valeur moyenne de -35 000 ans. Pour ce qui est du  $\delta^{13}\text{C}$ , sa teneur varie avec de faibles amplitudes, inférieures à 1 ‰. On peut toutefois observer des valeurs de  $\delta^{13}\text{C}$  légèrement plus fortes lorsque la piézométrie augmente (illustration 15).

L'activité en carbone-14 dans le forage de LUG 57 est également extrêmement stable, excepté pour le prélèvement de juin 2017. Pour ce même prélèvement, on note également une légère baisse de la teneur en hydrogénocarbonates (illustration 10) qui pourrait avoir un effet sur l'activité en carbone-14. Mais on remarque également qu'une autre baisse d'alcalinité a été observée en janvier 2017, sans donner lieu à une variation de l'activité en carbone-14. Il est donc difficile de pouvoir tirer des corrélations entre ces variations. Le  $\delta^{13}\text{C}$  est relativement stable, avec des variations maximales de l'ordre de 1 ‰ qui ne sont pas toujours corrélées avec les variations piézométriques saisonnières (illustration 15).

Les eaux du forage de Nogaro 2 présentent des activités en carbone-14 relativement stables, avec des variations de faible amplitude autour de la valeur de 2 pCm. Ces variations n'ont que peu d'impact sur l'âge apparent des eaux (de l'ordre de - 30 000 ans). Si  $^{13}\text{C}$  et  $^{14}\text{C}$  semblent suivre la même tendance pour la période 2016-début 2017, cette corrélation semble disparaître pour 2017-2018. Cette cyclicité de  $^{13}\text{C}$  et  $^{14}\text{C}$  est corrélée à la piézométrie au cours de la période 2016-2017, et pour le  $^{13}\text{C}$ , elle se poursuit jusqu'en 2018, avec une valeur forte de ce paramètre à la cote piézométrique maximale en septembre 2017. En résumé pour ce forage de Nogaro 2, lorsque la piézométrie est forte, la teneur en carbone-13 a tendance à augmenter et la teneur en sulfate à baisser (anti-corrélation entre sulfate et carbone-13).

Pour les eaux d'Eauze, la corrélation entre  $^{13}\text{C}$  et  $^{14}\text{C}$  est plus difficile, probablement du fait des faibles valeurs d'activités (de l'ordre de 1,5 pCm). Comme indiqué dans André et al. (2019), le mode de prélèvement, utilisé pour ces eaux à faible teneur en  $^{14}\text{C}$ , n'est probablement pas approprié et des biais (contamination par du carbone moderne) peuvent affecter la valeur mesurée. Les mesures en carbone-13 montrent des valeurs très appauvries en mars 2017 (de l'ordre de -15 ‰) et des valeurs fortes en septembre-octobre 2017 (de l'ordre de -11 ‰). Selon l'illustration 15, il semble que la variation en carbone-13 soit corrélée à la variation de piézométrie.

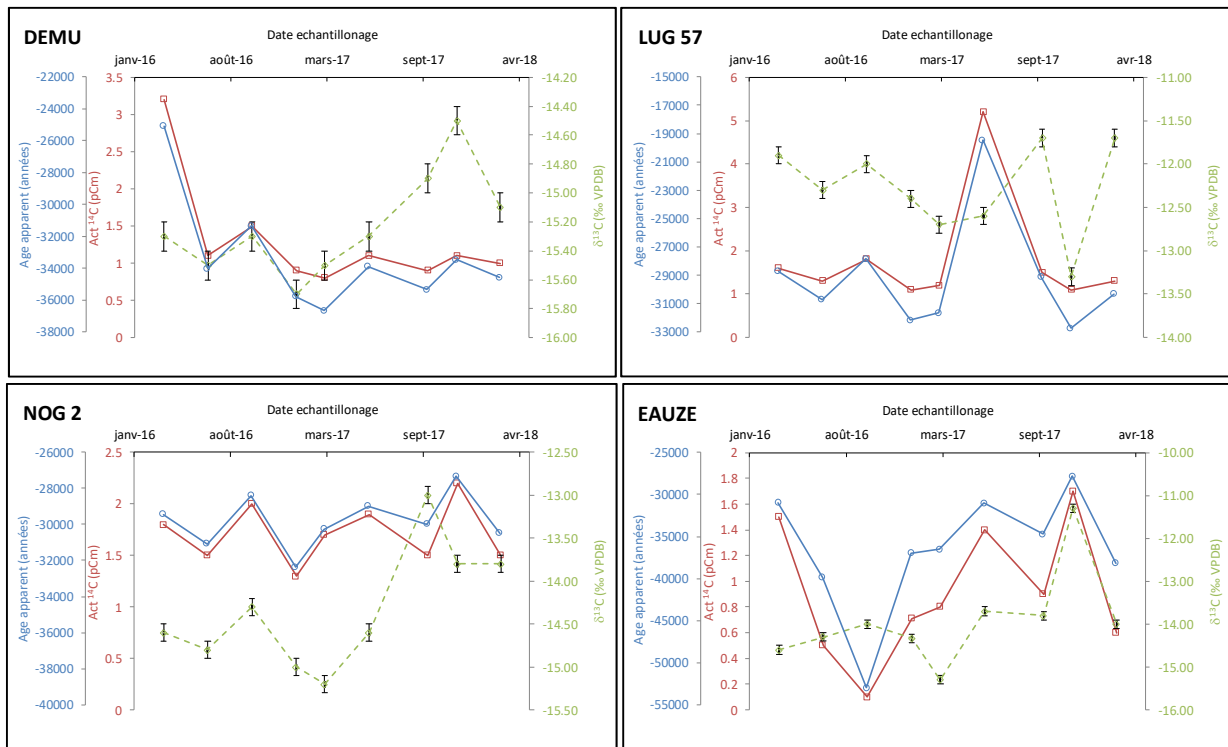


Illustration 14 - Variations des teneurs en  $\delta^{13}\text{C}$  et activités en  $^{14}\text{C}$  pour les eaux des forages de Dému, LUG 57, Nogaro 2 et Eauze  
 En pointillés verts, les données en  $^{13}\text{C}$  ; en trait plein rouge, les données d'activité en  $^{14}\text{C}$  et en bleu, les âges apparents calculés à partir du modèle de Pearson.

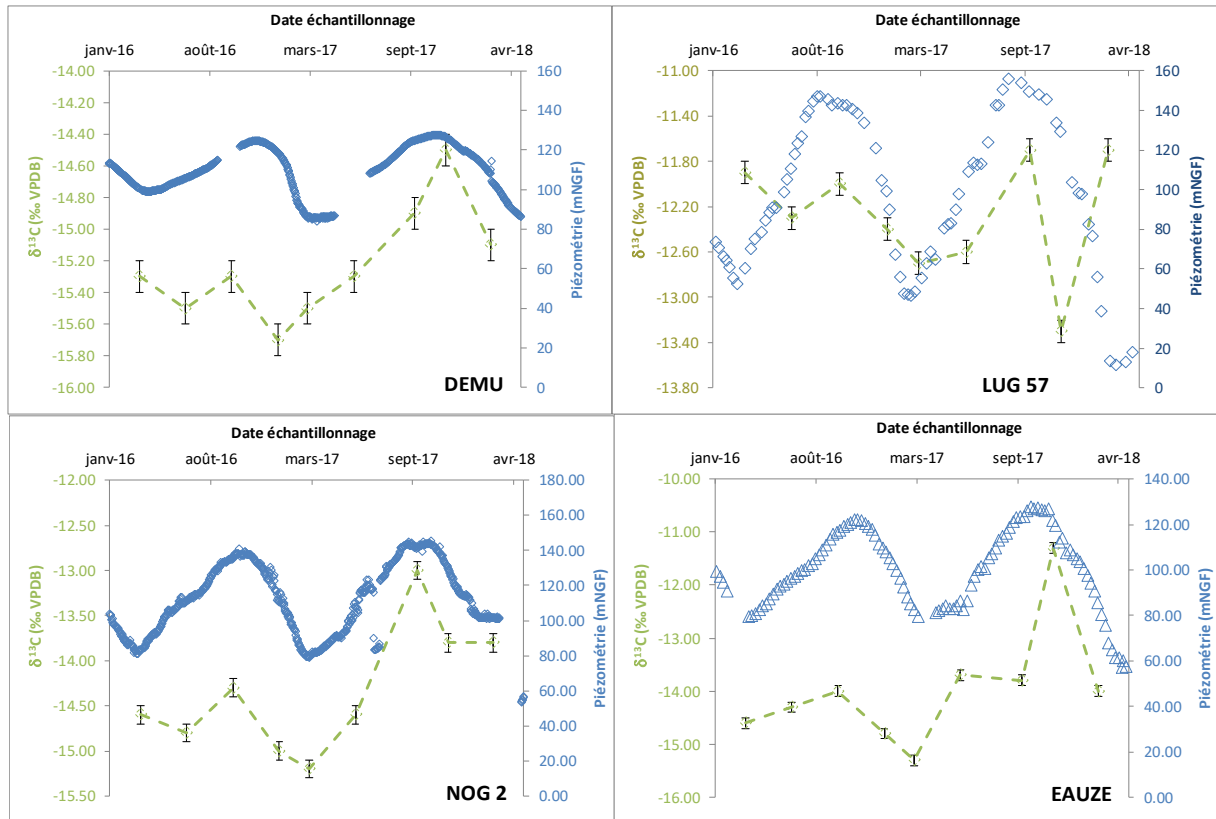


Illustration 15 - Comparaison entre variations des teneurs en  $\delta^{13}\text{C}$  et la piézométrie pour les forages Dému, LUG 57, Nogaro 2 et Eauze  
Les pointillés verts représentent les données en carbone-13 et les symboles bleus, les données de piézométrie.

- **L'isotopie du soufre des sulfates**

L'isotope  $^{34}\text{S}$  des sulfates est un marqueur géochimique permettant d'obtenir des informations sur l'origine du soufre en solution et sur les processus biologiques susceptibles de modifier les compositions en sulfate dans les eaux (comme les processus de bio-sulfato-réduction). Dans le cadre de ce projet, cet isotope a été suivi au cours du temps afin de mieux comprendre l'origine des variations en sulfate (voir annexe 2).

Comme présenté dans André et al. (2002), on note des disparités relativement fortes d'un forage à l'autre. Pour Dému, les valeurs de  $\delta^{34}\text{S}$  sont relativement élevées : variant entre 16 et 20 ‰ CDT<sup>1</sup> (illustration 16). Les variations de  $\delta^{34}\text{S}$  ne présentent pas de cyclicité particulière et ces variations peuvent être dues à des incertitudes de mesures, notamment en raison des faibles concentrations en sulfate dans les eaux (de l'ordre de 7 mg.L<sup>-1</sup>).

Pour LUG 57, les valeurs de  $\delta^{34}\text{S}$  présentent de fortes amplitudes : valeurs très appauvries (généralement négatives) et pics avec de fortes valeurs (de l'ordre de +17 ‰ CDT). En comparant avec les concentrations en sulfate, on note que les fortes valeurs de  $\delta^{34}\text{S}$  correspondent à des concentrations plus faibles en sulfate (illustration 16). Cet enrichissement en  $\delta^{34}\text{S}$  lorsque la concentration en sulfate baisse est souvent caractéristique de processus de bio-sulfato-réduction.

<sup>1</sup> La référence de la mesure du soufre-34 est la "Canyon Diablo Troilite" (CDT), du sulfure de fer provenant d'une météorite qui s'est écrasée il y a environ 49 000 ans en Arizona (U.S.A.).

En effet, les bactéries consomment en premier le soufre-32 en le transformant en H<sub>2</sub>S, ce qui a pour effet de diminuer la concentration en SO<sub>4</sub> en solution et d'augmenter le  $\delta^{34}\text{S}$ . Cette hypothèse, invoquée également pour des eaux rencontrées dans d'autres secteurs du sud du Bassin aquitain (André et al., 2002), indépendamment des sites de stockage de gaz, pourrait être vérifiée à partir de mesures plus approfondies, notamment sur l'isotopie du soufre-34 des sulfures.

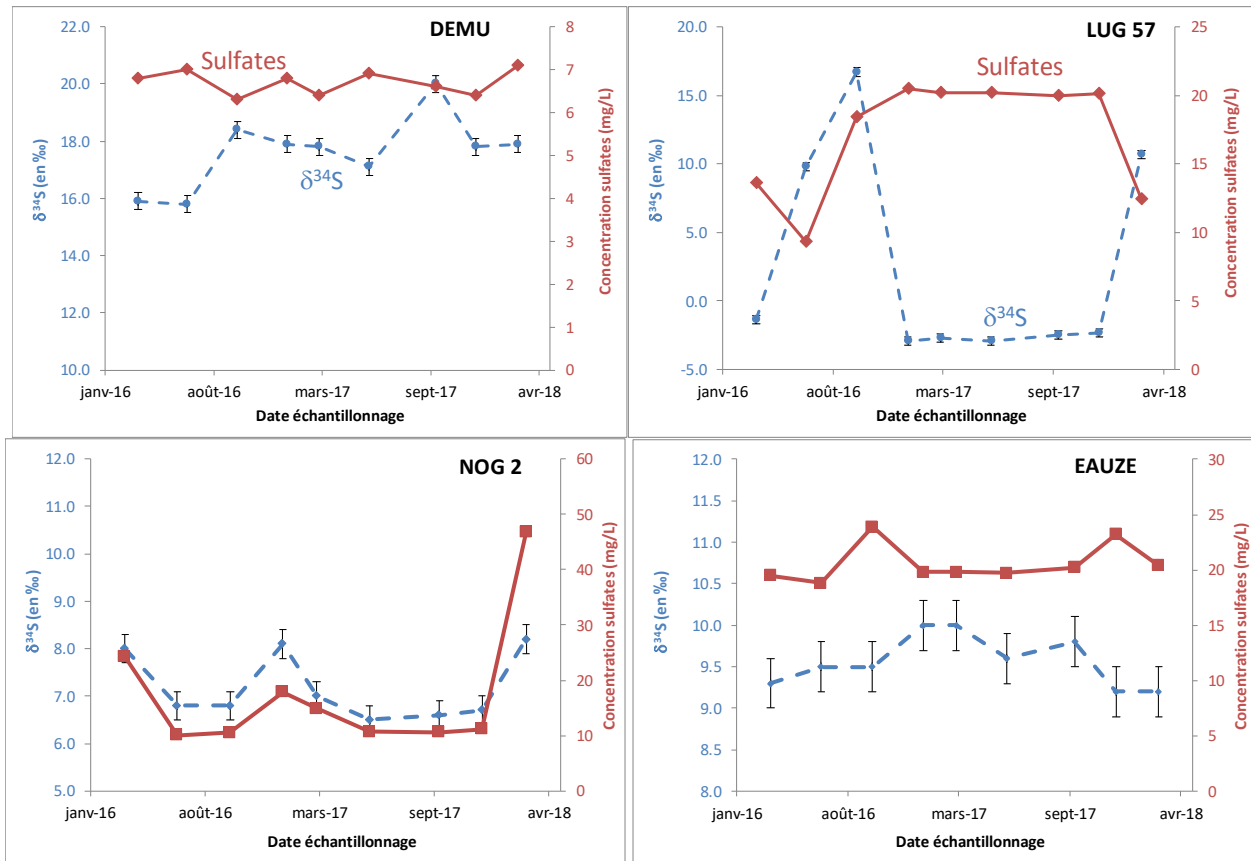


Illustration 16 - Variations des teneurs en  $\delta^{34}\text{S}$  pour les eaux des forages de Dému, LUG 57, Nogaro 2 et Eauze

Pour Nogaro 2, les variations en soufre-34 suivent les variations en soufre total (illustration 16). Ainsi, lorsque la concentration en sulfate est proche de 10 mg.L<sup>-1</sup>, la valeur de  $\delta^{34}\text{S}$  est proche de 7 ‰. Lorsque la concentration en sulfate augmente, la teneur  $\delta^{34}\text{S}$  augmente également, mais les variations en soufre-34 sont relativement faibles, puisqu'elles ne dépassent pas 2 ‰, même lorsque la teneur en sulfate est multipliée par 4, comme en mars 2018. En ne considérant aucun fractionnement isotopique au cours du processus, un simple modèle de mélange permet de supposer que la source d'enrichissement en soufre dans la solution possède une signature isotopique en soufre-34 de l'ordre de 9 ‰.

Pour Eauze, la relation entre variation de la concentration en sulfate et variation de la signature isotopique est beaucoup moins marquée qu'à Nogaro 2 (illustration 16). Les faibles variations saisonnières de concentrations (< 5 mg.L<sup>-1</sup>) et les faibles amplitudes enregistrées sur le  $\delta^{34}\text{S}$  ne permettent pas d'en déduire une corrélation précise.

Compte tenu de l'absence de sulfate dans les eaux d'IZA 5, lors de 4 analyses sur 9 prélèvements, les résultats ne sont pas présentés ici sous forme de graphique (voir annexe 2 pour les données brutes).

## • L'isotopie du bore

Les isotopes du B permettent de tracer l'origine du bore dissous, notamment de caractériser les interactions eau/roche à l'origine de ces teneurs et/ou les apports anthropiques. En effet, le bore est un élément mis en solution aisément via les interactions eau/roche et il est dérivé, dans les eaux non contaminées, de l'altération des roches et des apports atmosphériques. Compte tenu de ces propriétés, le bore et son isotope ( $^{11}\text{B}$ ) ont été suivis pour chacune des neuf campagnes de prélèvements.

Pour Dému, les concentrations en bore des eaux ne varient pas significativement au cours du temps (cf. partie 2.3.3). Elles sont de l'ordre de  $43 \mu\text{g.L}^{-1}$  (à l'exception de la valeur de janvier 2017 :  $33 \mu\text{g.L}^{-1}$ ). La teneur en  $\delta^{11}\text{B}$  reste également constante à une valeur proche de 19 ‰ (illustration 17).

Pour LUG 57 et IZA 5, les concentrations en bore restent également stables, avec respectivement 13 et  $20 \mu\text{g.L}^{-1}$ . Si les concentrations sont stables, on peut observer de faibles variations de la teneur en  $^{11}\text{B}$ , avec des valeurs variant entre 14 et 16 ‰. Il est toutefois difficile de déduire une variation cyclique et saisonnière de ces teneurs (illustration 17).

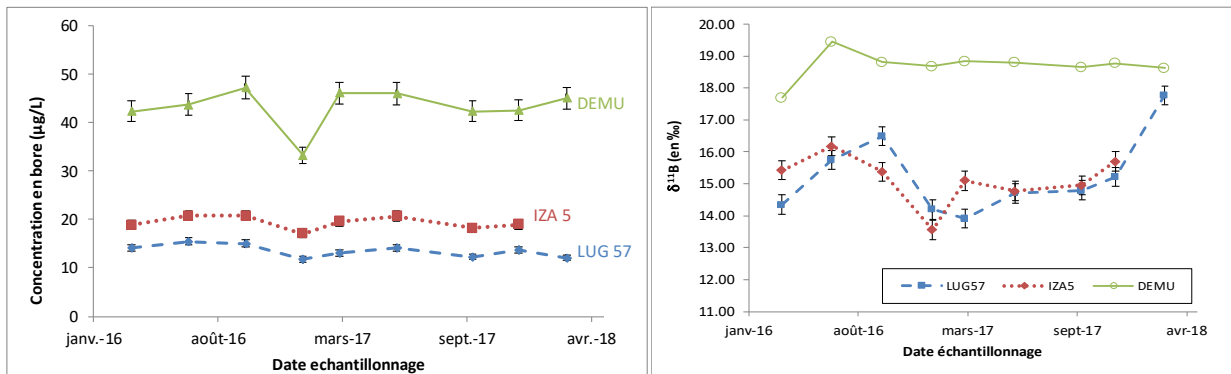


Illustration 17 - Variations des concentrations totales en bore (à gauche) et des teneurs  $\delta^{11}\text{B}$  (à droite) pour les eaux des forages de Dému, LUG 57 et IZA 5

Des variations cycliques et saisonnières sont observables pour Nogaro 2. Lorsque la teneur en bore augmente dans les eaux (avril 2016, mars 2017 et mars 2018), la signature isotopique  $\delta^{11}\text{B}$  diminue significativement, pour atteindre des teneurs de l'ordre de 10 ‰ (illustration 18). Lorsque les teneurs en bore sont plus faibles (de l'ordre de  $25 \mu\text{g.L}^{-1}$ ), les teneurs en  $^{11}\text{B}$  augmentent pour atteindre 18 ‰. Ce constat semble indiquer l'apport en solution de bore appauvri en  $^{11}\text{B}$ .

Pour le forage d'Eauze, les concentrations en bore fluctuent entre 16 et  $18 \mu\text{g.L}^{-1}$  et les teneurs en  $\delta^{11}\text{B}$  entre 13 et 15 ‰. Ces variations saisonnières sont faibles et il est difficile de pouvoir déduire une relation entre ces observations.

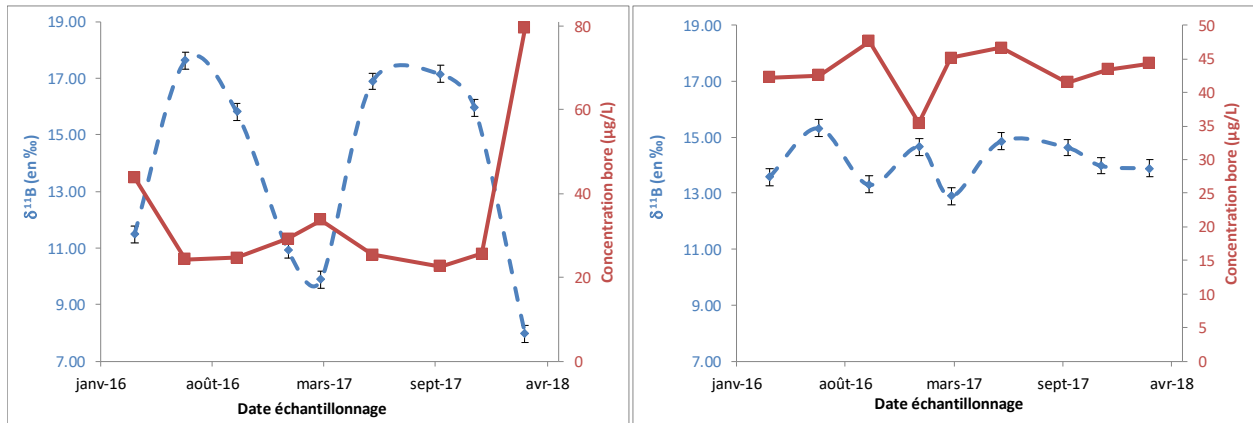


Illustration 18 - Comparaison entre variations des teneurs en  $\delta^{11}\text{B}$  et concentration en bore pour le forage de Nogaro 2 (à gauche) et le forage d'Eauze (à droite) En pointillés bleus, les données en bore-11 et en trait plein rouge, les données de concentrations en bore.

## 2.4. INTERPRÉTATIONS GÉOCHIMIQUES DANS LE FORAGE NOGARO 2

Les analyses des éléments majeurs, des éléments traces et des isotopes dans les eaux du forage de Nogaro 2 ont confirmé les variations de concentrations en sulfate observées sur les chroniques d'analyses chimiques. Si, jusqu'à présent, seules les variations en sulfate avaient été mises en évidence, cette étude a également montré que ces augmentations de concentration en sulfate sont corrélées avec des augmentations des teneurs en bore. Et ces fortes valeurs de B et  $\text{SO}_4$  sont anti-corrélées avec la piézométrie et la teneur en  $^{13}\text{C}$  dans les eaux.

Compte tenu des données isotopiques en soufre-34, l'enrichissement en sulfate semble provenir d'une source possédant une signature  $\delta^{34}\text{S}$  supérieure à la valeur de base dans le réservoir (estimée ici à +6,7 ‰ CDT), ce qui, comme le proposaient André et al. (2002) et Malcuit (2012), pourrait indiquer une origine évaporitique des sulfates (dissolution de gypse). Pour le bore, l'augmentation de la concentration totale de cet élément coïncide avec une baisse de  $\delta^{11}\text{B}$ . Dans ce cas, la source de bore responsable de l'augmentation de la concentration présente une signature isotopique plus faible que la valeur de base dans le réservoir (estimée à 17,5 ‰). Dans le même temps, l'augmentation en sulfate ne suit pas la même tendance que celle du calcium (et/ou du magnésium). Ceci pourrait signifier que le calcium (et/ou le magnésium) est contrôlé par un autre mécanisme. Une piste possible serait un contrôle par la solubilité des carbonates (et l'équilibre calco-carbonique dans le réservoir), ce qui pourrait expliquer les variations de carbone-13. De nombreux processus et mécanismes géochimiques sont donc susceptibles de se produire et d'expliquer les variations de concentration observées dans le forage de Nogaro 2.

Pour interpréter ces résultats expérimentaux, des simulations avec le logiciel PHREEQC (Parkhurst et Appelo, 2013) ont été réalisées. Ce logiciel est particulièrement utilisé dans le domaine des géosciences en raison de son adaptabilité à des problématiques géochimiques plus ou moins complexes. Il offre entre autres la possibilité de réaliser des calculs géochimiques sur des isotopes, en prenant en compte les signatures des différentes espèces. Les simulations ont consisté à reproduire les variations de teneurs en sulfate et bore dans les eaux de Nogaro 2. L'objectif majeur a été de pouvoir établir plus précisément la signature isotopique des sulfates et du bore qui participent à ces variations cycliques de concentration. Toutes les modélisations ont été réalisées en système batch, dans lesquels des mélanges d'eau (sous forme d'ajouts) ont été simulés.



Comme représenté sur l'illustration 19, l'eau initialement utilisée pour les simulations correspond à l'eau de Nogaro 2, analysée en avril 2016 - début des prélèvements trimestriels, avec une concentration initiale en sulfate de l'ordre de 24 mg.L<sup>-1</sup> (et  $\delta^{34}\text{S} = 8,0 \text{ ‰}$ ) et une teneur en bore de 44  $\mu\text{g.L}^{-1}$  (et  $\delta^{11}\text{B} = 11,5 \text{ ‰}$ ). Puis, les simulations numériques ont consisté à modéliser deux cycles, chacun comprenant deux phases, à savoir une phase de dilution (par mélange avec un fluide appauvri en sulfate et bore) et une phase de concentration (par mélange avec un fluide enrichi en sulfate et en bore).

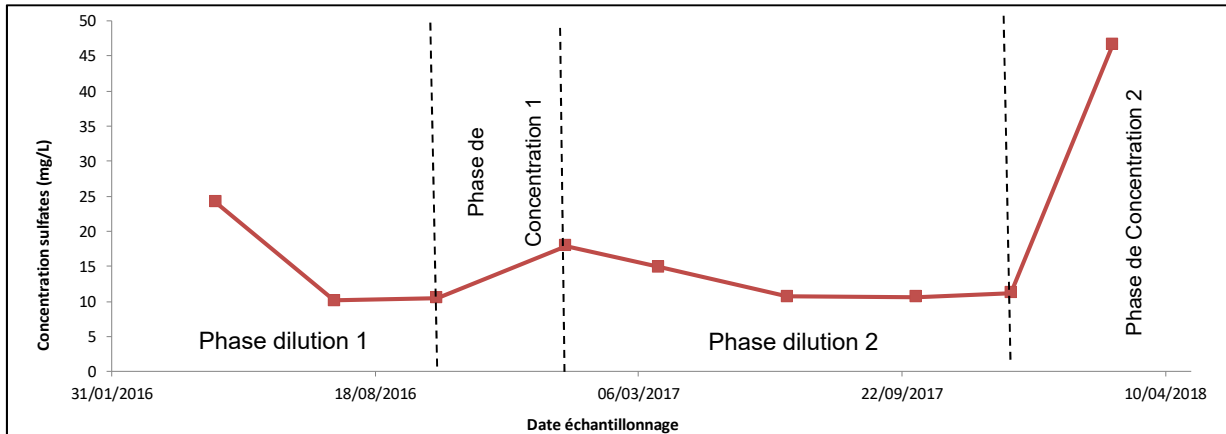


Illustration 19 - Mise en évidence des phases de dilution et de concentration affectant la composition chimique des eaux de l'aquifère dans le forage de Nogaro 2

Les simulations géochimiques sont calées dans le temps sur les campagnes de prélèvements, c'est-à-dire que les durées des phases de dilution et de concentration sont cohérentes entre les simulations et les mesures sur site. Le détail des calculs est schématisé en illustration 20.

Une première phase de dilution, d'une durée de 180 jours, est alors simulée. La dilution se fait par ajouts successifs d'un Fluide 1 dont les teneurs en sulfate et en bore sont respectivement de 10 mg.L<sup>-1</sup> et 24  $\mu\text{g.L}^{-1}$ . Les ajouts sont de 10 % en volume, à tous les pas de temps. Les concentrations résultantes de ces deux éléments diminuent pour atteindre la valeur de 10 mg.L<sup>-1</sup> pour les sulfates (et  $\delta^{34}\text{S} = 6,7 \text{ ‰}$ ) et 24  $\mu\text{g.L}^{-1}$  pour le bore (et  $\delta^{11}\text{B} = 17,5 \text{ ‰}$ ). Nous considérerons que ces valeurs correspondent aux concentrations de base de l'eau de l'aquifère.

Puis, une première phase de concentration est simulée sur une période de 100 jours. La solution ajoutée (que l'on appellera Fluide 2) a des concentrations en sulfate de 38,4 mg.L<sup>-1</sup> et en bore de 54  $\mu\text{g.L}^{-1}$ . Les signatures isotopiques sont respectivement de 2 ‰ et de 8,5 ‰ pour le bore et le soufre des sulfates. Ces valeurs de concentration et de signature isotopique ont été calées pour représenter au mieux les données mesurées. Le Fluide 2 est ajouté par incréments de 1 % en volume à tous les pas de temps. La conséquence de ces ajouts successifs est une augmentation des concentrations en sulfate, en bore et du  $\delta^{34}\text{S}$  et une diminution du  $\delta^{11}\text{B}$  au cours du temps (illustration 21). Les valeurs maximales des pics sont respectées.

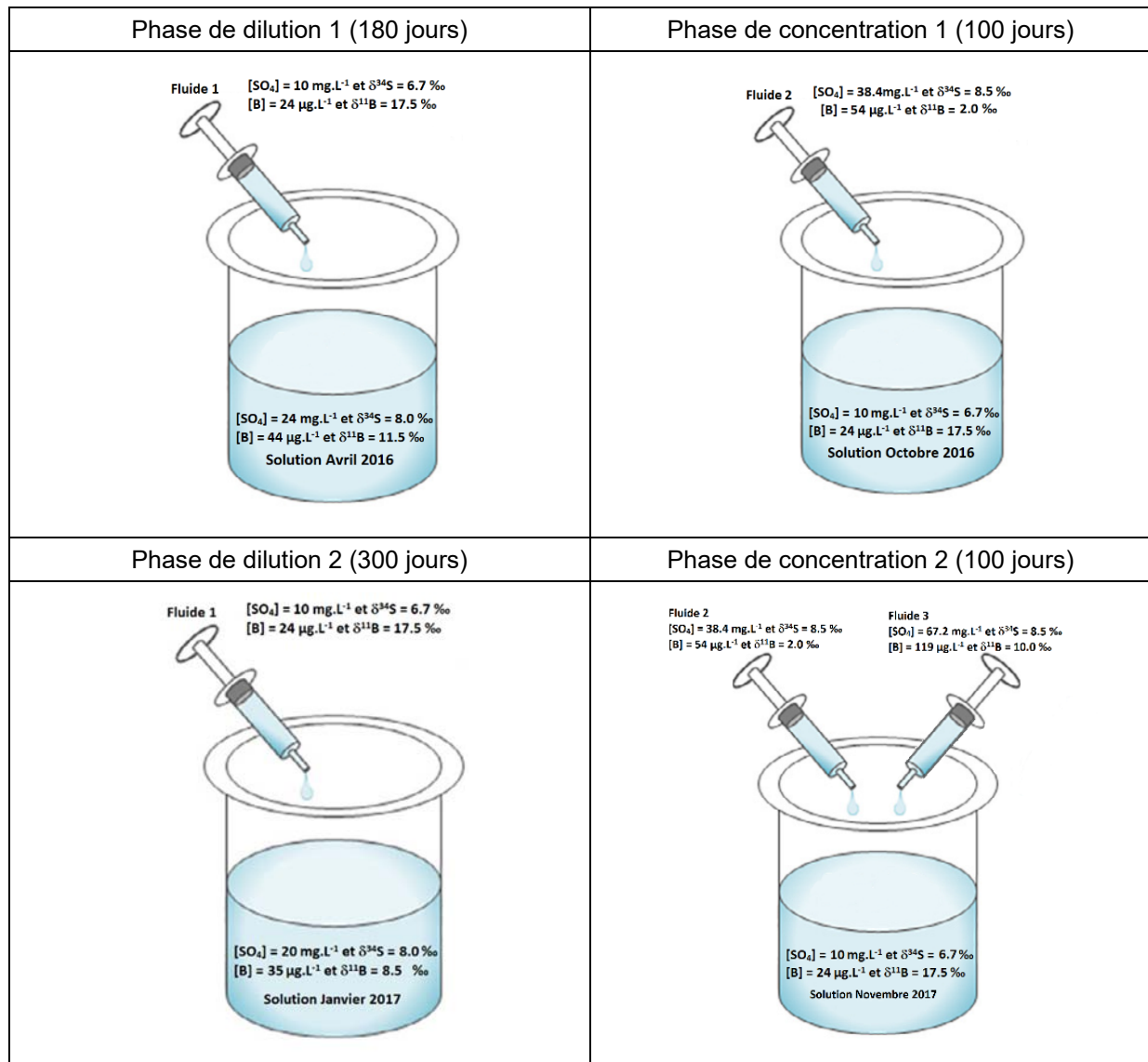


Illustration 20 - Représentation conceptuelle de la modélisation géochimique des phases de dilution et de concentration, affectant la composition chimique des eaux de l'aquifère dans le forage de Nogaro 2

Le second cycle débute par une phase de dilution, sensiblement plus longue que la phase de dilution 1 (300 jours), qui permet d'atteindre les valeurs de base dans l'aquifère. S'en suit une seconde phase de concentration sur une durée de 100 jours. Au cours de cette phase, les concentrations maximales en bore et en sulfate sont beaucoup plus fortes que lors de la phase de concentration 1, mais les valeurs finales des signatures isotopiques sont sensiblement les mêmes. Ce constat laisse supposer que le mélange fait intervenir une autre source de sulfate et de bore. Une nouvelle solution de mélange (Fluide 3) a dû être définie, présentant des concentrations en sulfate de l'ordre de 67 mg.L<sup>-1</sup> et en bore de 120 µg.L<sup>-1</sup>. Les signatures isotopiques sont respectivement de 10 ‰ et de 8,5 ‰ pour le bore et le soufre des sulfates. Comme précédemment, ces valeurs ont été déterminées numériquement pour représenter au mieux les données mesurées. Les Fluides 2 et 3 sont ajoutés par incréments de 2 % chacun en volume à tous les pas de temps. Cette recharge permet ainsi d'augmenter sensiblement les teneurs en sulfate et bore dans le mélange (pour atteindre respectivement 46 mg.L<sup>-1</sup> et 80 µg.L<sup>-1</sup>), tout en respectant les valeurs des signatures isotopiques mesurées.

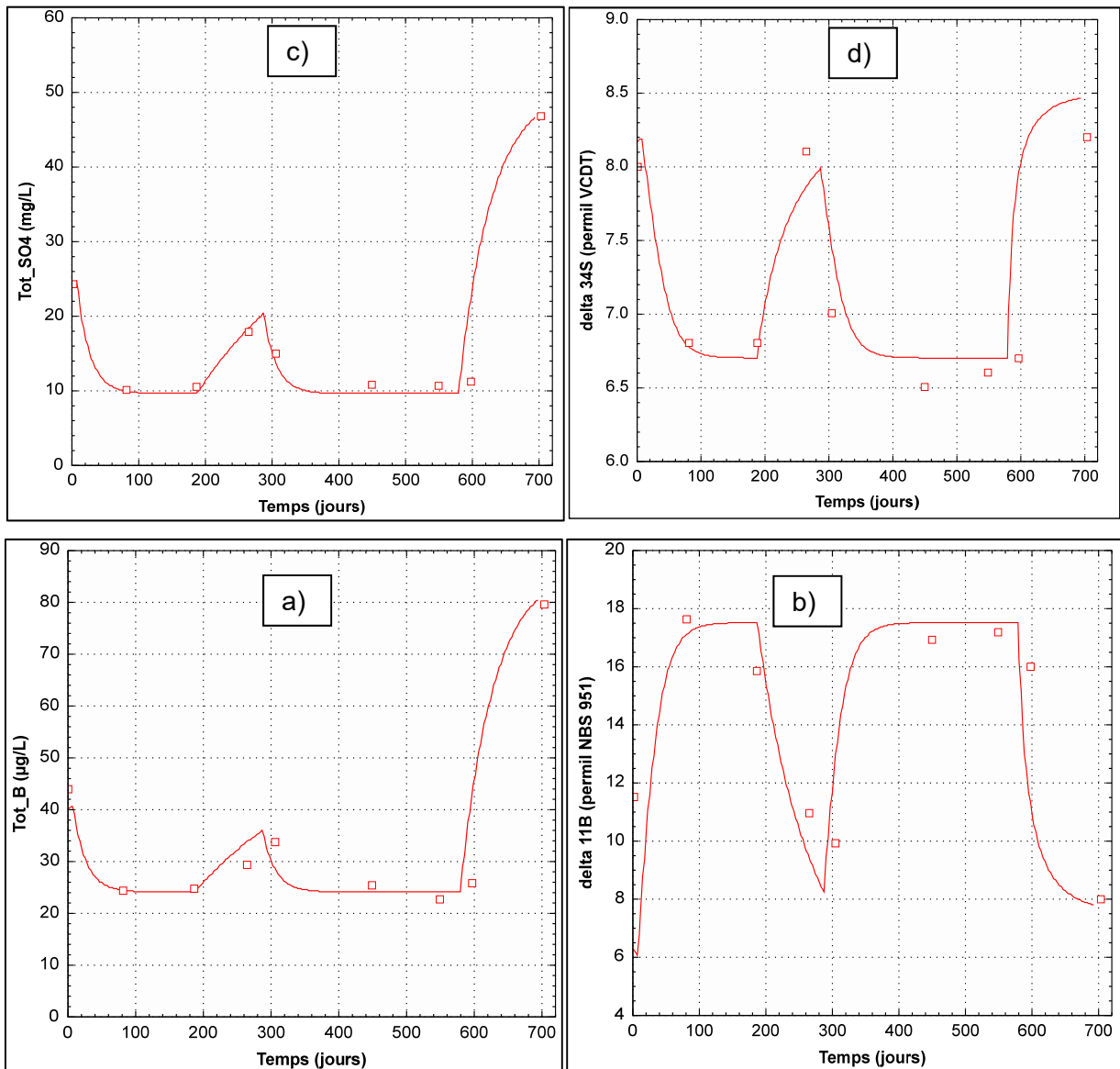


Illustration 21 - Variations modélisées en fonction du temps (a) de la teneur en bore total, (b) de  $\delta^{11}\text{B}$ , (c) de la teneur en sulfate, (d) de  $\delta^{34}\text{S}$  des eaux de l'aquifère dans le forage de Nogaro 2  
Les symboles correspondent aux valeurs mesurées lors des campagnes de prélèvements et les lignes, aux valeurs modélisées.

Ces simulations, exclusivement géochimiques, permettent ainsi d'estimer les concentrations et les signatures isotopiques des eaux susceptibles de se mélanger aux eaux de l'aquifère pour expliquer les variations cycliques, notamment sur les sulfates et le bore. Il faut ici remarquer que ces simulations concernent les variations « classiques » de la concentration en sulfate, mais elles ne permettent pas de représenter les variations exceptionnelles, comme la concentration en sulfate de 300 mg/L enregistrées en janvier 2017 dans le cadre de la surveillance sanitaire des eaux de Nogaro 2. D'après ces simulations, les eaux de « recharge » utilisées lors des phases de concentration ont des teneurs sensiblement plus fortes que les eaux de l'aquifère. Pour les signatures isotopiques, celles des sulfates sont de l'ordre de 8,5 ‰, ce qui semble confirmer l'hypothèse d'une origine évaporitique. Pour le bore, les signatures proposées sont de l'ordre de 2 et 10 ‰. La valeur la plus faible (2 ‰) est à comparer avec d'autres expériences menées dans

le cadre de cette étude. En effet, des échantillons de roche, provenant de cuttings et de carottes, prélevés au toit de l'aquifère (dans le forage de LUG 74) ont été analysés (DRX, micro-sonde, lame mince...) et des tests de laboratoire de mise en solution de ces échantillons ont été réalisés.

Les expériences de mise en solution ont consisté à dissoudre 10 g de matériel dans 100 mL d'eau et de suivre, pendant 1 mois, l'évolution des concentrations en éléments majeurs et en éléments traces dans la solution aqueuse. Les expériences ont été réalisées à la température du réservoir, soit 38°C. Une douzaine d'échantillons, provenant de différents horizons géologiques de l'éponte, ont ainsi été étudiés. Les analyses de la phase aqueuse, après 1 mois d'expérience, montrent des disparités assez fortes entre les échantillons. Il ressort essentiellement qu'à une profondeur comprise entre 540 et 545 m (l'aquifère des Sables de Lussagnet étant situé dans ce forage à une profondeur de 580 m), un horizon a relargué de plus grandes quantités de minéraux, avec notamment des concentrations dans la phase aqueuse plus fortes en éléments majeurs, dont les sulfates, et en éléments traces, dont le bore (illustration 22).

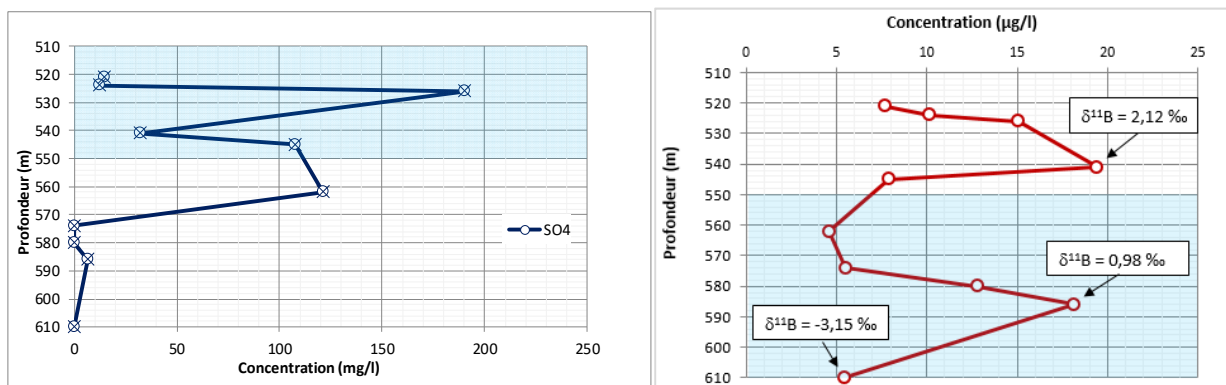


Illustration 22 - Résultats des expériences de mise en solution des échantillons solides provenant du forage de LUG 74 (à gauche les sulfates et à droite, le bore)

Les analyses ont été approfondies et des mesures de bore-11 sur le bore dissous ont été réalisées ; elles ont révélé des signatures proches de 2 ‰, soit la valeur retenue pour les modélisations géochimiques (illustration 22). Bien entendu, il n'a pas été possible de faire le même type de mesures au droit du forage de Nogaro 2, mais, cette étude semble confirmer que le toit de l'aquifère pourrait constituer une source d'éléments susceptibles d'alimenter l'aquifère en fonction des conditions de pression dans le réservoir.

Ces potentiels apports depuis les horizons molassiques sus-jacents avaient déjà été supposés par André (2002). En effet, l'éponte supérieure contient du gypse, identifié dans des cuttings de forage (voir annexe 1 et chapitre 3). L'éponte supérieure constituerait donc une réserve de sulfate et de bore, susceptibles de se transférer dans le réservoir. Compte tenu des gradients de concentrations mis en évidence dans cette étude, des processus de diffusion peuvent être supposés. Ces processus de diffusion permettraient notamment de favoriser le transfert de certains éléments (et ainsi expliquer leurs variations saisonnières) sans impacter la concentration des autres éléments. Afin de tester cette hypothèse et de prendre en compte les variations de pression dans ce secteur de l'aquifère, un modèle hydrodynamique a été développé et différents scénarii de transfert de masse ont été testés (voir chapitre 4).

## 2.5. CONCLUSIONS

Les suivis dans le temps des concentrations en éléments majeurs, en éléments traces et en isotopie font apparaître :

- une confirmation des variations cycliques et saisonnières dans le forage de Nogaro 2. Les variations en sulfate étaient connues mais, ce qui ressort de cette étude, ce sont des variations des teneurs en bore (en concentration et en isotopie) et en carbone ( $^{13}\text{C}$  et  $^{14}\text{C}$ ). Cependant, compte tenu des très faibles activités en  $^{14}\text{C}$ , il est difficile de conclure sur l'origine des variations mesurées (processus géochimiques, mélanges d'eau, incertitudes liées aux prélèvements et aux analyses...) Une étude plus poussée de ce paramètre pourrait être envisagée, notamment pour définir l'incertitude liée aux prélèvements et aux analyses ;
- des variations cycliques dans le forage d'Eauze. Ces variations sont moins prononcées qu'à Nogaro 2, mais, des variations de concentration en sulfate et en bore (concentration et isotopie) ont été observées dans ce forage ;
- des variations plus aléatoires sont observées dans LUG 57 et IZA 5, mais, compte tenu de leur proximité avec les stockages, il est difficile d'en tirer des conclusions précises ;
- une absence de variations dans le forage de Dému, avec des concentrations très stables au cours du temps.

En termes d'interprétations, une modélisation géochimique, basée sur des mélanges d'eaux, a permis de mettre en évidence des processus de concentration (liés à des mélanges avec des eaux enrichies en sulfate et en bore) et des phases de dilution, correspondant à des mélanges avec de l'eau du réservoir. Si les modèles permettent de restituer de manière convenable à la fois les teneurs en sulfate et en bore dans les eaux (ainsi que les signatures isotopiques en  $^{34}\text{S}$  et  $^{11}\text{B}$ ), cette approche doit cependant être considérée comme exploratoire dans le but de proposer des pôles de mélange. En effet, dans l'idéal, cette étude devrait être complétée par une analyse plus précise des minéraux présents sur le site (dans le réservoir et dans les horizons sus et sous-jacents). Cette étude minéralogique permettrait ainsi de définir plus précisément les phases porteuses de soufre et de bore mais aussi de les caractériser (notamment en termes d'isotopie).



## 3. Origine potentielle des sulfates présents dans les eaux souterraines issues des Sables Infra-Molassiques

### 3.1. CONTEXTES GÉOLOGIQUE ET PALÉO-ENVIRONNEMENTAL

Les analyses géochimiques et notamment isotopiques présentées dans le chapitre précédent apportent des éléments de réponse quant à la question sur l'origine des sulfates. A ce stade, il apparaît nécessaire de mieux caractériser ces sources potentielles présentes autour des piézomètres concernés et donc de préciser le contexte géologique ainsi que les environnements de dépôts correspondants. Ce focus permet *in fine* de :

- 1- produire une analyse détaillée du contexte géologique et de la géométrie des couches dans le sous-sol afin de mieux conceptualiser les écoulements en question ;
- 2- apporter des éléments factuels pour argumenter en faveur ou non des hypothèses précitées et notamment celles d'une origine provenant de la dissolution du gypse ;
- 3- proposer le cas échéant d'autres hypothèses en perspective.

#### 3.1.1. Évolution paléo-environnementale au début du Tertiaire sud-aquitain

Entre le Crétacé supérieur et le début du Cénozoïque, le sud de l'Aquitaine va subir de profondes transformations. L'environnement marin, qui a persisté durant la majeure partie du Mésozoïque (ou Secondaire) dans ce secteur, va évoluer vers un système sédimentaire de plus en plus influencé par le continent alors en cours d'émergence.

Le contexte géologique du Bassin aquitain évolue ainsi depuis un régime tectonique distensif<sup>2</sup> qui persiste jusqu'au début du Crétacé supérieur (contexte transtensif<sup>3</sup>) en basculant vers un régime tectonique compressif à partir du Santonien (contexte transpressif<sup>4</sup>).

Au départ, cette évolution n'entraîne pas d'émergence et les environnements demeurent plutôt marins jusqu'au début de l'Eocène. Ainsi, les dépôts du Paléocène et de l'Yprésien sont caractérisés par le développement de plateformes carbonatées tectoniquement stables. La polarité sédimentaire est alors globalement orientée nord-sud (cf. Illustration 23 a).

A l'Yprésien supérieur (Cuisien), un profond changement en termes de faciès et de polarité sédimentaire va être enregistré régionalement : de vastes deltas vont se mettre en place et on observe une nette progradation des séries détritiques depuis l'est vers l'ouest : ce sont les sables inframolassiques ou SIM (cf. Sables de Lussagnet, Illustration 23b).

Au Bartonien et au Priabonien, la sédimentation molassique s'installe de manière plus ou moins généralisée dans l'ensemble du Bassin sud-aquitain (cf. Illustration 23c). Cette sédimentation à dominance lacustre et fluviale va entraîner l'accumulation de dépôts argilo-silteux carbonatés, parfois intercalés avec des passées lenticulaires de calcaires ou de grès, d'extension latérale le plus souvent limitée (cf. calcaires lacustres de l'Illustration 23c). Des séries détritiques terrigènes plus grossières se mettent également en place notamment au sud et au sud-est du secteur, au pied des reliefs (cf. séries de Palassou, même illustration).

---

<sup>2</sup> Correspondant à une augmentation de surface par éloignement des plaques

<sup>3</sup> Se dit d'un système en extension et cisaillement

<sup>4</sup> Se dit d'un système en compression et cisaillement

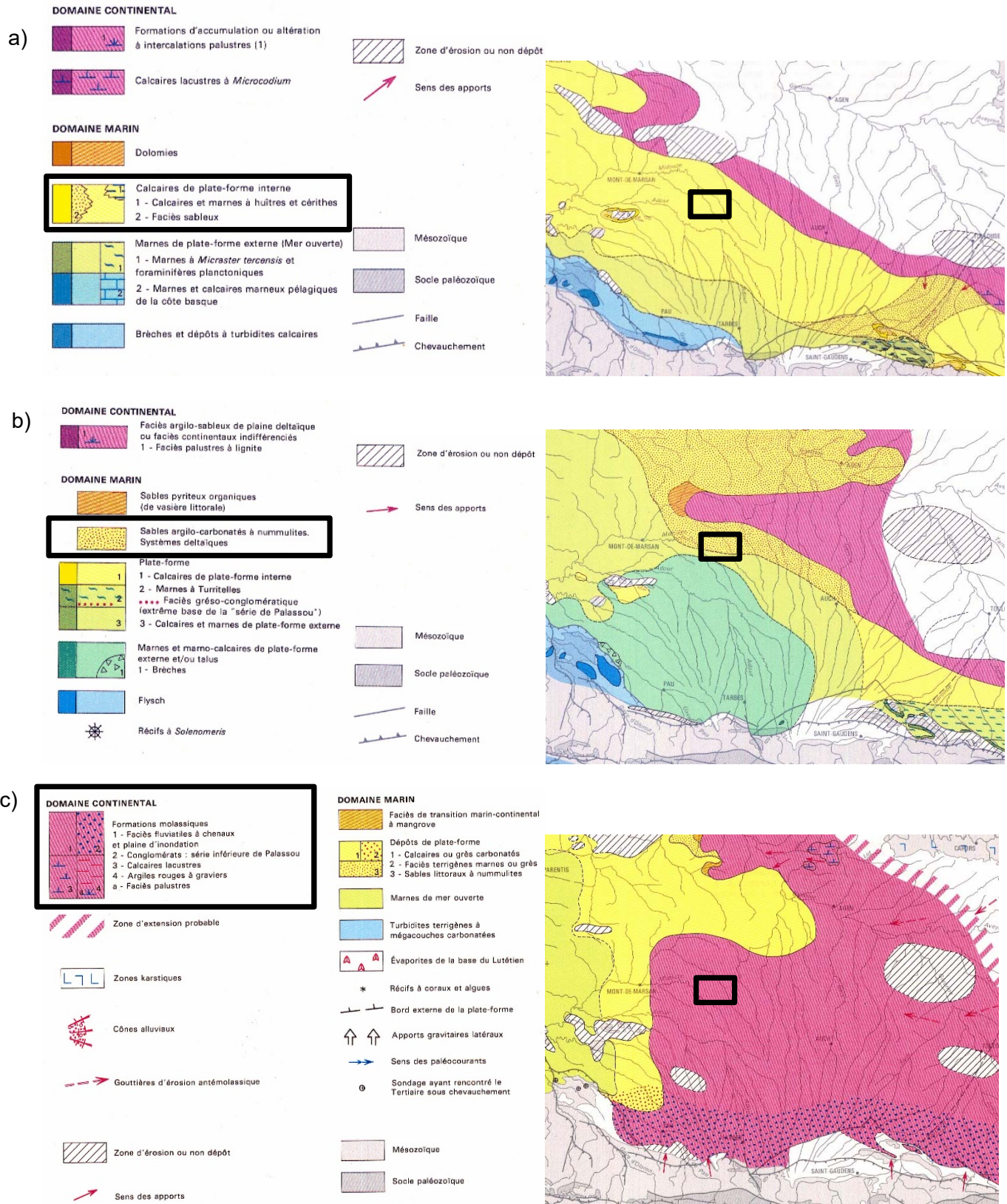


Illustration 23 - Cartes paléo-environnementales régionales : a) au Thanétien ; b) à l'Yprésien ; c) au Lutétien (Synthèse géologique et géophysique des Pyrénées, BRGM-AGSO, 2018)  
 Pour chaque faciès, la teinte renforcée représente la zone affleurante ; la teinte atténuée, la zone d'extension. Rectangles noirs : situation approximative de la zone d'étude et légende concernée.



### 3.1.2. Structuration tectonique et géologie de la base du Tertiaire dans le secteur d'étude

Dans le sud de l'Aquitaine, dans ce que l'on appelle le bassin de l'Adour-Mirande, une série de structures anticlinales se met en place au Crétacé supérieur (cf. Illustration 24). Spatialement proches avec des distances de l'ordre de la dizaine de kilomètres environ, elles sont principalement la conséquence d'une activité diapirique dans un contexte compressif. Elles se sont développées majoritairement au droit de secteurs fragilisés au Crétacé inférieur dans un contexte distensif.

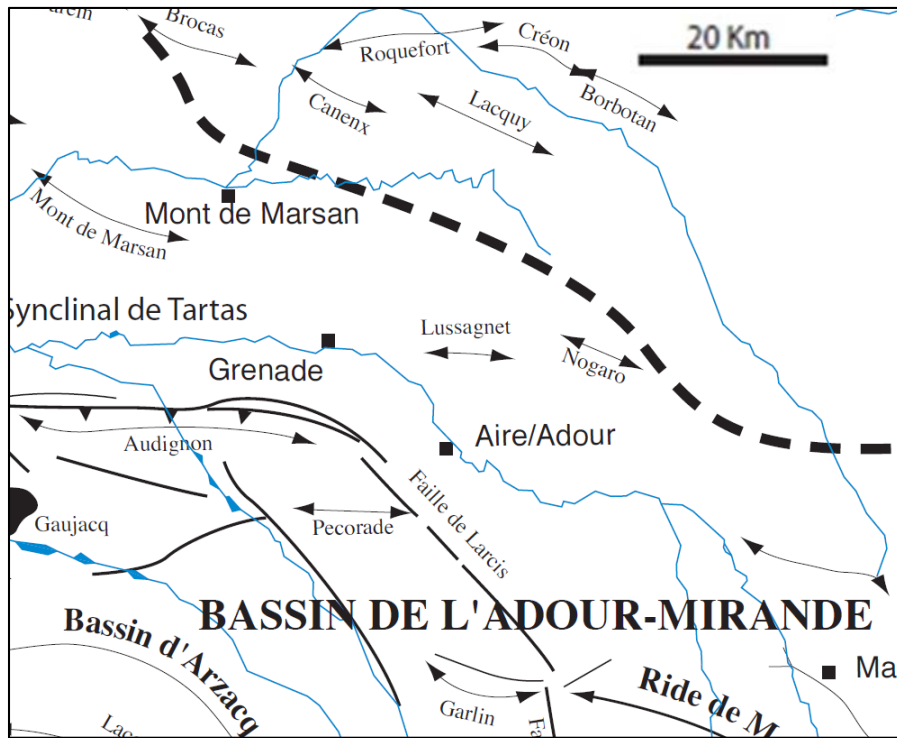


Illustration 24 - Carte structurale du secteur d'étude : localisation des structures anticlinales et de la flexure celtaquitaine (Serrano, 2001)

Les dépôts du Crétacé supérieur syntectoniques sont fortement influencés par cette structuration en cours. Toutefois, les effets de cette tectonique s'atténuent au début du Tertiaire.

Le sous-sol du secteur, qui concerne la présente étude sur la cyclicité des teneurs en sulfate dans les eaux souterraines, est notamment affecté par les structures anticlinales de Lussagnet à l'ouest, mais surtout de celles de Nogaro-Izaute, au cœur de notre secteur d'étude.

Sur la carte présentée dans l'illustration 24, on note la présence de la **flexure celtaquitaine** (en pointillé épais), à proximité du secteur. Cette structure, définie à l'échelle du Bassin d'Aquitaine, constitue une limite majeure d'orientation hercynienne (NO-SE), entre un domaine septentrional relativement stable de type plateforme et un domaine méridional, où peuvent régner de forts taux de subsidence et une épaisseur beaucoup plus importante des sédiments.

### 3.2. GÉOMETRIE DU SOUS-SOL

Dans le secteur de Nogaro, représenté sur l'illustration 25, l'évolution des conditions environnementales au début du Tertiaire liée à l'émergence du relief pyrénéen s'enregistre dans les dépôts sédimentaires éocènes. On retrouve ainsi une succession lithologique correspondant à ces grands bouleversements dans les forages existants dans le secteur.

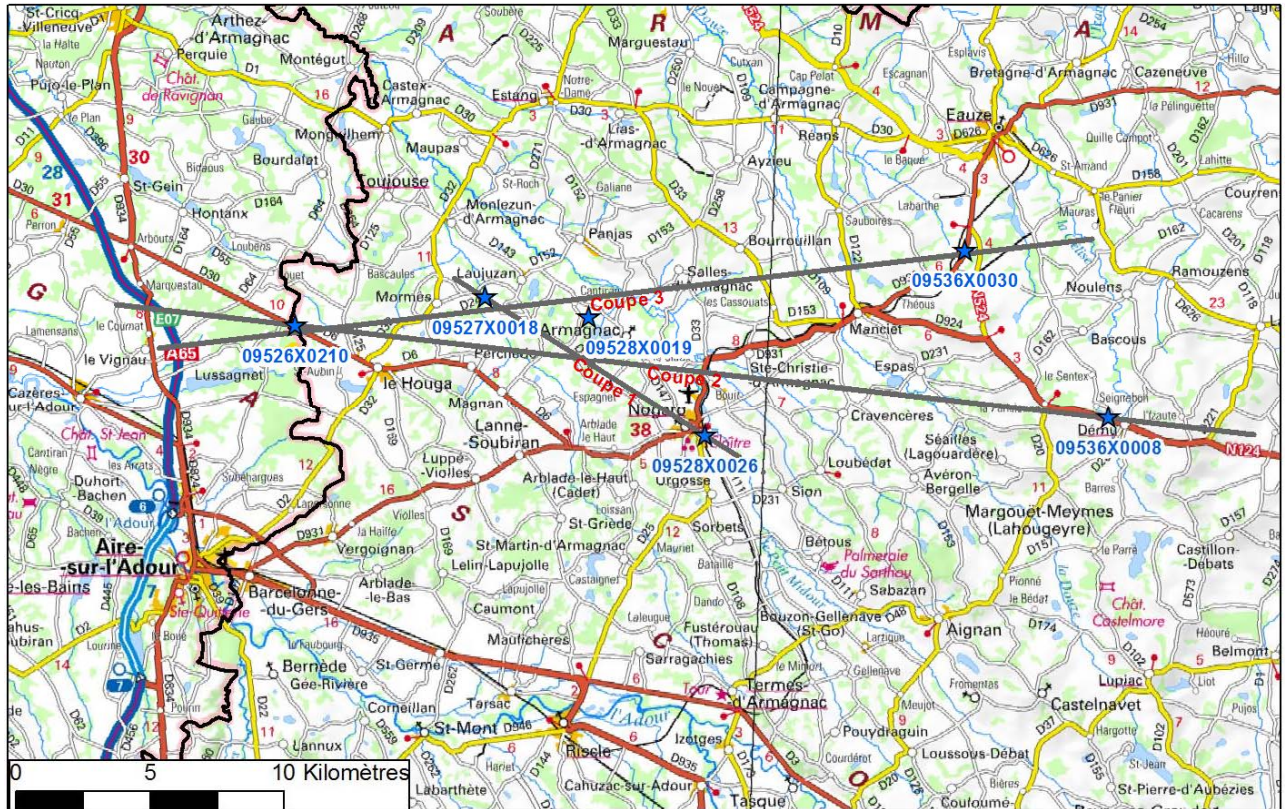


Illustration 25 - Carte de la zone d'étude : positions des 6 forages et des 3 coupes (en gris) extraites du modèle géologique 3D GAIA (Grataloup et al., à paraître ; fond carte IGN au 1/100 000)

Le Tableau 4 récapitule les formations géologiques traversées dans les 5 forages considérés dans cette étude, ainsi que dans un forage situé au cœur de la zone (09528X0019/NOG2<sup>s</sup> - BSS002EFRU). Les coupes lithostratigraphiques obtenues dans ces forages identifient bien la **formation des sables de Lussagnet** qui, d'un point de vue hydrogéologique, forme dans ce secteur la partie supérieure de l'aquifère des sables infra-molassiques (SIM).

| GEOL                                     | LITHOLOGIE  | STRATIGRAPHIE                  | 09536X0030/F | 09527X0018/NOG5 | 09536X0008/F | 09528X0019/NOG2 | 09526X0210/F | 09528X0026/F |
|--|---|--------------------------------|--------------|-----------------|--------------|-----------------|--------------|--------------|
|  |   |                                | - F99-086    | - NOGARO 5      | - F99-084    | NOGARO 2        | - F99-078    | - F99-263    |
|  |   |                                | EAUZE        | IZA 5           | DEMU         |                 | LUG 57       | NOGARO 2     |
| Sol                                      | Sol   | Sol                            | 0            | 0               | 0            | 0               | 0            | 0            |
| Molasse                                  | Argile, marne, passages de calcaire               | Oligocène à Miocène            | 315          | 371,7           | 502          | 381,7           | 614          | 691          |
| Formation de campagne                    | Argile calcaire, marne, marne plastique, grès fin | Priabonien                     | 471          | 542,7*          | 728*         | 926,7*          | 950*         | 916*         |
| Formation de Lussagnet                   | Sable moyen, localement grossier                  | Yprésien supérieur à Bartonien | 573          | 619,7**         | 780          | 1078,7**        | 1031**       | 1026**       |
| Formation de Baliros                     | Grès fin à nummulites                             | Yprésien                       | 891          | 632,7           | 781,5        |                 | 1060         | 1066         |
| Alt. formations de Baliros / Gan Donzacq | Alt. argile et grès calcaire fin                  | Yprésien                       |              |                 |              |                 |              | 1088         |

Tableau 4 - Coupes lithostratigraphiques synthétiques des 6 forages (indices : \* = gypse / \*\* = pyrite ; les valeurs correspondent à des profondeurs exprimées par rapport au sol) ; Eauze, IZA 5, Dému, LUG 57 et Nogaro 2 font référence aux noms des forages présentés au chapitre 2

<sup>5</sup> Bien que désigné NOG2, ce forage ne doit pas être confondu avec le forage d'exploitation en eau potable Nogaro 2 d'indice BSS 09528X0026/F - BSS002EFSB. Il s'agit du forage IZA 2, situé au droit du site de stockage de gaz d'Izaute.

Cet aquifère montre des épaisseurs variables. Dans les forages, la formation des sables de Lussagnet présente ainsi des épaisseurs pouvant varier entre **52 et 110 m** : épaisseurs de 52 m (Dému), 77 m (IZA 5), 81 m (LUG 57), 102 m (Eauze) et 110 m (Nogaro 2).

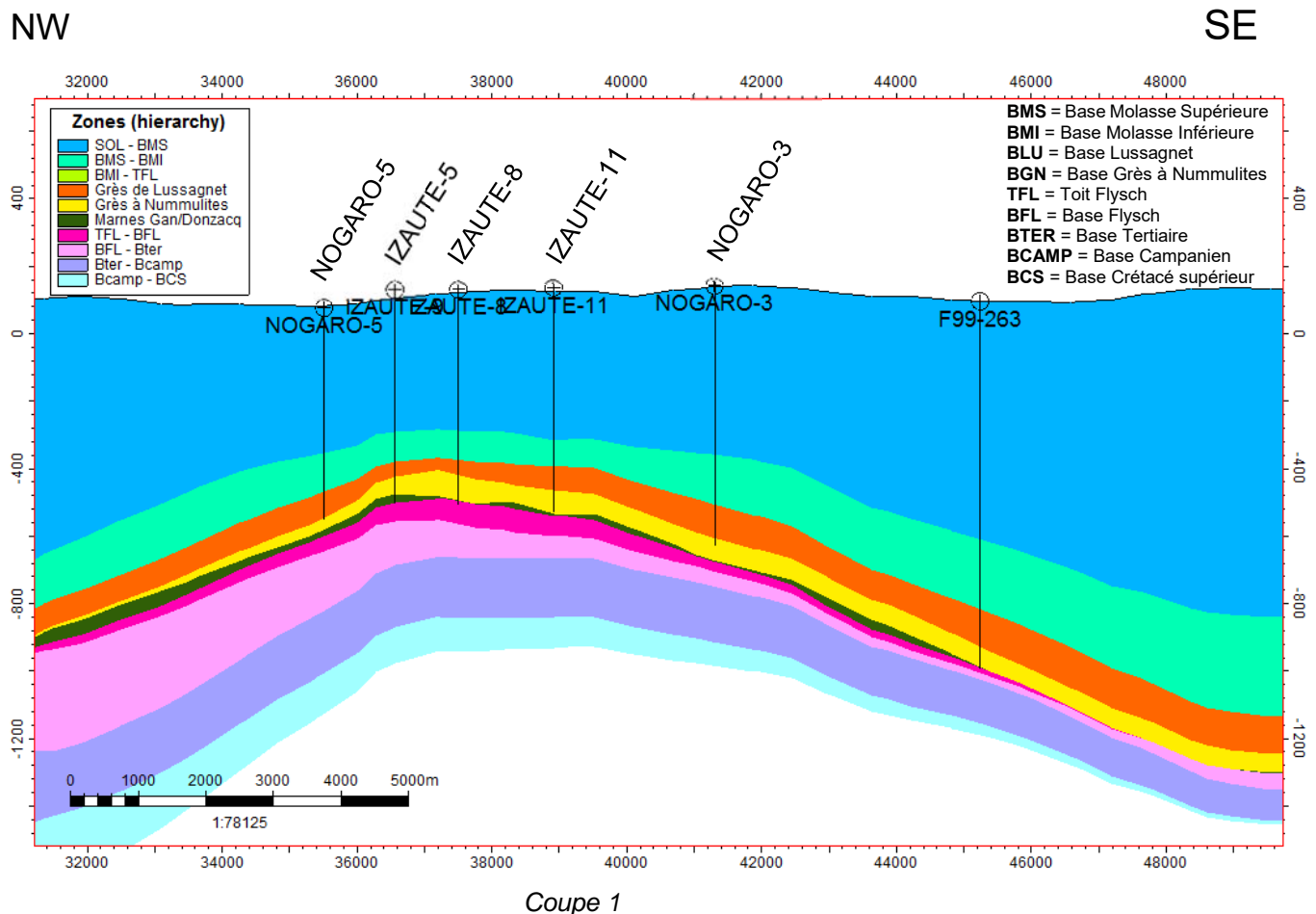
La position altimétrique du toit de la couche des sables de Lussagnet présente également des variations notables. On peut ainsi relever approximativement les profondeurs suivantes qui correspondent à :

- deux points hauts (Eauze : **471 m** ; IZA 5 : **543 m**) ;
- un point intermédiaire (Dému : **728 m**) ;
- trois points bas (LUG 57 : **950 m** ; 09528X0019/NOG2 : **927 m** et Nogaro 2 : **916 m**).

Il n'y a pas de corrélation entre la position du toit de la formation des sables de Lussagnet et son épaisseur. On constate que la cote du toit est beaucoup moins profonde dans les deux forages situés les plus au nord : Eauze et IZA 5 qui constituent des « points hauts ».

Cette géométrie variable des sables de Lussagnet n'est pas surprenante : les épaisseurs peuvent différer d'un point à un autre du secteur en fonction de la quantité de sédiment stockée lors de la progradation du delta vers l'ouest à l'Eocène moyen. Dans ce type de contexte, la vitesse de déplacement de la position du delta et la quantité des apports détritiques peuvent évoluer.

Avec la présence de la zone de stockage dans le secteur de IZA 5, on s'attend à distinguer des structures géologiques, comme par exemple des plis anticlinaux, liés au raccourcissement tectonique régional. La géométrie de ces structures géologiques doit être représentée à l'aide de coupes géologiques interprétées.



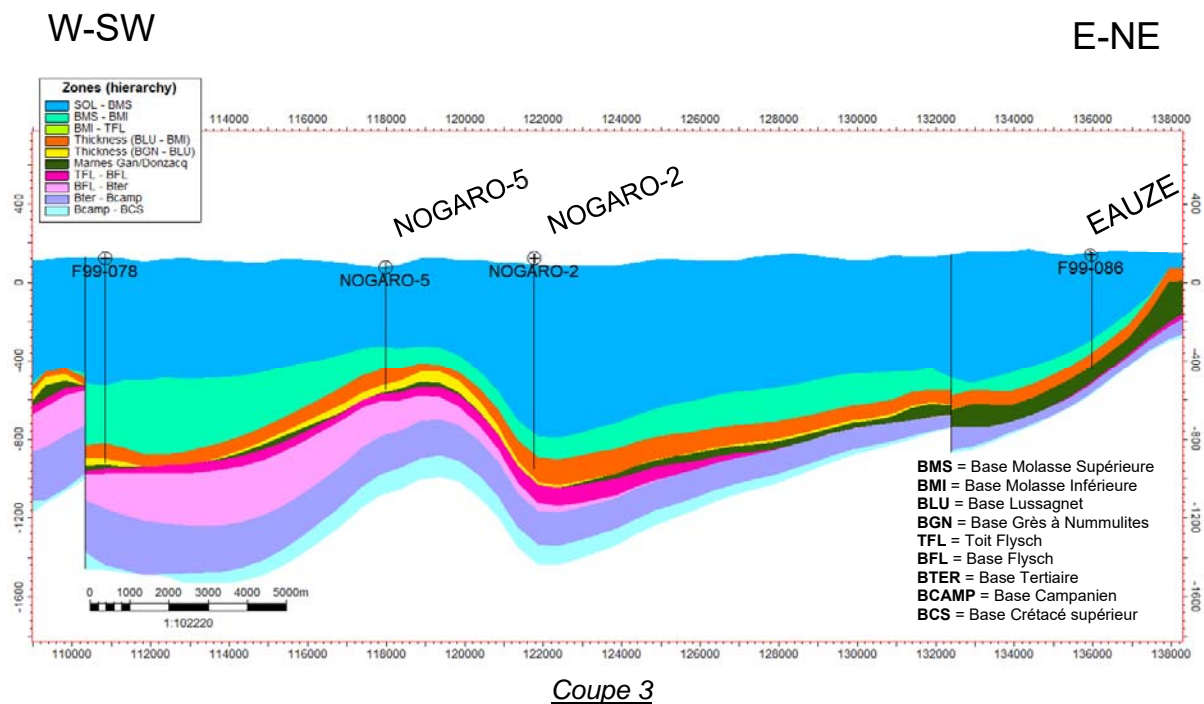
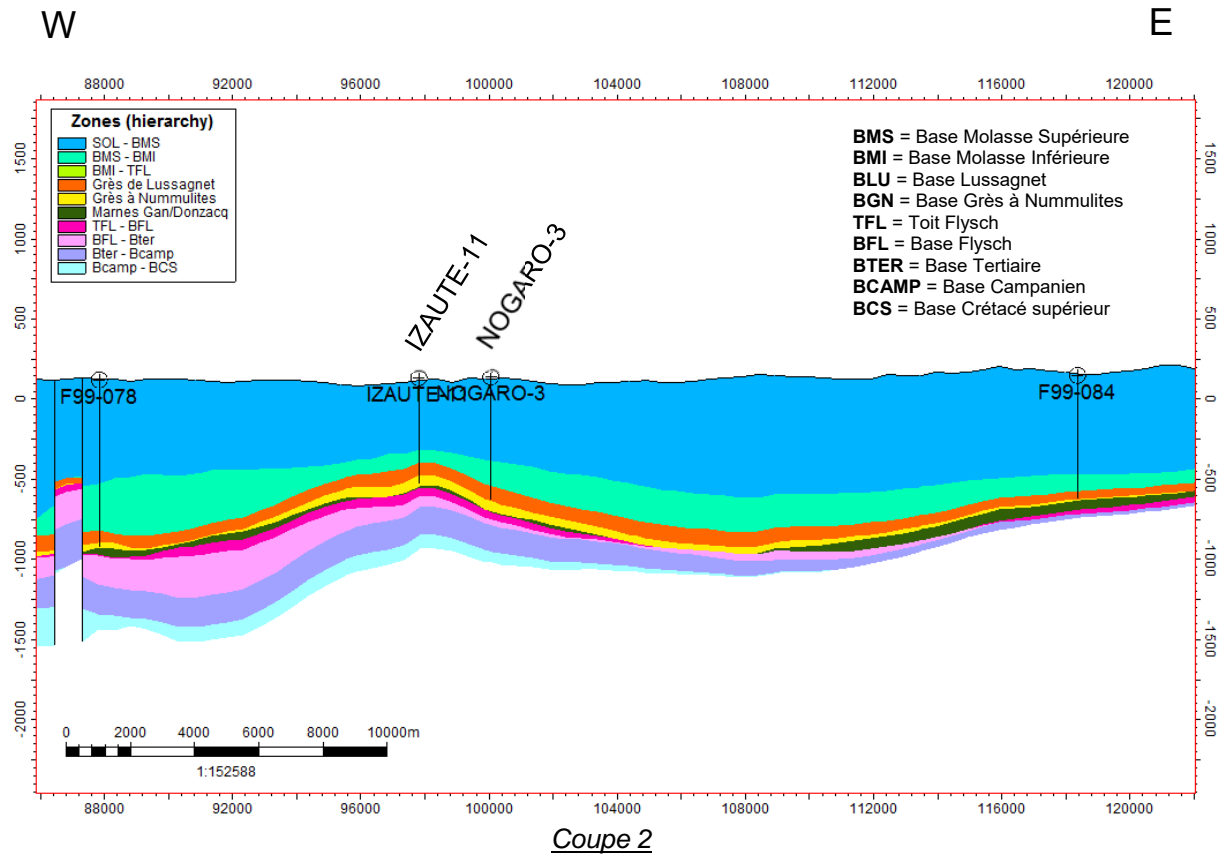


Illustration 26 - Coupes extraites du modèle géologique 3D GAIA (version 12/12/2019)  
(de haut en bas : Coupe 1, 2 et 3 - Localisation des coupes : voir illustration 25)

La structure principale observée au cœur des trois coupes est l'anticlinal de Nogaro-Izaute.

Sur les coupes 2 et 3, on constate une nette remontée de la base du Crétacé supérieur et du Tertiaire vers l'est et l'est/nord-est, qui souligne la présence de la flexure celtaquitaine (cf. illustration 24). On note également le développement de géométries plus épaisses des séries du Crétacé supérieur vers le sud-ouest.

Par ailleurs, sur la coupe 3, côté ouest, une remontée assez brutale du sommet du Crétacé supérieur et de la base du Tertiaire semble correspondre à la structure anticlinale de Lussagnet, structure dite en « chou-fleur », en raison d'un réseau de failles multiples, positionnées en écaillés et relativement verticales.

La progradation des molasses au Priabonien et le développement des marnes de Campagne correspondent à une régression généralisée et marquent ainsi la continentalisation de la majeure partie du bassin de l'Adour (Serrano, 2001). Les faciès lacustres et fluviatiles de ces dépôts continentaux présentent de nombreux niveaux évaporitiques (gypse). Le plissement des couches constitutives de la basse molasse inférieure démontre très clairement que la structure a bien fonctionné pendant l'Eocène ainsi que pendant une bonne partie de l'Oligocène.

Les dépôts de type molassique vont ensuite finir de sceller la structure anticlinale pendant toute la durée allant de la fin de l'Oligocène jusqu'au Miocène.

### 3.3. HYPOTHÈSES SUR L'ORIGINE DES SULFATES « CYCLIQUES »

#### 3.3.1. Généralités

Le soufre peut être présent dans l'environnement sous plusieurs formes minérales : les sulfates et les sulfures. Il s'agit de « groupes » de minéraux au même titre que l'on retrouve aussi les silicates, les carbonates, les oxydes, etc.

- **Les sulfates**

Les sulfates contiennent du soufre et de l'oxygène ( $\text{SO}_4$ ). Les plus abondants sont le **gypse** ( $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ) et l'anhydrite ( $\text{CaSO}_4$ ), présents dans les dépôts évaporitiques.

Les conditions environnementales palustres et lacustres sont propices au développement, plus ou moins local, de minéraux évaporitiques et donc de couches enrichies en sulfate (gypse et anhydrite notamment). Ces conditions ont été dominantes dans cette région du Bassin d'Aquitaine, à partir de la fin de l'Eocène et jusqu'au Miocène, aboutissant à l'épaisse pile de dépôts molassiques, qui peut parfois atteindre plus d'un millier de mètres. On peut donc aisément comprendre la présence de gypse identifiée dans ces séries continentales qui se sont déposées postérieurement aux sables de Lussagnet.

- **Les sulfures**

Les minéraux du groupe des sulfures s'observent dans les milieux géologiques où un déficit en oxygène empêche la formation de sulfates. Ce sont le plus souvent des combinaisons de soufre et de métaux, qui leur confèrent le plus souvent un éclat métallique et une densité élevée. Les plus connus et abondants sont la galène ( $\text{PbS}$ ), la **pyrite** ou la marcassite ( $\text{FeS}_2$ ), la chalcopyrite ( $\text{CuFeS}_2$ ), etc.

La formation du sulfure de fer dans les sédiments nécessite donc un milieu anoxique, donc plutôt de type marin et riche en matière organique (nécessité d'une activité bactérienne permettant de réduire les ions sulfate et les oxydes de fer présents dans le milieu).

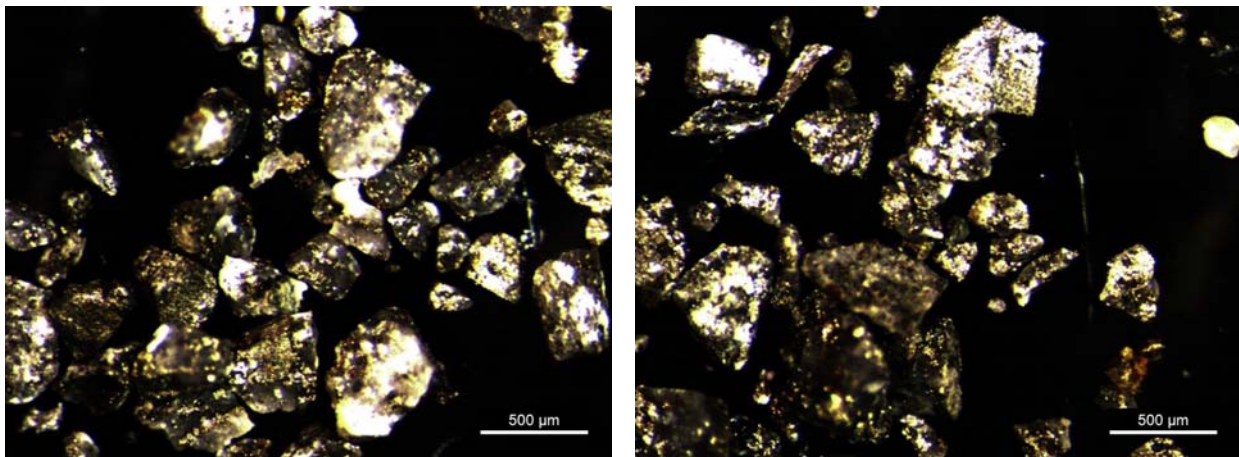
#### 3.3.2. Indices relevés dans le secteur d'étude

Dans le Tableau 4, les observations annotées aux différents horizons lithostratigraphiques identifiés indiquent la présence d'éléments pouvant apporter des précisions sur l'origine des ions sulfate mesurés dans les eaux souterraines. En effet, on note à la fois la présence de :

- gypse : nombreux indices relevés dans la formation de Campagne (Priabonien), située au sommet de la formation des sables de Lussagnet. Elle constitue la base de la molasse inférieure (Eocène à Oligocène) ;
- pyrites : indices relevés le plus souvent sous la forme de traces au sein même de la formation des sables de Lussagnet. Sa présence est toutefois suffisamment abondante pour être notée.

Bien que les coupes géologiques du forage d'Eauze ne mentionnent pas la présence de gypse ou d'anhydrite, la présence de ces minéraux est reconnue régionalement dans les formations molassiques du Bassin d'Aquitaine et principalement dans la molasse inférieure. Dans les autres forages de cette étude (IZA 5, Dému, 09528X0019/NOG2, LUG 57, et Nogaro 2), des indices de gypse ont été relevés.

Concernant la pyrite, sa présence a été identifiée au sein même de la formation des sables de Lussagnet. Toutefois, aucune trace n'a été relevée au droit des forages Eauze et Dému. Des tentatives de caractérisation plus précises de cette pyrite ont été réalisées au cours de cette étude. L'objectif était de pouvoir déterminer la signature isotopique en soufre-34 de ces minéraux sulfurés. Pour cela des déblais de forage, issus du puits LUG 101, distant de quelques kilomètres de Nogaro 2, ont été utilisés. Ce forage a traversé les sables de Lussagnet et les grès à Nummulites, dans lesquels les analyses DRX ont mis en évidence la présence en traces de pyrite (de l'ordre de 1 % en masse). Des extractions ont alors été réalisées au BRGM. Il s'est cependant avéré impossible d'isoler proprement cette pyrite, afin de réaliser les analyses isotopiques. En effet, la faible quantité, la taille des grains et l'enrobage de la pyrite par du quartz n'a pas permis de poursuivre les analyses (illustration 27).



*Illustration 27 - Images, au microscope optique, des grains de pyrite enrobés de quartz provenant d'une extraction (batée + bromoforme) sur un échantillon prélevé dans le forage de LUG 101 à une profondeur de 797 m/sol*

Dans le forage Nogaro 2, des indices de pyrite ont également été reconnus sous la base des sables de Lussagnet, dans les horizons argileux de la formation des grès fins à Nummulites.

Pour compléter notre recherche sur les origines possibles du soufre dans le secteur, il faut également évoquer les argiles du Keuper (Trias continental), présentes à l'échelle régionale, et dans lesquelles on retrouve beaucoup de gypse et d'anhydrite. De nombreuses « lames » d'argile gypsifère ont en effet atteint la surface à la faveur de remontées diapiriques, le gypse étant moins dense que la plupart des couches géologiques de la croûte supérieure.

D'après le modèle géologique, la base du Crétacé supérieur est située à plus de 400 m en deçà du mur de l'aquifère des SIM, dans le secteur, et aucun indice de remontée diapirique du Trias n'est évoqué. Les argiles, à fréquentes intercalations d'anhydrite du Keuper, sont identifiées à une profondeur d'environ 2 400 m au droit du forage pétrolier 09527X0001/NO1, situé à Nogaro.

Dans cette configuration, il est peu probable que le soufre détecté dans les SIM provienne de la dissolution de gypse, issue de ces niveaux.

### 3.3.3. Discussion et conclusion

Le phénomène de cyclicité des concentrations en ions sulfate, dans l'aquifère des SIM au droit de certains forages, et qui semble à la fois anti-corrélées (Nogaro 2) et corrélées (Eauze) avec les mises en charges de l'aquifère, pose plusieurs problèmes quant à l'origine de ces sulfates.

En effet, la présence d'ions sulfate dans les eaux nécessite au préalable une réaction de dissolution des minéraux présents dans la/les formation(s) géologique(s) source(s). La problématique de cette dissolution des sulfates/sulfures doit donc être discutée.

S'il est relativement aisé de dissoudre des sulfates, comme le gypse ou l'anhydrite, dans des conditions normales par la simple circulation des eaux souterraines (solubilité de l'ordre de 0,667 g.L<sup>-1</sup>), le mécanisme de dissolution des sulfures est plus complexe à mettre en œuvre.

Deux processus distincts permettent l'oxydation de la pyrite et la libération d'ions de la famille des sulfates (Demoisson, 2006) :

- l'oxydation **par voie bactérienne (biolixiviation)** : comme dans les processus menant à la formation de la pyrite dans les environnements sédimentaires, l'activité bactérienne va être prépondérante dans ce mécanisme d'oxydation de la pyrite ;
- l'oxydation **par voie chimique** : les oxydants chimiques de la pyrite vont être principalement les ions ferriques et l'oxygène dissous. Sans rentrer dans le détail du fonctionnement des réactions chimiques, il faut noter qu'un milieu très acide est nécessaire pour entraîner les réactions aboutissant à la libération des ions sulfate (pH < 3, le principal agent étant les ions ferriques). En milieu moins acide (6 < pH < 9), l'oxydation de la pyrite se fait principalement par l'oxygène dissous. Elle permettrait dans ce cas la libération d'ions thiosulfates (S<sub>2</sub>O<sub>3</sub><sup>2-</sup>). André (2002) propose cependant un mécanisme d'oxydation de la pyrite à partir de Fer III, provenant de la dissolution de traces de limonite, observé à l'état de traces dans des échantillons.

Dans le cas des eaux de Nogaro, la concentration en ions sulfate dans un aquifère alimenté par une source présente en quantité importante, de manière pérenne et répartie de manière homogène à l'échelle de l'aquifère (comme par exemple le gypse dans les molasses inférieures situées au-dessus des SIM), ne devrait pas en première approche produire de tels pics de manière aussi localisée. Face à ce constat, il apparaîtrait logique que la mise en charge de l'aquifère et la localisation géographique des forages dans lesquels cette cyclicité est observée aient une incidence majeure sur les phénomènes observés. Ainsi, pour les eaux de Nogaro, à partir des résultats présentés au chapitre 2 et des observations géologiques ici exposées, il semble que les pics de sulfate peuvent avoir une double origine : à savoir la dissolution de gypse et l'oxydation de pyrite, mais que les proportions de chacun de ces processus ne peuvent pas être pour l'instant définies.

On peut noter par ailleurs que, d'après le modèle géologique (cf. coupe 3, illustration 26), la discontinuité intervenant entre le forage d'Eauze et celui de Nogaro 2 n'induit pas une compartimentation de l'aquifère sableux éocène. Ceci va bien dans le sens de l'observation des cycles piézométriques saisonniers de l'ouvrage d'Eauze.

On note un point particulier au droit du forage Dému, avec l'absence de « pics » saisonniers et où aucune trace de pyrite n'a également été identifiée.

Afin de discuter, plus en détail, les différentes origines possibles des sulfates dans les horizons où des pics saisonniers sont observés, des simulations d'écoulements hydrauliques doivent être

modélisées. Elles permettront de mettre en corrélation des hypothèses calculées avec les données réelles mesurées et apporter des éléments de réponses complémentaires au problème rencontré.



## **4. Éléments de compréhension des phénomènes observés à Nogaro 2 : modélisation hydrodynamique et de transport de masse**

### **4.1. MODELES CONCEPTUELS POUVANT EXPLIQUER LES VARIATIONS CYCLIQUES DES TENEURS EN SULFATE OBSERVEES A NOGARO 2**

Les chapitres précédents ont montré que les sulfates pouvaient avoir différentes origines, avec en particulier la dissolution de gypse, présent en base de la molasse inférieure et l'oxydation de pyrite, relevée au sein de la formation des sables de Lussagnet. L'objectif de ce chapitre est d'évaluer, par modélisations hydro-dispersives, le rôle éventuel de ces différentes sources dans les cycles de sulfate observés au droit de Nogaro 2.

Le premier modèle conceptuel testé (nommé par la suite modèle conceptuel n°1) reprend l'hypothèse de la présence de gypse au sein de la base molasse argilo-sableuse : ce premier modèle expliquerait les variations cycliques des teneurs en sulfate par des échanges entre des niveaux sableux, riches en sulfate (car proches de niveaux gypseux), et les sables infra-molassiques ; échanges par drainance qui seraient induits par les variations de charges piézométriques conséquentes aux opérations de stockage de gaz ayant lieu à proximité de Nogaro 2.

Le second modèle conceptuel testé (nommé par la suite modèle conceptuel n°2) s'affranchit quant à lui des échanges base-molasse/SIM, pour expliquer les variations cycliques en sulfate observées, mais présuppose l'existence d'un panache riche en sulfate au sein des SIM, au préalable de la mise en place des stockages de gaz : ce panache pourrait avoir été constitué par l'oxydation de la pyrite au sein des SIM et/ou d'échanges entre la base molasse et les SIM potentiellement lents (impliquant par exemple des phénomènes de diffusion par exemple). La mise en œuvre alternée d'opérations de stockage de gaz, puis de soutirage, entrainerait le déplacement périodique de ce panache et, au cours du temps, le captage d'une eau plus ou moins riche en sulfate, selon la localisation du panache riche en sulfate.

Ces différents modèles conceptuels sont alors convertis en deux modèles numériques hydrodynamiques et hydro-dispersifs, dans le but d'obtenir des éléments de discussion sur leur plausibilité. Il est à noter que l'objectif de ces tests est l'amélioration de la compréhension des phénomènes pouvant aboutir aux observations, mais n'est pas la reproduction précise (au sens quantitatif) de ces observations.

### **4.2. MODELE CONCEPTUEL N°1 : SOURCE DE SULFATE EN BASE MOLASSE ET ECHANGES VERTICAUX PERIODIQUES AVEC LES SIM**

#### **4.2.1. Construction du modèle numérique : adaptation du Modèle Sud Adour-Garonne**

Le Modèle Sud Adour Garonne ou MSAG (Seguin, 2003) a été repris et modifié pour étudier la problématique "sulfate" au voisinage du forage de Nogaro 2. Du modèle initial, seule la couche des SIM a été conservée (couche n°2 du MSAG). Cette couche a fait l'objet d'un découpage selon un axe nord-sud (illustration 28). Une charge égale à la charge initiale, équilibrée en régime permanent, a été imposée à cette nouvelle limite du modèle. Cette simplification est rendue nécessaire pour la réalisation des simulations hydrodispersives, réalisées par la suite (cf.

partie 4.2.3). Toutefois, ces simplifications empêchent tout échange avec les épontes sous-jacentes et sus-jacentes, et nous veillerons donc à ce qu'elles ne modifient pas significativement les directions d'écoulement au sein des SIM et les gradients de charges (qui importent plus que la valeur des charges elles-mêmes) dans notre zone d'intérêt, c'est-à-dire dans la zone proche des stockages et du forage de Nogaro 2.

Le modèle ainsi conçu couvre une superficie de l'ordre de 100 km par 100 km. En outre, les données d'entrée du modèle initial (volumes de gaz injectés et soutirés, prélèvements d'eau) sont intégrées à ce nouveau modèle, ainsi que les paramètres hydrodynamiques issus de la calibration du modèle initial.

La base de la molasse a été représentée, dans ce modèle, sous la forme de deux couches de faible épaisseur (5 m chacune) sus-jacentes aux SIM et, dans la configuration de référence, d'égales extensions géographiques par rapport à ces derniers : il a été pris pour hypothèse l'existence d'une couche argileuse directement en contact avec les SIM et d'une couche sableuse sus-jacente, toutes deux étant destinées à représenter les échanges hydrodynamiques susceptibles de se produire avec les SIM (illustration 29). **NB.** : dans ce modèle conceptuel n°1 (présence de gypse au sein de la base molasse argilo-sableuse), seule la partie basale de la formation molassique a été modélisée et non la molasse dans son entièreté (voir Illustration 30).

En l'absence de mesures piézométriques permettant de les qualifier, la charge piézométrique initiale des deux couches ajoutées au modèle est considérée égale à celle des SIM.

Nous simulons un régime permanent, puis un régime transitoire, pour la période pour laquelle la calibration du modèle MSAG a été réalisée, c'est-à-dire de 1976 à 2000 (avec les chroniques d'injection des deux stockages de gaz), et selon la même procédure que celle mise en place pour le modèle MSAG (Seguin, 2003).

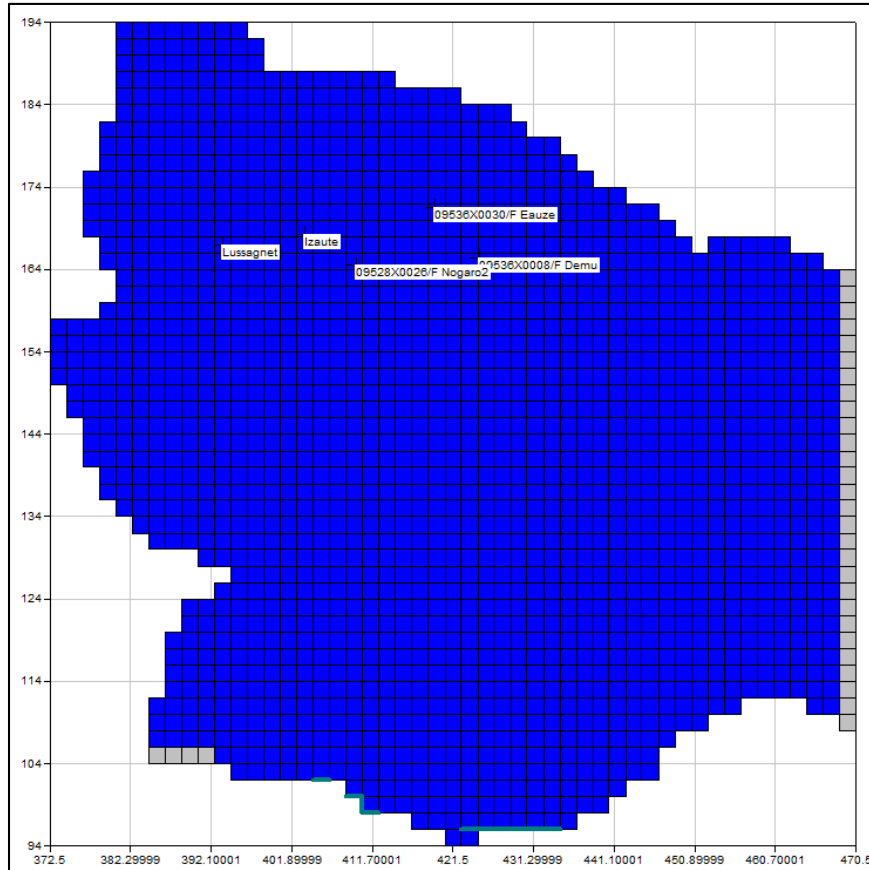


Illustration 28 - Extraction du modèle MSAG ; couche des SIM et conditions aux limites

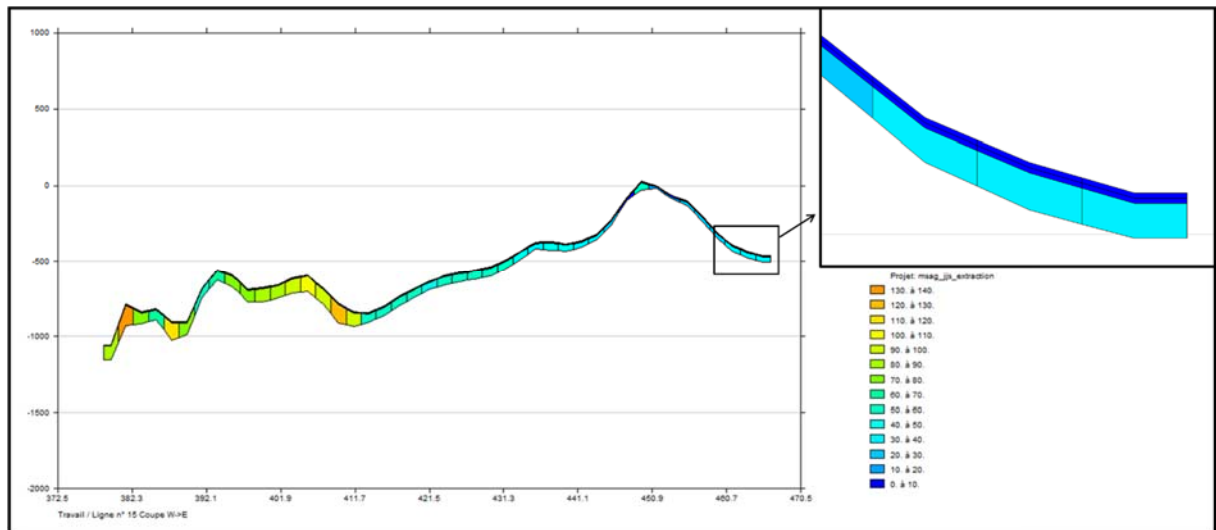


Illustration 29 - Vue ouest-est en coupe du modèle utilisé ; l'échelle de couleur correspond à l'épaisseur des différentes couches

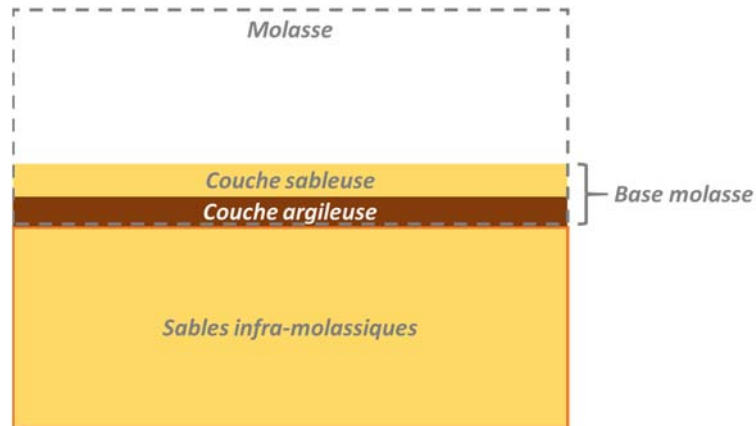


Illustration 30 - Présentation schématique du modèle conceptuel n°1 : les formations et couches considérées dans la modélisation hydrodynamique sont les couches de couleurs

Nous nous intéressons particulièrement au forage de Nogaro 2, puisque l'objectif de cette étude est de comprendre les concentrations en sulfate mesurées dans cet ouvrage.

Pour la configuration dite de référence, sont considérées des perméabilités<sup>6</sup> de  $10^{-10}$  m/s pour la couche argileuse et de  $10^{-5}$  m/s pour la couche sableuse. La valeur considérée pour la perméabilité de la couche argileuse a été choisie au regard des incertitudes existantes concernant la perméabilité des formations molassiques : comme précisé dans le rapport GAIA RP-65498-FR (Wuilleumier et Douez, 2016), dédié à l'inter-comparaison des modèles hydrodynamiques existants pour les aquifères profonds du sud du Bassin aquitain, les deux modèles à disposition (modèles MSIM et MSAG) proposent au droit de la zone d'intérêt du présent rapport, des perméabilités des formations molassiques de  $10^{-9}$  m/s (modèle MSIM) et de  $10^{-12}$  m/s (modèle MSAG), en dehors d'une zone située dans le coin est/nord-est de la couche et pour laquelle une perméabilité de  $10^{-8}$  m/s a été adoptée. Notons qu'une analyse de sensibilité est menée sur cette valeur en section 4.2.2, et que l'objectif du travail présenté dans les sections suivantes est d'estimer les valeurs des paramètres hydrodynamiques (possiblement locales) qui permettraient d'expliquer les observations faites concernant les teneurs en sulfate.

En termes de coefficient d'emmagasinement spécifique<sup>7</sup>, une valeur initiale de  $10^{-6}$  m<sup>-1</sup> pour les deux couches ajoutées est choisie (c'est la valeur calée pour la grande majorité des SIM dans le modèle MSAG).

Les charges dans les SIM au niveau de plusieurs ouvrages du secteur, dont les forages d'injection/soutirage de gaz, sont tracées à l'illustration 31. Afin de vérifier que les simplifications faites par rapport au modèle initial ne modifient pas les amplitudes et directions des écoulements, nous comparons les résultats des deux modèles, de la façon suivante :

<sup>6</sup> La terminologie adoptée dans ce rapport est détaillée dans le rapport RP-64850-FR du projet GAIA (Wuilleumier et al., 2015) : on désigne alors par le terme de « perméabilité », la perméabilité dite de Darcy, appelée également parfois coefficient de perméabilité ou encore conductivité hydraulique.

<sup>7</sup> La terminologie adoptée dans ce rapport est détaillée dans le rapport RP-64850-FR du projet GAIA (Wuilleumier et al., 2015) : on désigne alors par le terme de « coefficient d'emmagasinement spécifique » (pour les nappes captives), dont l'unité est en m<sup>-1</sup>, la quantité d'eau libérée par un cube aquifère d'un mètre carré de section et un mètre d'épaisseur saturée pour une baisse d'un mètre du niveau piézométrique.

1. les charges calculées au droit de Nogaro 2, avec le modèle initial et avec ce modèle simplifié ;
2. les différences entre les charges calculées dans le forage de Nogaro 2 et celles calculées ailleurs dans la zone d'étude : ces différences de charges sont des indicateurs de la cohérence, entre les deux modèles, des directions d'écoulements autour du forage de Nogaro 2. Ces différences de charges sont cartographiées à différentes dates, dans le secteur d'intérêt, pour la suite de l'étude (illustration 32). Les chroniques temporelles des différences de charge avec les deux forages d'injection/soutirage (Lussagnet et Izaute) sont également fournies à l'illustration 33.

Ces comparaisons montrent que les charges absolues calculées par les deux modèles au puits Nogaro 2 ne sont pas identiques et qu'un biais significatif existe notamment entre le début des simulations et l'année 1985 environ. En termes de différences de charges entre le forage de Nogaro 2 et les deux puits d'injection/soutirage de gaz, l'adéquation entre les deux modèles est bien meilleure, et ce sur toute la durée des simulations, ce qui signifie que les écoulements calculés entre ces ouvrages ne sont pas modifiés en profondeur par la simplification du modèle. La comparaison spatiale des différences de charges, faite pour la période post-1985, au niveau de la zone d'intérêt, montre également que les écoulements autour de Nogaro 2 sont correctement simulés dans cette zone.

Ces différentes comparaisons entre les résultats du modèle initial et ceux du modèle simplifié autorisent donc l'utilisation des résultats du modèle simplifié (que ce soit en matière d'hydrodynamique ou de transport de masse) pour la période post-1985, de manière à ne pas être influencé par le biais existant entre les deux modèles au démarrage des simulations.

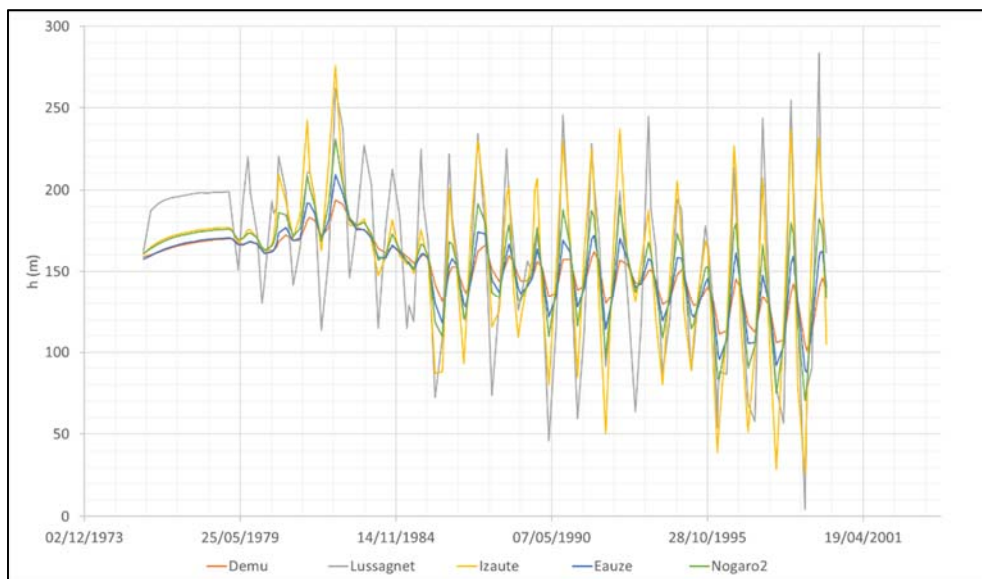


Illustration 31 - Charge hydraulique dans les SIM au niveau de différents ouvrages

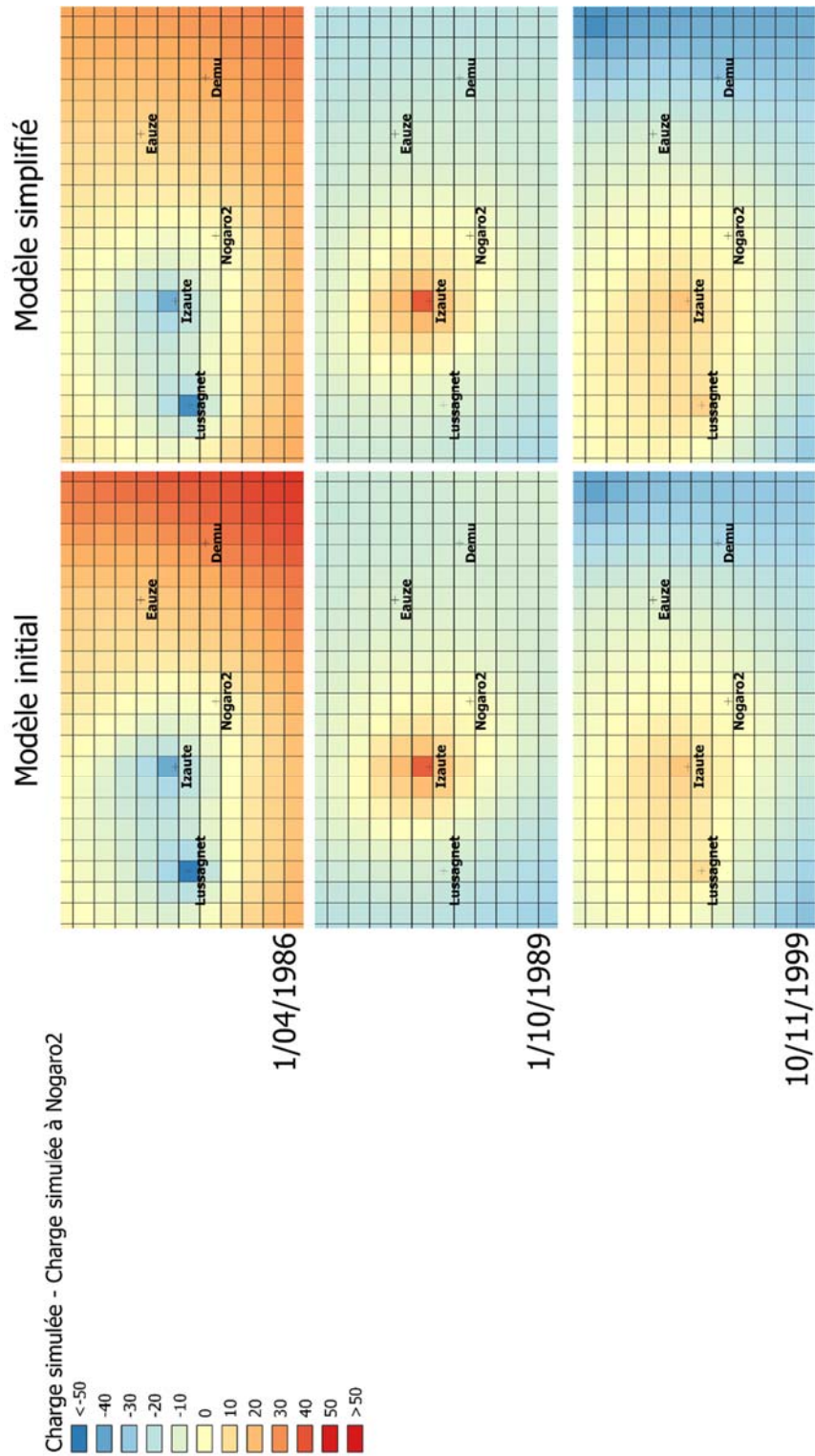


Illustration 32 - Carte des différences de charges entre les charges calculées à Nogaro 2 et celles calculées ailleurs dans le secteur d'intérêt : comparaison entre les cartes produites à partir du modèle initial et celles produites à partir du modèle simplifié, pour trois dates différentes

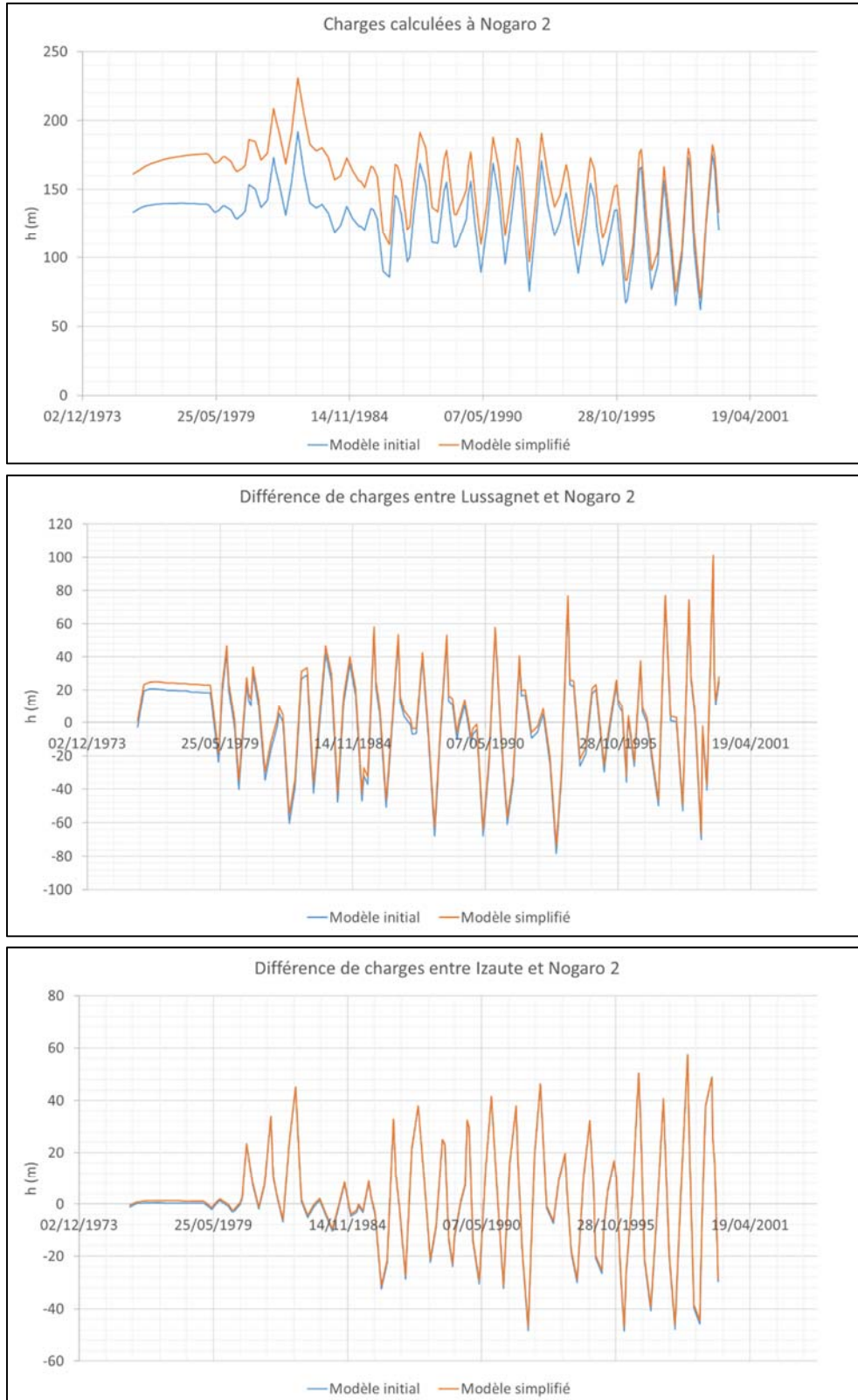


Illustration 33 - Comparaison entre les résultats du modèle initial et ceux du modèle simplifié : charges calculées à Nogaro 2 (haut), différence de charges entre Lussagnet et Nogaro 2 (milieu), différence de charges entre Izaute et Nogaro 2 (bas)

Les charges au droit de Nogaro 2 dans les SIM et dans les deux couches sus-jacentes sont tracées à l'illustration 34 : on remarque que les impacts hydrauliques des stockages dans les SIM sont très nettement transmis à la lentille sableuse de base molasse malgré la présence d'une couverture argileuse de faible perméabilité. Les différences de charges entre les deux couches de sables n'excèdent pas 10 m, pour des variations de charge dans les SIM pouvant atteindre 100 m.

Les débits échangés au niveau de la maille, dans laquelle est situé le forage de Nogaro 2, sont fournis à l'illustration 35. Les débits les plus importants sont de 60 m<sup>3</sup>/j environ, pour une maille de 4 km<sup>2</sup> de surface, ce qui fait une vitesse de drainage de  $1,5 \times 10^{-5}$  m/j, soit 5,5 mm/an. On voit que les débits sont faibles mais suffisants pour transmettre les charges ; ces échanges vont également permettre un transfert des sulfates depuis le niveau sableux de la base de la molasse.

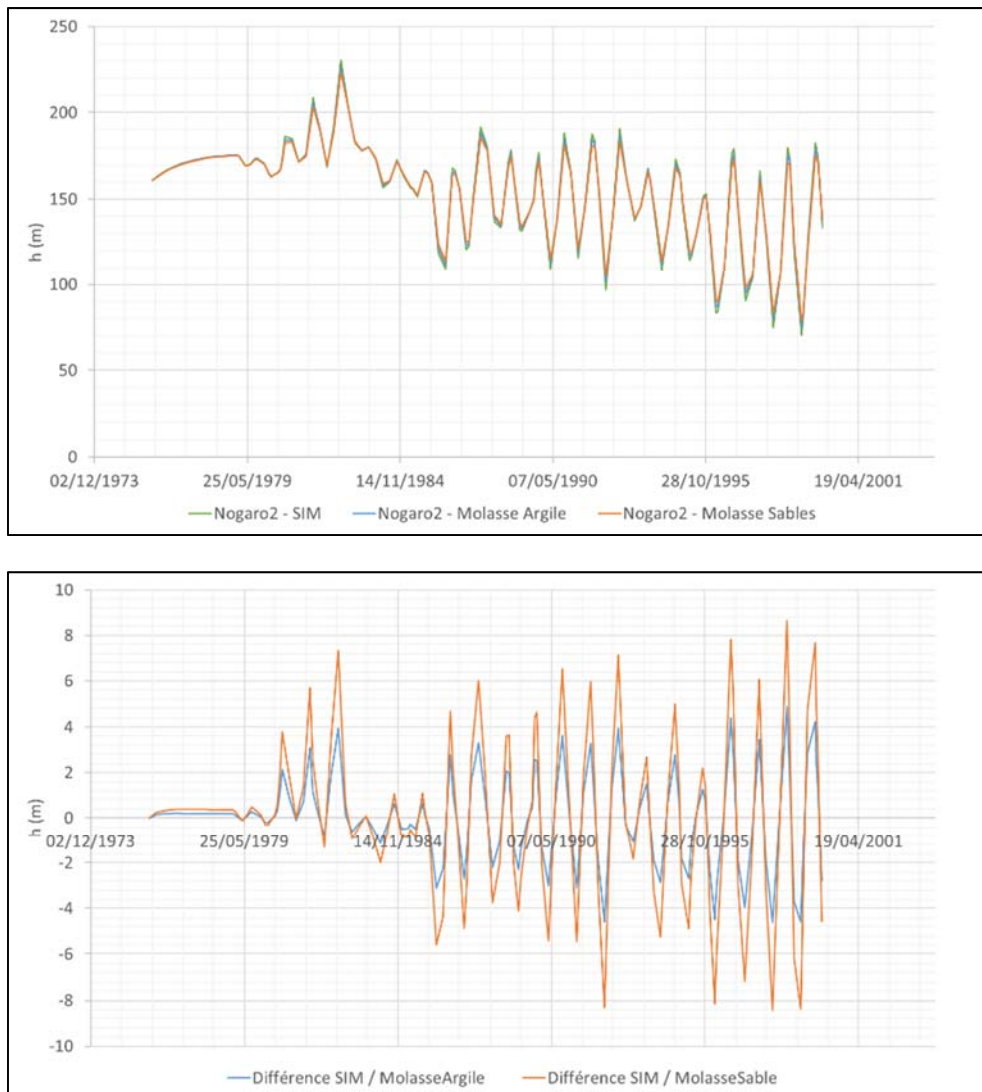


Illustration 34 - [Haut] Charge hydraulique au droit de Nogaro 2, dans les SIM et dans les deux couches sus-jacentes représentant la molasse / [Bas] Différence de charge entre les SIM et chacune des couches de la base molasse



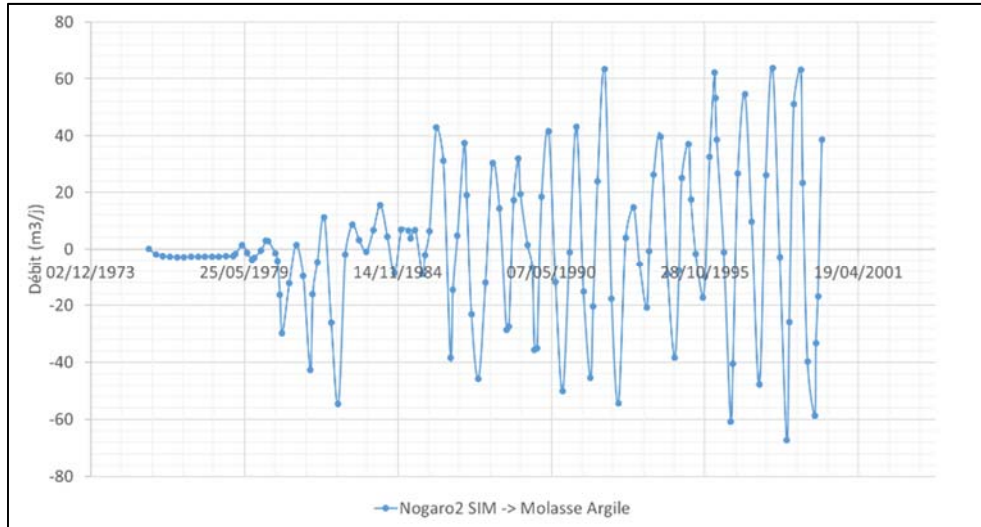


Illustration 35 - Débit de drainage entre les SIM et la base molasse

#### 4.2.2. Modélisation hydrodynamique : analyse de sensibilité

Nous effectuons quelques tests de sensibilité pour mieux cerner le fonctionnement hydrodynamique du système représenté.

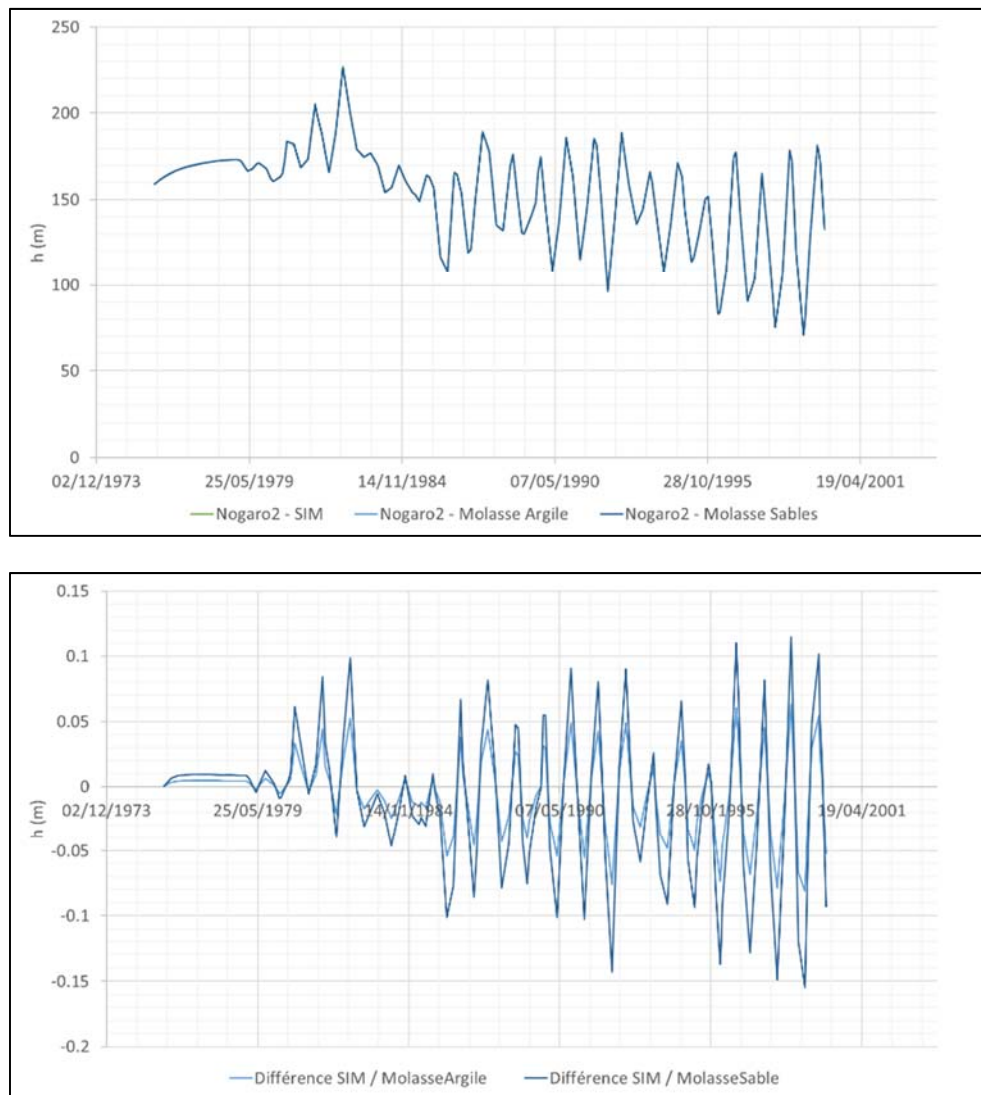
##### ***Perméabilité de la couche argileuse de base molasse***

On a vu qu'une perméabilité de la zone argileuse de  $10^{-10}$  m/s permet une drainage suffisante pour que l'effet des stockages dans les SIM se fasse ressentir directement au niveau des charges de la lentille sableuse sus-jacente. Les oscillations des charges dans cette zone sableuse sont d'amplitude légèrement inférieure à celles mesurées dans les SIM.

Si on choisit des perméabilités plus fortes, l'augmentation des flux de drainage entraîne une diminution des différences de charge entre SIM et lentille sableuse de base molasse : les résultats de nouvelles simulations, considérant des perméabilités de la couche argileuse de la base molasse de  $10^{-8}$  et  $10^{-9}$  m/s, sont fournis à l'illustration 36 et à l'illustration 37.

Si on choisit maintenant une perméabilité de la zone argileuse de  $10^{-11}$  m/s, on a une variation de charge toujours visible mais bien moindre dans les sables sus-jacents (illustration 38). Il faut descendre à  $10^{-12}$  m/s pour que les échanges ne permettent quasi plus de variations de charge dans la lentille sableuse (illustration 39).

**NB.** L'épaisseur de la couche argileuse joue un rôle, inverse à celui de la perméabilité, dans les échanges de drainage. L'illustration 40 montre les différences de charge entre les SIM et chacune des couches de la base molasse, pour un cas où l'épaisseur de la couche argileuse serait de 2 m et un autre où elle serait de 20 m. On rappelle que l'épaisseur de la couche argileuse mentionnée dans ce paragraphe ne doit pas être confondue avec l'épaisseur de la molasse, puisque seule la partie basale de la formation molassique a été modélisée dans le cadre de cette étude et non la molasse dans son entièreté.



*Illustration 36 - Simulation avec une perméabilité de la couche argileuse de la base molasse de  $10^{-8}$  m/s [Haut] Charge hydraulique au droit de Nogaro 2, dans les SIM et dans les deux couches sus-jacentes représentant la molasse / [Bas] Différence de charge entre les SIM et chacune des couches de la base molasse*

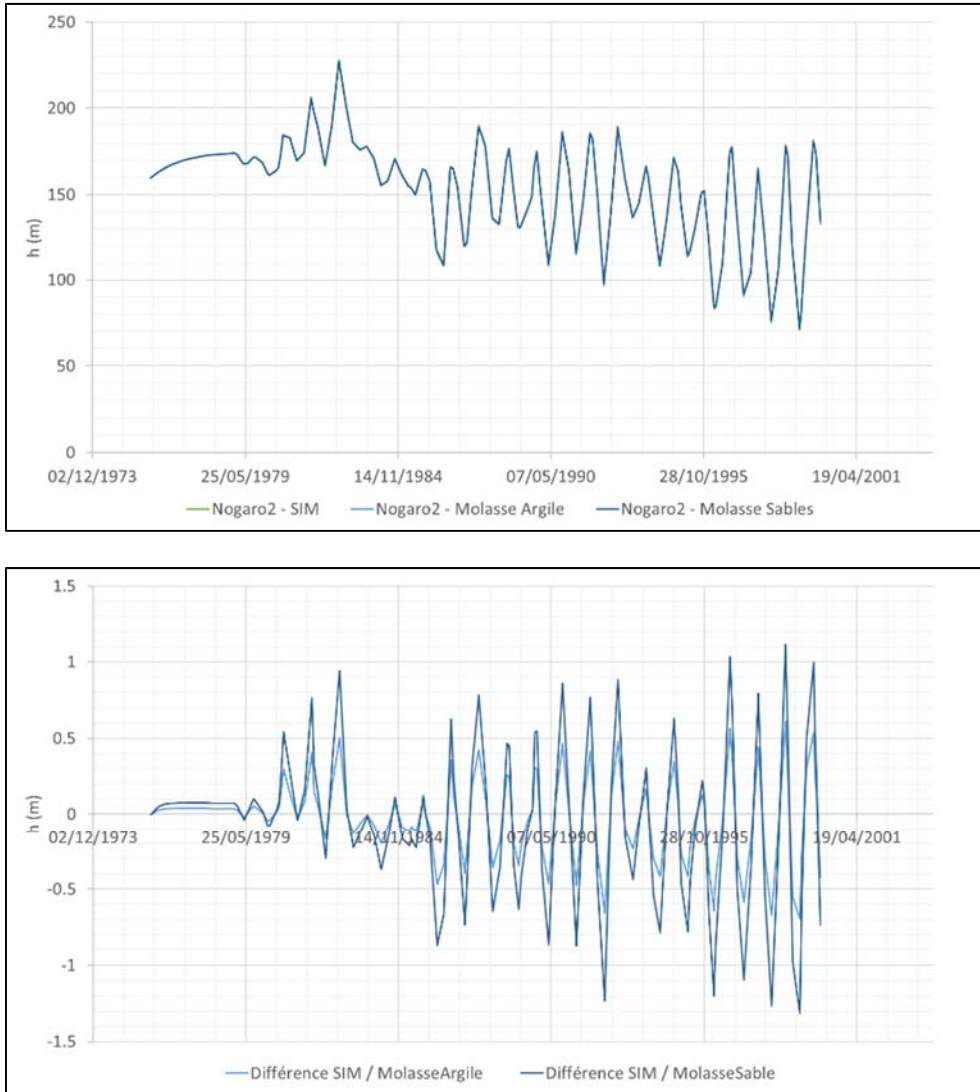


Illustration 37 - Simulation avec une perméabilité de la couche argileuse de la base molasse de  $10^{-9}$  m/s  
 [Haut] Charge hydraulique au droit de Nogaro 2, dans les SIM et dans les deux couches sus-jacentes  
 représentant la molasse / [Bas] Différence de charge entre les SIM et chacune des couches  
 de la base molasse

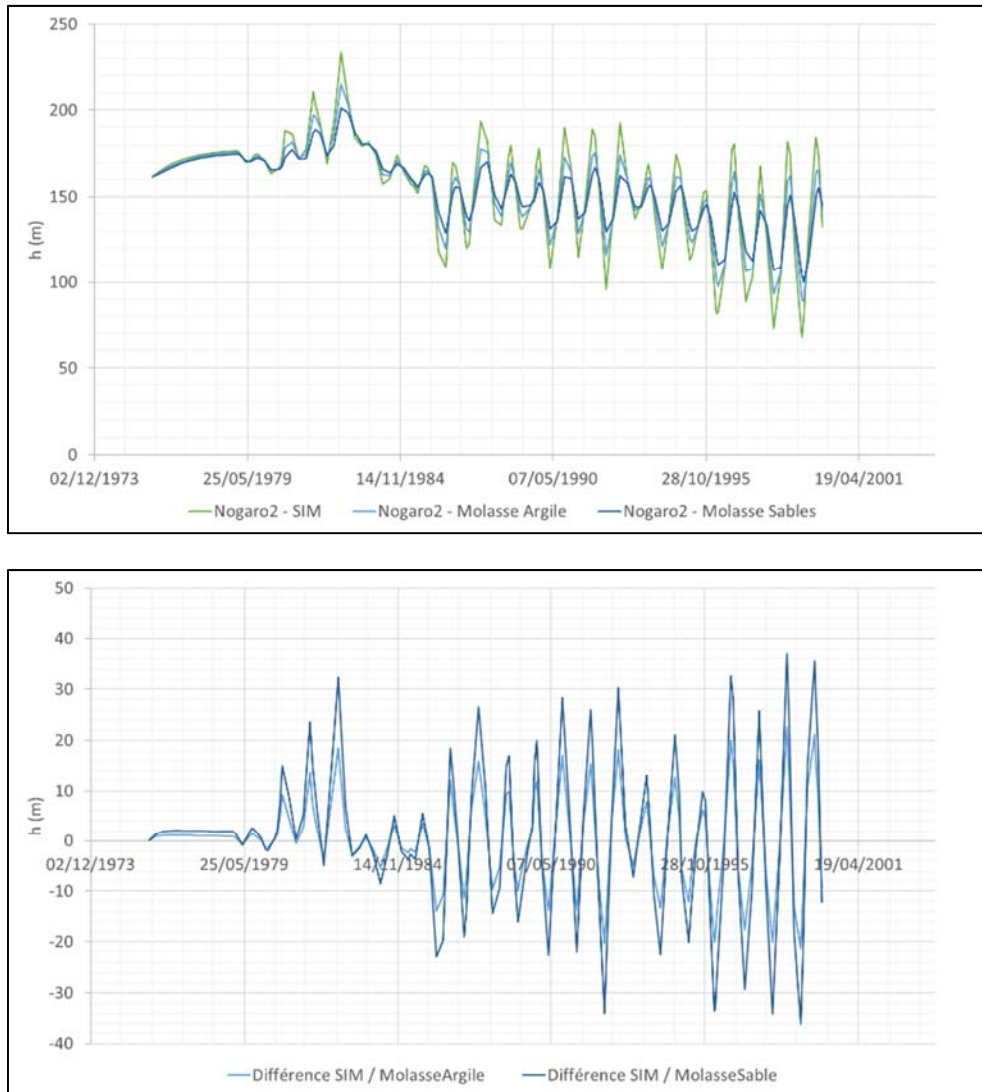


Illustration 38 - Simulation avec une perméabilité de la couche argileuse de la base molasse de  $10^{-11}$  m/s  
[Haut] Charge hydraulique au droit de Nogaro 2, dans les SIM et dans les deux couches sus-jacentes  
représentant la molasse / [Bas] Différence de charge entre les SIM et chacune des couches  
de la base molasse

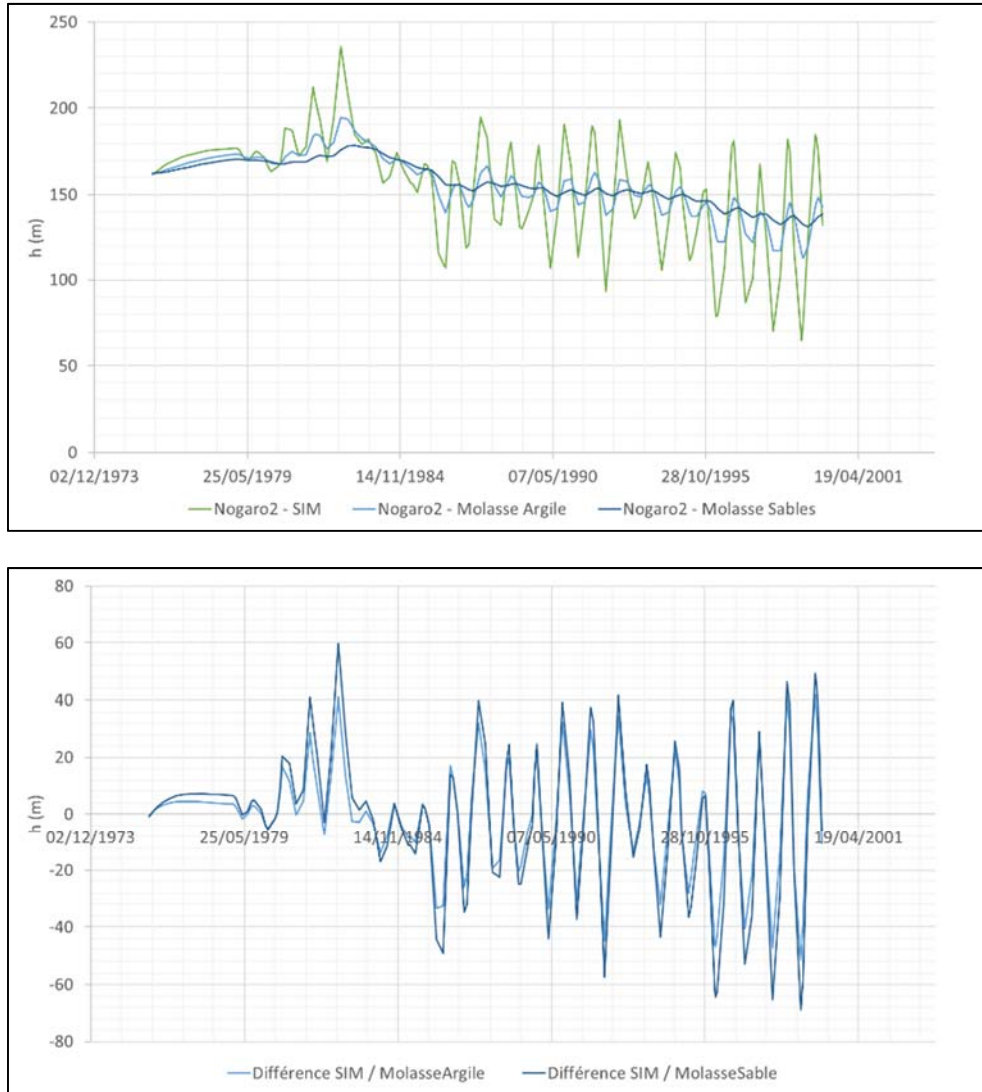


Illustration 39 - Simulation avec une perméabilité de la couche argileuse de la base molasse de  $10^{-12}$  m/s  
 [Haut] Charge hydraulique au droit de Nogaro 2, dans les SIM et dans les deux couches sus-jacentes  
 représentant la molasse / [Bas] Différence de charge entre les SIM et chacune des couches  
 de la base molasse

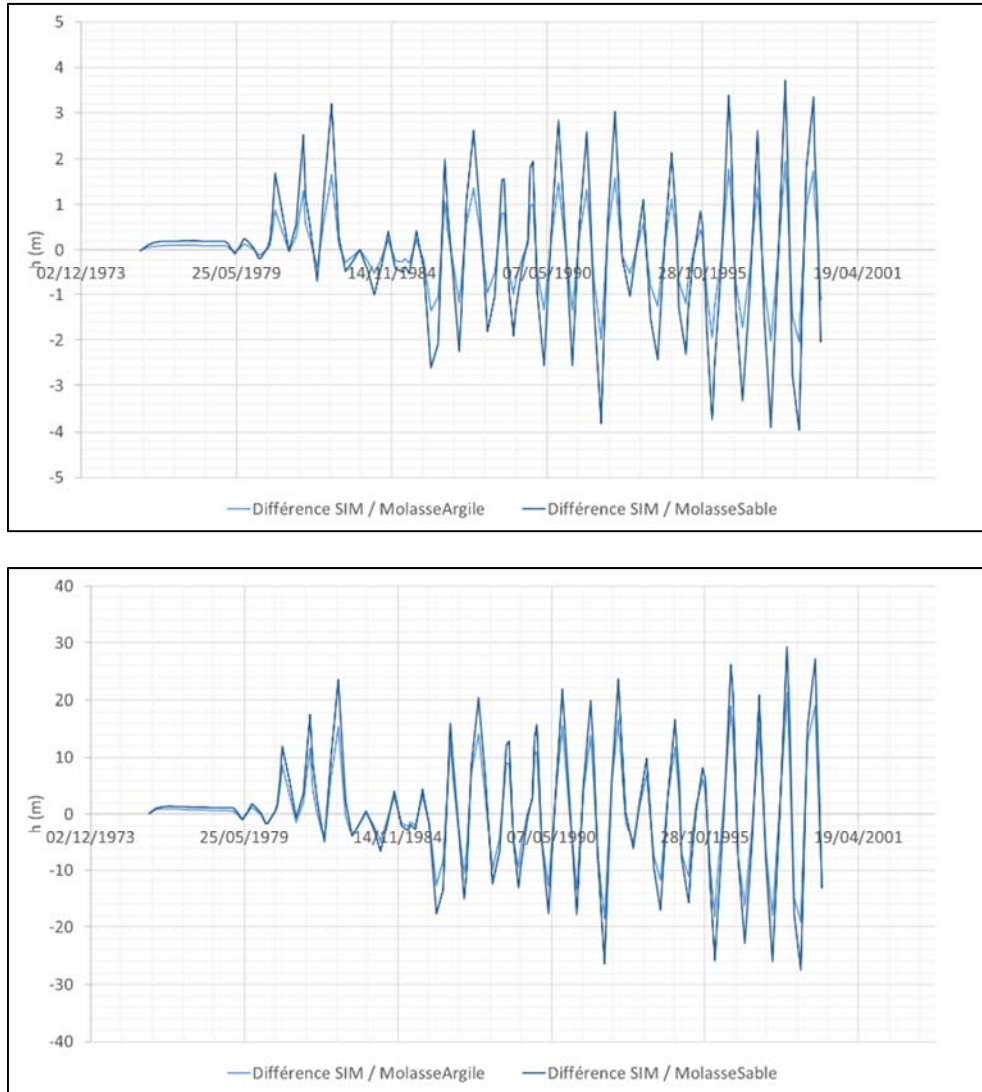
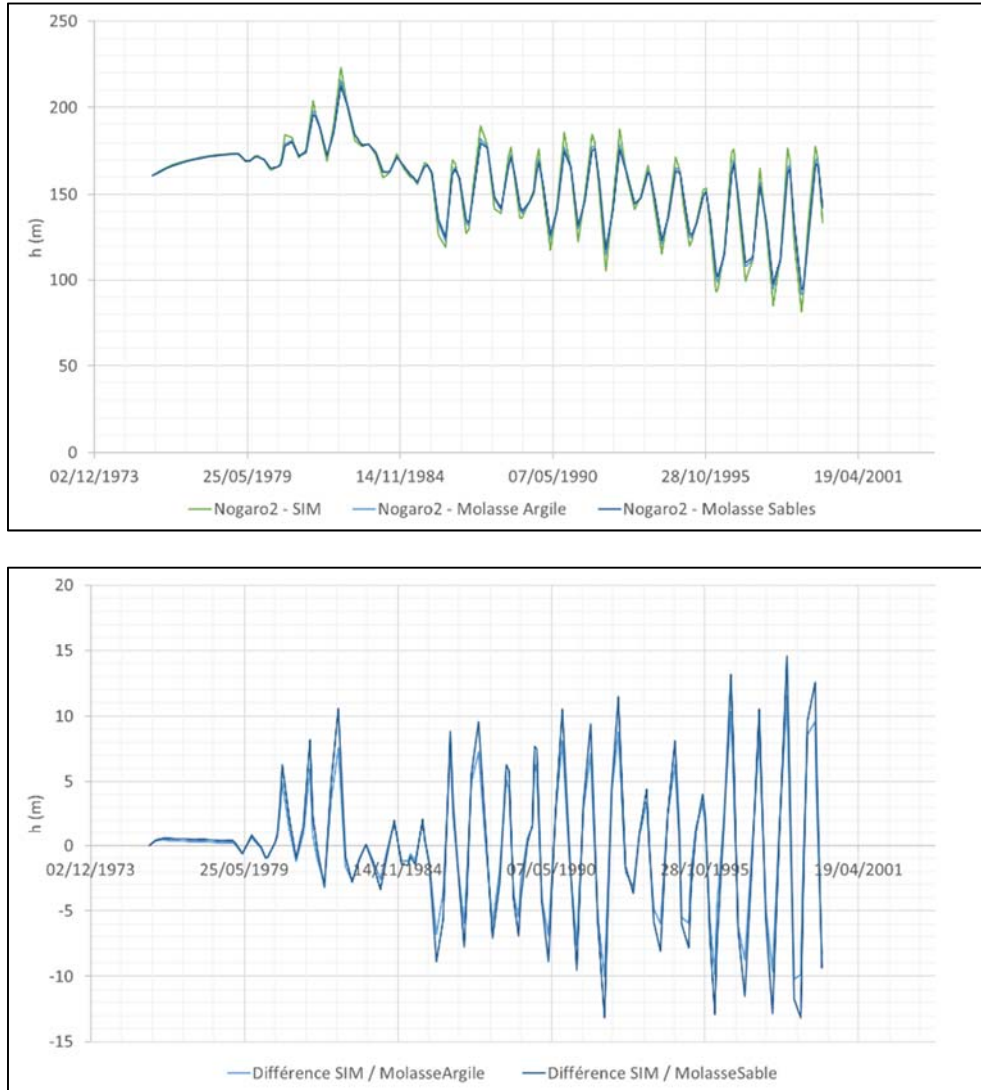


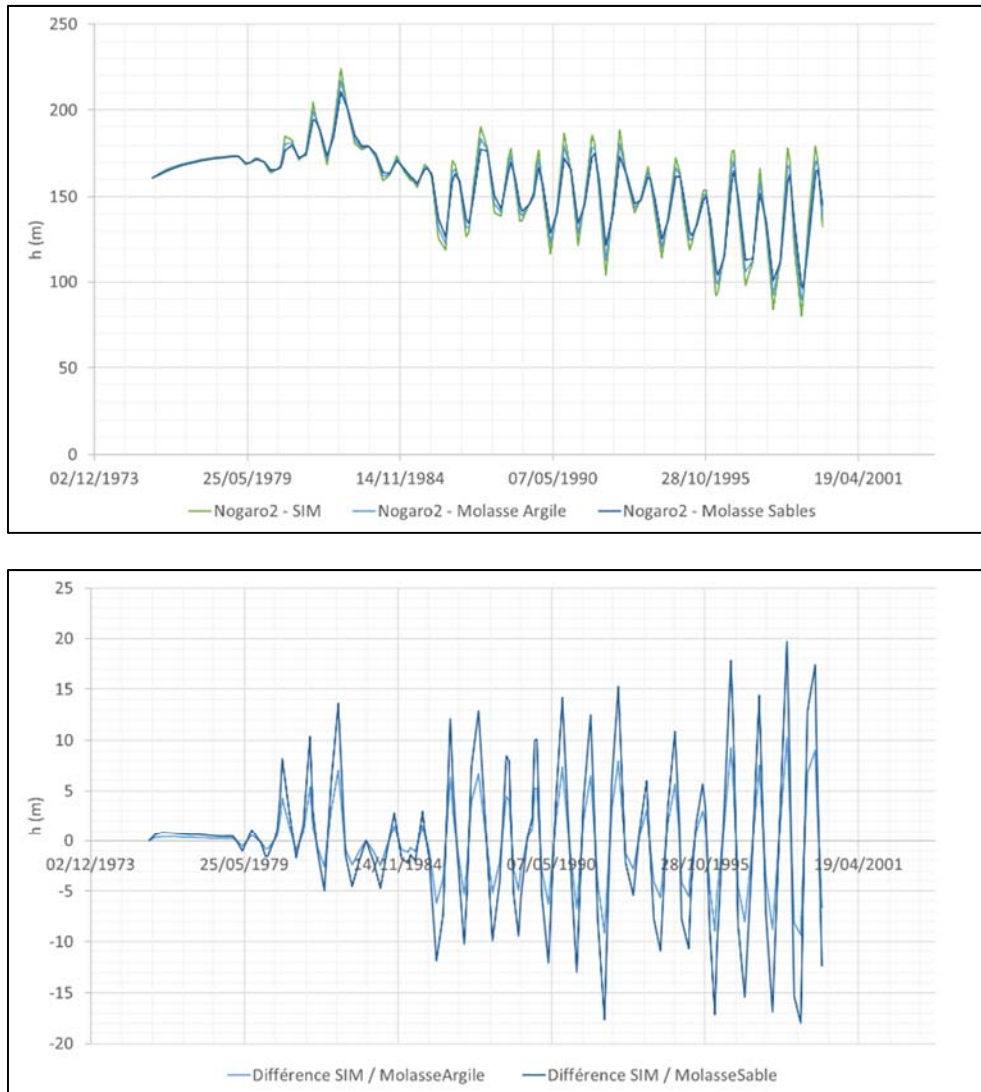
Illustration 40 - Différence de charge entre les SIM et chacune des couches de la base molasse pour la configuration de référence avec variation de l'épaisseur de la couche argileuse : [Haut] 2m / [Bas] 20m

### **Coefficient d'emmagasinement des formations de la base molasse**

Restant avec une perméabilité de la zone argileuse à  $10^{-10}$  m/s, on regarde l'effet d'un coefficient d'emmagasinement plus important ( $10^{-5}$  m<sup>-1</sup>) dans la zone argileuse ou bien dans la zone sableuse. Logiquement, dans les deux cas, les variations de pression sont un peu plus faibles dans la lentille sableuse de base molasse, du fait d'une plus forte capacité de stockage des deux zones concernées (illustration 41 et illustration 42).



*Illustration 41 - Simulation avec un coefficient d'emmagasinement spécifique de la couche argileuse de la base molasse de  $10^{-5}$  m<sup>-1</sup> [Haut] Charge hydraulique au droit de Nogaro 2, dans les SIM et dans les deux couches sus-jacentes représentant la molasse / [Bas] Différence de charge entre les SIM et chacune des couches de la base molasse*



*Illustration 42 - Simulation avec un coefficient d'emmagasinement spécifique de la couche sableuse de la base molasse de  $10^{-5} m^{-1}$  [Haut] Charge hydraulique au droit de Nogaro 2, dans les SIM et dans les deux couches sus-jacentes représentant la molasse / [Bas] Différence de charge entre les SIM et chacune des couches de la base molasse*

### **Extension de la lentille sableuse de base molasse**

L'effet d'une couche sableuse, située à la base de la molasse et qui serait moins étendue, est ensuite évalué : dans une nouvelle configuration, cette couche est modifiée en une « lentille » sableuse isolée hydrauliquement au niveau de ses limites latérales et d'une superficie de  $4 \text{ km}^2$  (voir Illustration 43). Les limites étanches autour de la zone sableuse isolée entraînent une montée en charge bien plus rapide de la lentille sableuse et des différences avec les SIM moindres que lorsque l'extension était importante (illustration 44).



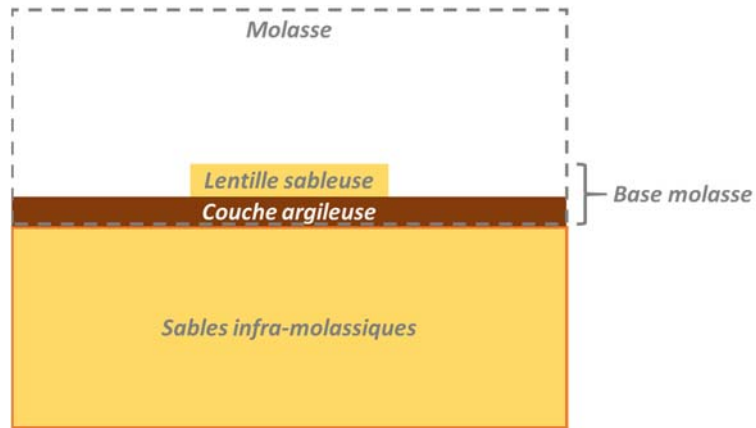


Illustration 43 - Présentation schématique du modèle conceptuel n°1 avec la configuration « lentille sableuse isolée »

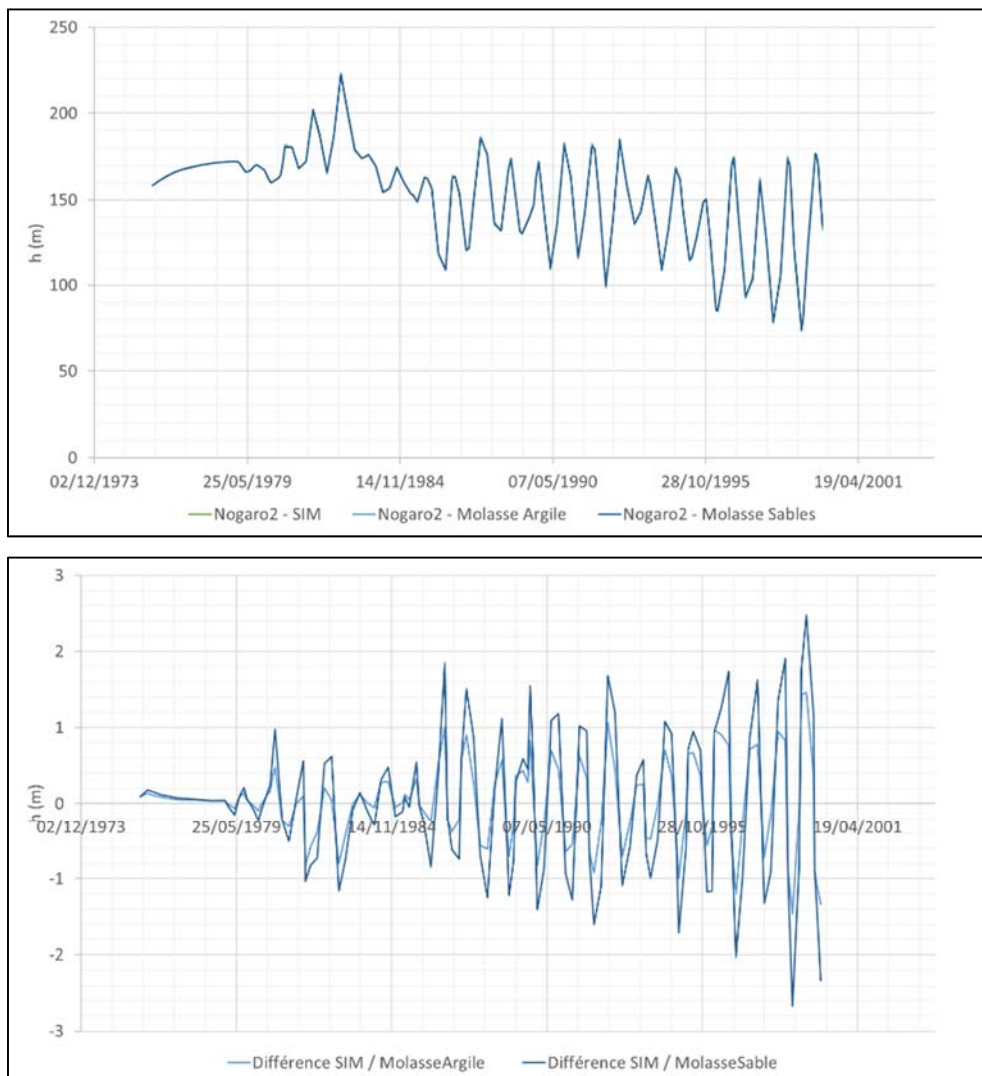


Illustration 44 - Simulation avec une extension limitée de la lentille sableuse [Haut] Charge hydraulique au droit de Nogaro 2, dans les SIM et dans les deux couches sus-jacentes représentant la molasse / [Bas] Différence de charge entre les SIM et chacune des couches de la base molasse

### 4.2.3. Modélisation par transport de masse

Le modèle hydrodynamique étant établi (parties 4.2.1 et 4.2.2), on introduit localement au droit du forage de Nogaro 2 une concentration importante (symbolisant une teneur en sulfate importante) dans la couche sableuse de la base de la molasse et on simule le transport de masse en plus de l'hydrodynamique ; ceci passe par l'introduction d'une concentration initiale de 1 000 mg/l dans la lentille sableuse (cf. André, 2002 ; Malcuit, 2012), tandis qu'une concentration de 10 mg/l est considérée dans tout le reste du domaine (Illustration 45). La concentration de 1 000 mg/l correspond à une solution légèrement sous-saturée vis-à-vis du gypse, à une température de 40°C.

On choisit la méthode de résolution dite TVD, de sorte à diminuer, au maximum, la dispersion numérique.

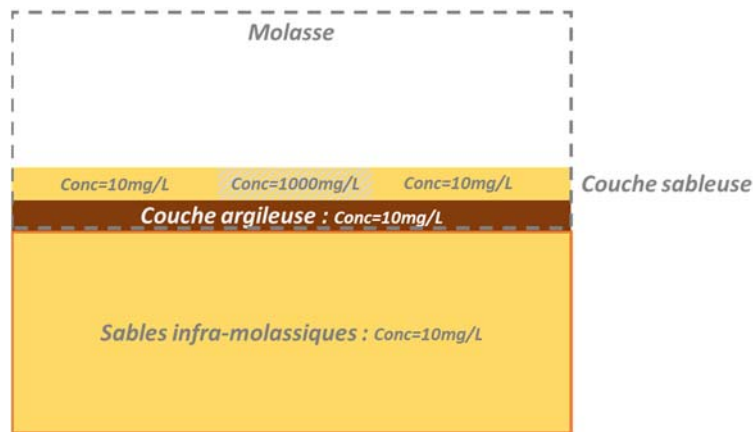


Illustration 45 - Présentation schématique du modèle conceptuel n°1, avec les concentrations initiales en sulfate considérées pour la modélisation par transport de masse

### Résultats de la configuration hydrodynamique de référence

Avec les paramètres par défaut (cf. section précédente pour les valeurs retenues), on observe dans les SIM une concentration qui reste autour de 10 mg/l (illustration 46) ; des fluctuations sont observées, mais leur amplitude est inférieure à 0,4 mg/l. Néanmoins, on se rend compte que ces fluctuations sont corrélées avec les variations de charge dans les SIM au droit de Nogaro 2, alors que c'est l'inverse qui est observé.

A titre de comparaison, la même simulation sans source de sulfate à 1 000 mg/l a été faite. Les résultats sont montrés à l'illustration 47 : on voit que les variations principales de la concentration ne proviennent pas de la source, mais d'instabilités numériques qui font varier la valeur de la concentration autour de 10 mg/l (dans cette nouvelle simulation, la concentration dans tout le domaine est à 10 mg/l et devrait le rester sans instabilité).

On se rend donc compte que, dans la configuration hydrodynamique de référence et avec les conditions initiales de concentration, les quantités de sulfate arrivant de la base molasse ne sont pas suffisantes pour avoir un impact significatif sur la concentration des SIM.

On peut voir deux raisons (potentiellement couplées) à cela :

- soit les flux chargés arrivant depuis la base molasse vers les SIM sont trop faibles, en comparaison avec les écoulements latéraux dans les SIM ;
- soit les sulfates arrivant ne se diluent pas sur toute la hauteur des SIM (stratification de la concentration), alors que les SIM sont représentés par une seule couche dans le modèle (ce qui suppose une dilution instantanée sur toute la hauteur de la formation).

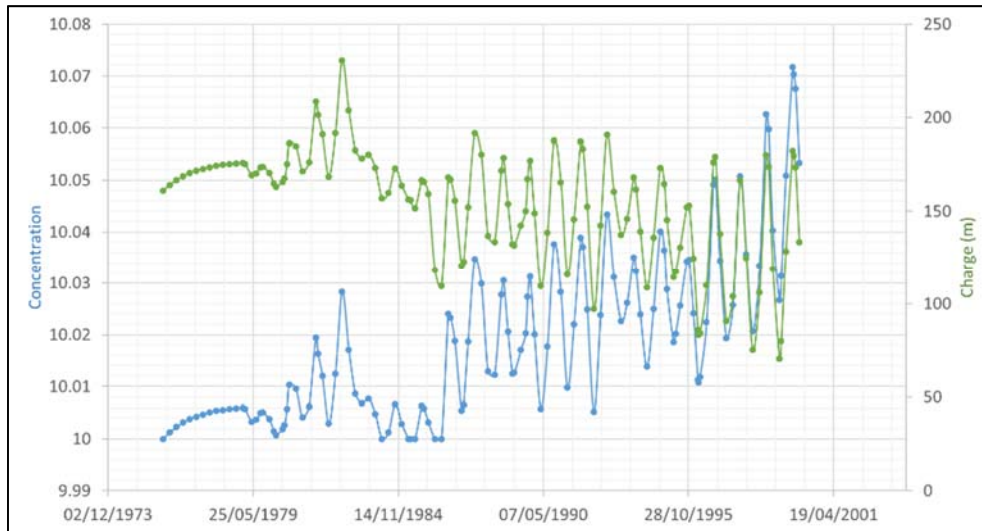


Illustration 46 - Concentration en sulfate (en mg/l) dans les SIM au droit de Nogaro 2, les charges hydrauliques au même point sont tracées également - configuration hydrodynamique de référence

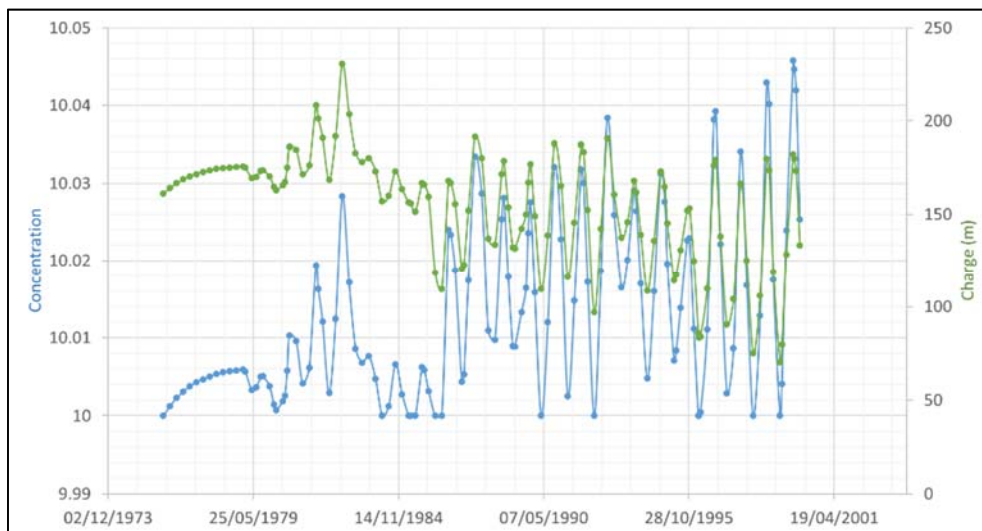


Illustration 47 - Concentration en sulfate (en mg/l) dans les SIM au droit de Nogaro 2, les charges hydrauliques au même point sont tracées également - configuration hydrodynamique de référence sans source de sulfate à 1 000 mg/l

### **Résultats avec des configurations hydrodynamiques qui maximisent les échanges par drainage**

Dans la suite, on propose donc de définir à partir des tests hydrodynamiques de la section précédente, une configuration maximisant les flux de drainage.

On choisit alors, les combinaisons de paramètres qui entraînaient les débits échangés les plus importants : on augmente d'un facteur 10 l'emménagement spécifique de la lentille sableuse, et on augmente la perméabilité de la couche argileuse au droit de Nogaro 2 (tout en conservant la perméabilité de la configuration de référence ailleurs) à  $10^{-7}$  m/s (au-delà, les augmentations de débits échangés sont faibles). Les résultats sont différents de ceux de la configuration par défaut, dans le sens où des concentrations plus fortes sont atteintes ; néanmoins, on observe une tendance générale à la hausse, ce qui n'est pas observé sur le terrain. Toutefois, on remarque une cyclicité, certes faible, mais anticorrélée avec les variations de charges piézométriques : pour un cycle donné, lorsque les niveaux piézométriques des SIM sont à la baisse, on a un transfert d'eau chargée en sulfate depuis la lentille sableuse vers les SIM (la concentration augmente), puis lorsque les niveaux sont à la hausse, on a un transfert inverse d'eau moins chargée (la concentration baisse).

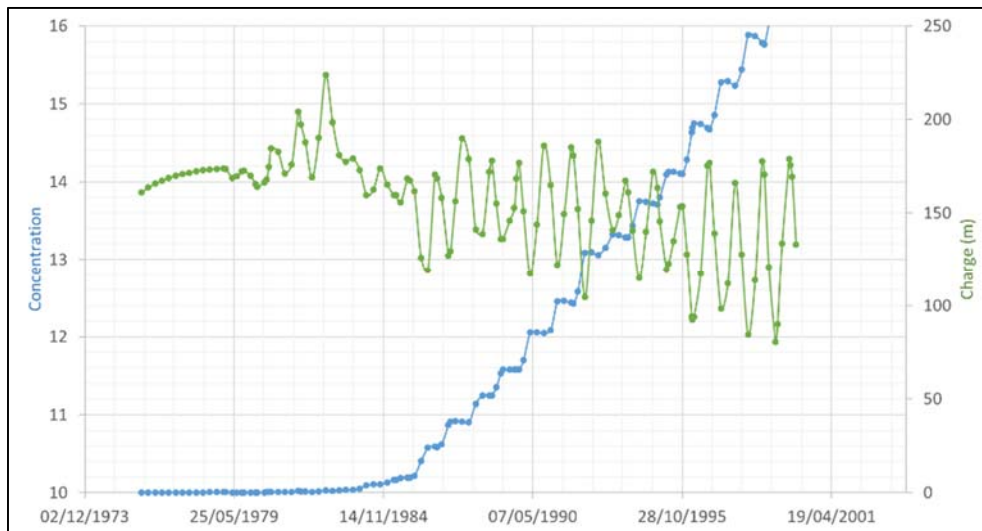


Illustration 48 - Concentration en sulfate (en mg/l) dans les SIM au droit de Nogaro 2 - configuration hydrodynamique n°2 qui maximise les échanges par drainage

### **Résultats de la configuration hydrodynamique qui maximise les échanges par drainage, avec prise en compte des phénomènes de dispersion**

Les résultats de la section précédente ont été obtenus sans considération des phénomènes de diffusion/dispersion. La même configuration (maximisant les échanges par drainage) a donc été simulée en introduisant la dispersion, afin d'estimer les conséquences de cette prise en compte.

Concernant le choix des dispersivités à considérer dans les simulations, il est important de signaler que nous nous intéressons principalement ici aux déplacements par drainage à travers la base molasse. Les couches sableuses et argileuses de base molasse ayant une épaisseur de 5 m, nous proposons de retenir, comme ordre de grandeur, des déplacements verticaux de cette valeur. Une valeur de dispersivité longitudinale de 0,5 m peut alors être considérée en première

approximation (correspondant à  $\sim 1/10$  des déplacements verticaux), associée à une dispersivité transversale de 0,05 m ( $\sim 1/10$  de la dispersivité longitudinale).

La comparaison des résultats obtenus avec et sans prise en compte de la dispersion est réalisée à l'illustration 49 : la prise en compte de la dispersion a comme conséquence, dans cette configuration, de maximiser les transferts de sulfate vers les SIM (la concentration est de l'ordre de 15% plus élevée en fin de simulation) ; toutefois, les concentrations en sulfate restent du même ordre de grandeur, et, surtout, leur évolution dans le temps (phases d'augmentation, vs. phases de baisse des concentrations en sulfate) n'est pas significativement différente. Au vu des incertitudes sur le choix des paramètres de dispersivité à prendre en compte et de l'impact modéré de la dispersion, nous décidons de mener les modélisations suivantes du transport de masse sans dispersion.

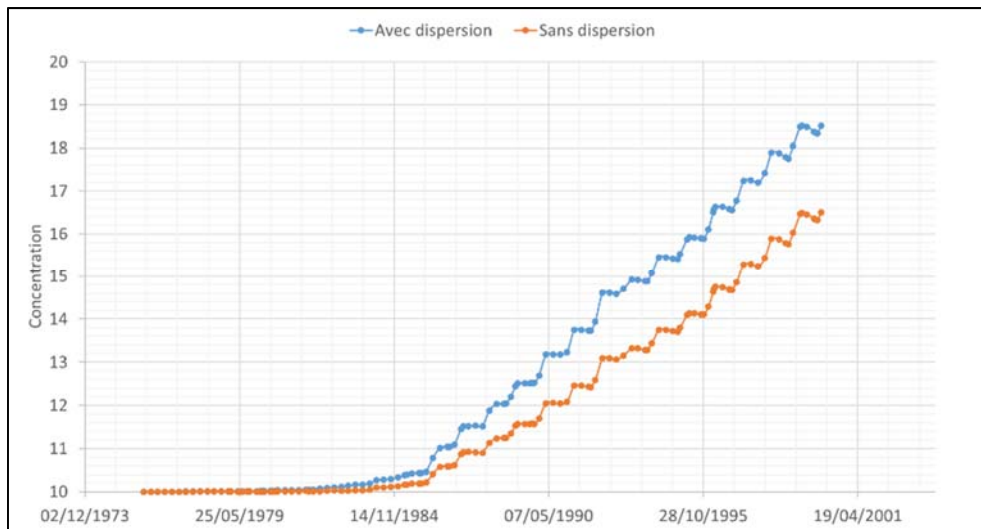


Illustration 49 - Concentration en sulfate (en mg/l) dans les SIM au droit de Nogaro 2 utilisant la configuration hydrodynamique qui maximise les échanges par drainance : transport de masse avec et sans prise en compte de la dispersion

### Résultats avec une discrétisation de la couche des SIM

Partant du constat qu'une augmentation des échanges par drainance seule ne permet pas de se rapprocher des observations faites, à partir des mesures en sulfate au droit du forage de Nogaro 2, on étudie l'éventualité que le modèle utilisé jusque-là amplifie les effets de dilution : les SIM n'étant pas discrétisés verticalement, toute masse transportée depuis la base molasse jusque dans cette couche est en effet immédiatement diluée dans un volume comprenant toute l'épaisseur de cette couche (hypothèse de mélange instantané).

Pour évaluer l'influence de cette hypothèse implicite, nous proposons de découper la couche des SIM en 2 couches aux mêmes propriétés pétrophysiques, la couche supérieure ayant une épaisseur de 5 m. On regarde ensuite les valeurs des concentrations obtenues par modélisation pour ces deux couches ; l'influence de l'hypothèse de mélange instantané sur toute la hauteur des SIM est d'autant plus importante que les concentrations obtenues pour ces deux couches sont différentes.

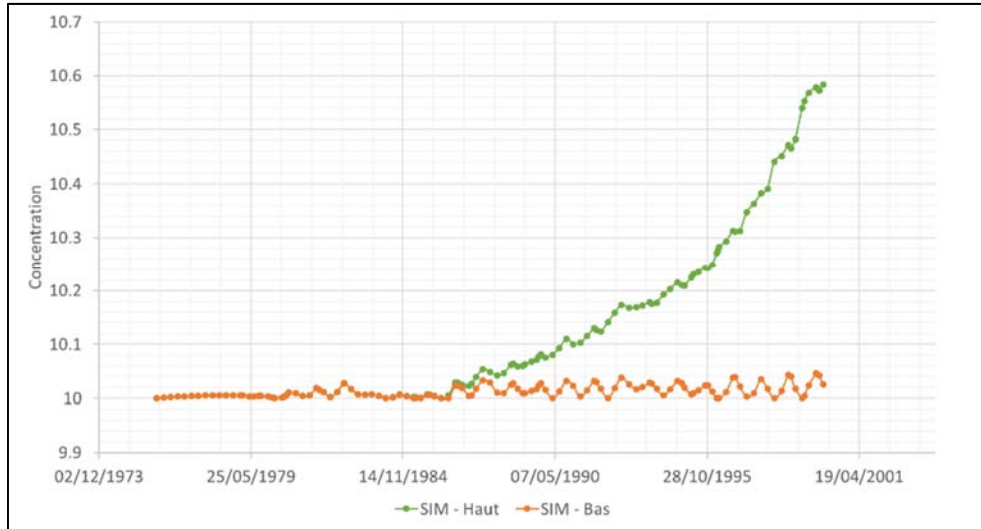


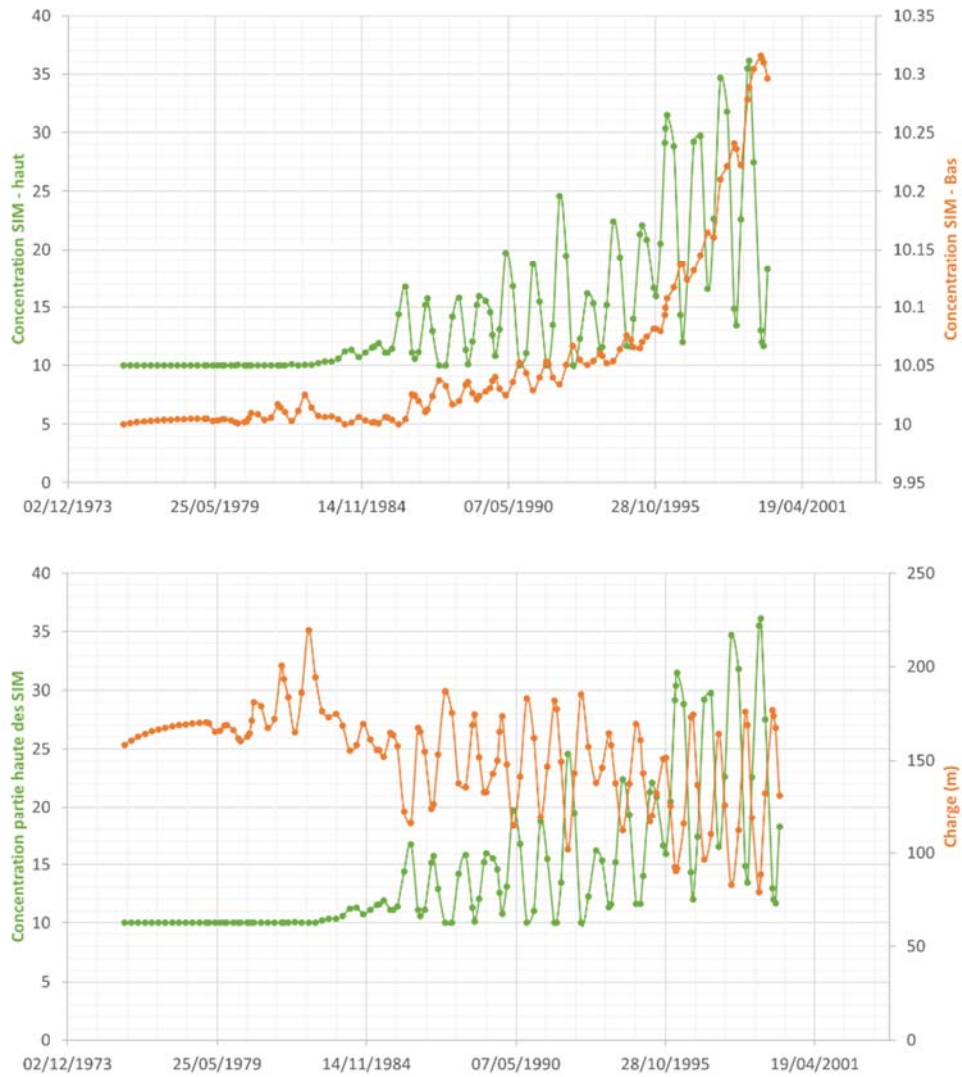
Illustration 50 - Concentration (en mg/l) dans les SIM au droit de Nogaro 2 - configuration hydrodynamique de référence ; les SIM sont divisés en deux sous-couches

L'illustration 50 montre clairement l'existence d'une stratification. On retrouve, dans la partie basse qui regroupe presque toute la couche des SIM (sauf les 5 premiers mètres), une évolution plutôt similaire à celle de l'illustration 46. En revanche pour la partie haute des SIM, on a une évolution à la hausse (évolution qui reste faible), comme pour les résultats montrés à l'illustration 48.

On essaie alors de maximiser les échanges par drainage (coefficient d'emmagasinement de la couche sableuse de base molasse à  $10^{-5} \text{ m}^{-1}$ , perméabilité de la couche argileuse de base molasse à  $10^{-7} \text{ m/s}$ ) tout en gardant cette discrétisation verticale. On retrouve alors des cycles aux amplitudes bien plus importantes, oscillant entre les valeurs initiales et des valeurs pouvant atteindre 30 mg/l (cf. illustration 51, amplitude de 20 mg/l). Les cycles observés sont bien anti-corrélés avec les charges simulées dans les SIM.

Il serait possible de maximiser les cycles en jouant sur la porosité cinématique des couches, notamment des SIM. Pour le moment nous l'avons considérée à 5 %, ce qui est faible et il ne semble pas pertinent d'abaisser encore cette valeur.

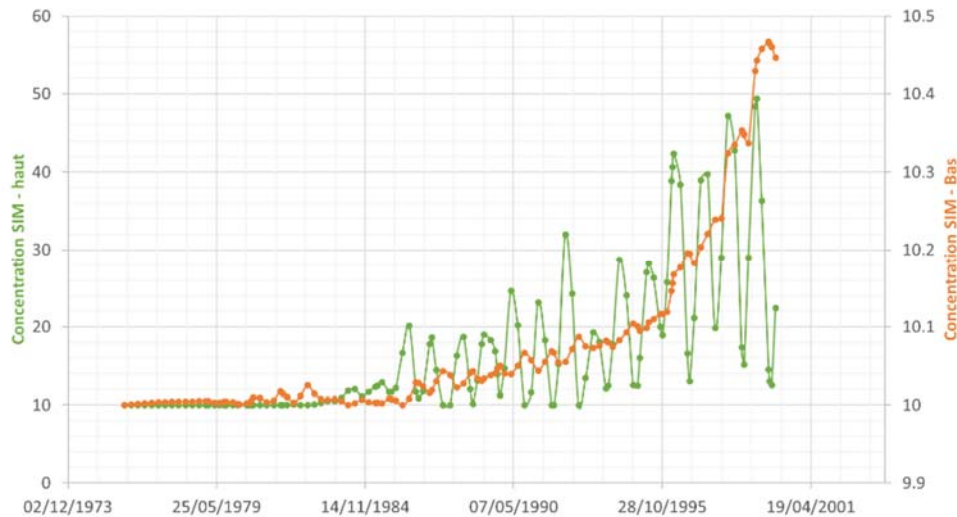
Il est à noter que cette discrétisation des SIM a été faite de manière arbitraire. Les valeurs des concentrations obtenues ne sont pas à considérées de façon absolue. Cela montre que des cycles, comme ceux observés dans le forage de Nogaro 2, peuvent exister dans les parties proches de la source de sulfate : plus on s'éloigne verticalement, plus l'amplitude des variations de concentration s'amointrit. Considérer toute la section des SIM pour expliquer les variations de sulfate observées est difficile, puisque c'est une concentration moyenne qui est rendue, concentration qui diffère des concentrations réelles qu'elles soient prises en bas de la formation (sans doute peu d'évolution des sulfates) ou bien en haut de la formation (variations importantes).



*Illustration 51 - [Haut] Concentration (en mg/l) dans les SIM au droit de Nogaro 2 - configuration hydrodynamique n°2 qui maximise les échanges par drainance ; les SIM sont divisés en deux sous-couches / [Bas] Les charges dans les SIM sont affichées en plus de la concentration mesurée dans la sous-couche « haute » des SIM*

### ***Influence de la concentration "source" dans la lentille sableuse et dans la couche argileuse***

La concentration "source" établie dans la lentille sableuse était de 1 000 mg/l dans la configuration initiale. L'illustration 52 montre les résultats correspondant à la configuration de l'illustration 51, mais avec une concentration "source" de 1 500 mg/l. Cette concentration correspond à une solution à l'équilibre vis-à-vis du gypse, à une température de 40°C. Dans ces conditions, on voit que l'amplitude des cycles est augmentée.



*Illustration 52 - Concentration (en mg/l) dans les SIM au droit de Nogaro 2 - configuration hydrodynamique de l'illustration 51 avec une concentration source de 1 500 mg/l*

Les simulations faites jusque-là faisaient l'hypothèse qu'une concentration de 10 mg/l existait dans la couche argileuse ; or, par diffusion, on peut imaginer que la concentration y soit plus élevée, même s'il est difficile de savoir de combien. L'illustration 53 montre les résultats de la configuration de l'illustration 51, mais en considérant des concentrations de 100, 250, et 750 mg/l dans la couche argileuse au droit de Nogaro 2. On voit que plus la concentration dans les argiles est élevée, plus celle dans les SIM est élevée. Néanmoins on note que si la concentration est trop forte, on a une tendance générale à la hausse des concentrations dans les SIM, ce qui n'a pas été observé.



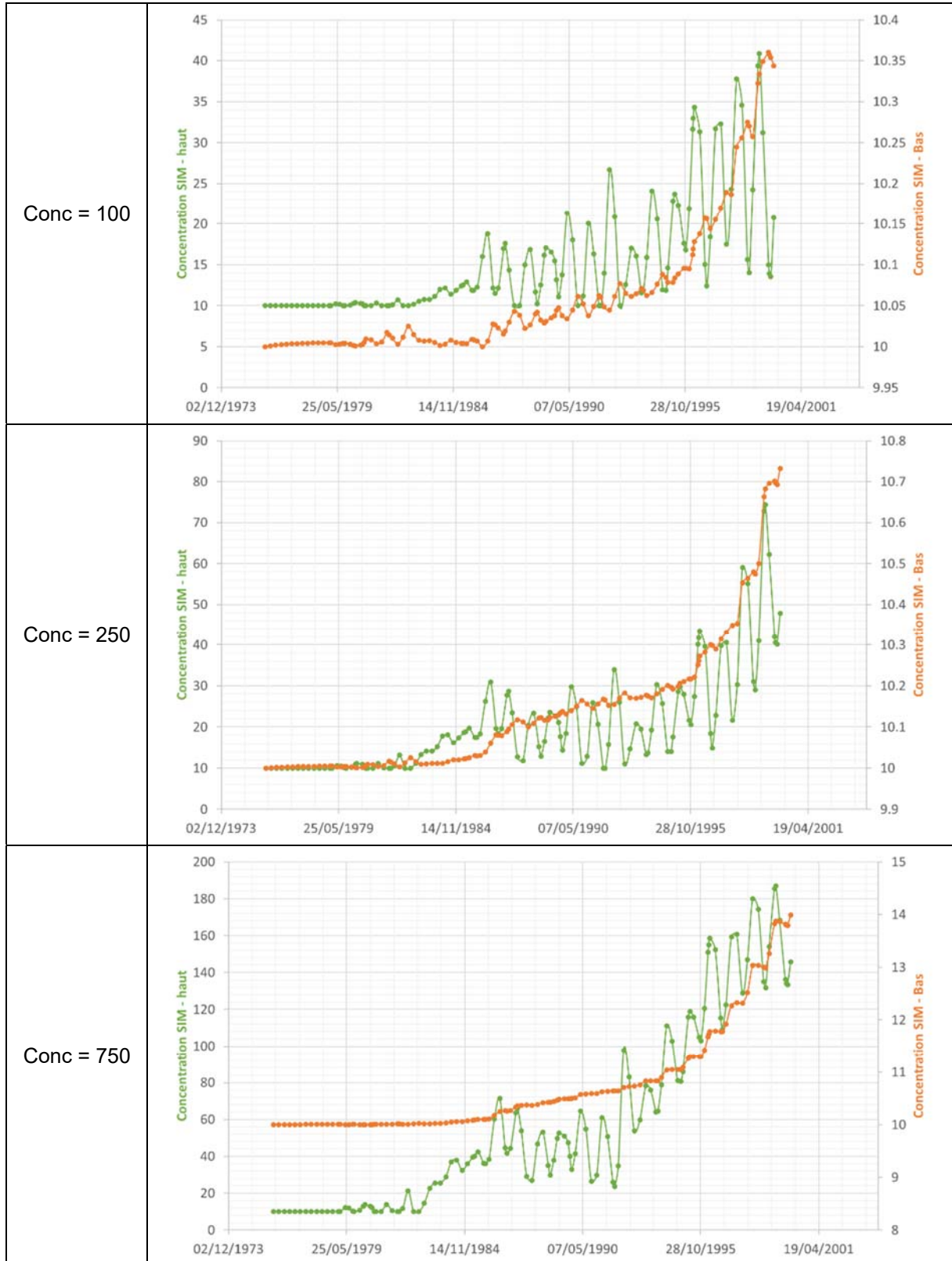


Illustration 53 - Concentration (en mg/l) dans les SIM au droit de Nogaro 2 - configuration hydrodynamique de l'illustration 51 avec changement de la concentration dans la couche argileuse au droit de Nogaro 2

### ***Influence des propriétés de la base molasse***

Au regard des simulations conduites jusqu'à présent, pour obtenir des variations de concentrations se rapprochant de celles mesurées au droit du forage de Nogaro 2 (i.e. d'une amplitude de plusieurs dizaines de mg/l), en utilisant le modèle conceptuel n°1, il semble nécessaire d'avoir des conditions hydrogéologiques particulières qui maximisent les échanges entre la lentille sableuse et les SIM :

- 1- une lentille/couche sableuse de base molasse réagissant faiblement aux variations de charge dans les SIM (forte capacité de stockage) : il faut donc un emmagasinement suffisant de la lentille sableuse (emmagasinement spécifique important, ou bien une hauteur de sable importante) combiné à une extension suffisante de cette lentille ;
- 2- une perméabilité de la couverture argileuse favorable aux écoulements au niveau de Nogaro 2 (ou bien une faible épaisseur de cette couverture). **NB.** Au-delà d'une certaine perméabilité (ou bien en deçà d'une certaine hauteur), ce sont les propriétés de la lentille sableuse qui régiront les débits d'échange.

Les conditions hydrogéologiques, qui ont été modélisées dans la section 4.2.3 et qui permettent d'aboutir à des cycles de concentration au droit de Nogaro 2, similaires à ceux observés, semblent très particulières, voire peu réalistes, notamment en ce qui concerne :

- l'extension très importante (totalité de l'extension des SIM) de la lentille sableuse et son emmagasinement fort ( $10^{-5} \text{ m}^{-1}$ ) ;
- la faible perméabilité de la couche argileuse ( $10^{-10} \text{ m/s}$ ), considérée dans tout le domaine et la forte perméabilité de cette couche au droit de Nogaro 2 ( $10^{-7} \text{ m/s}$ ).

L'illustration 54 montre les résultats de la configuration « optimale », mais en diminuant l'extension de la lentille sableuse, ainsi que son emmagasinement. La zone "source" en sulfate reste la même pour ces différents cas de figure : il s'agit d'une zone de 2 km x 2 km, au sein de la lentille sableuse et localisée au droit du forage de Nogaro 2. On voit que si l'extension est trop petite, les cycles disparaissent ou sont très faibles : cela est dû aux débits échangés entre les SIM et la base molasse, qui deviennent très faibles lorsque la lentille sableuse de base molasse est peu étendue (voir Illustration 55). En outre, le coefficient d'emmagasinement joue de façon importante sur l'amplitude des cycles quand ils existent. Ainsi, pour obtenir des concentrations simulées se rapprochant des observations, il faut une extension conséquente des sables (de l'ordre de la centaine de  $\text{km}^2$ ). De même, il est nécessaire d'avoir un coefficient d'emmagasinement fort, idéalement supérieur à  $10^{-6} \text{ m}^{-1}$ .

Concernant la perméabilité de la couche argileuse, l'illustration 56 montre les résultats de la configuration « optimale » mais en affectant à la couche argileuse une perméabilité plus faible de  $10^{-8} \text{ m/s}$  sur tout le domaine, avec ou sans perméabilité plus forte au droit de Nogaro 2. Quel que soit le choix fait au droit de Nogaro 2, une perméabilité de  $10^{-8} \text{ m/s}$  entraîne une baisse des débits échangés entre les SIM et l'intercalaire argileux au droit de Nogaro 2 : il n'est alors pas possible de retrouver les cycles de l'ampleur de ceux simulés à l'illustration 51.

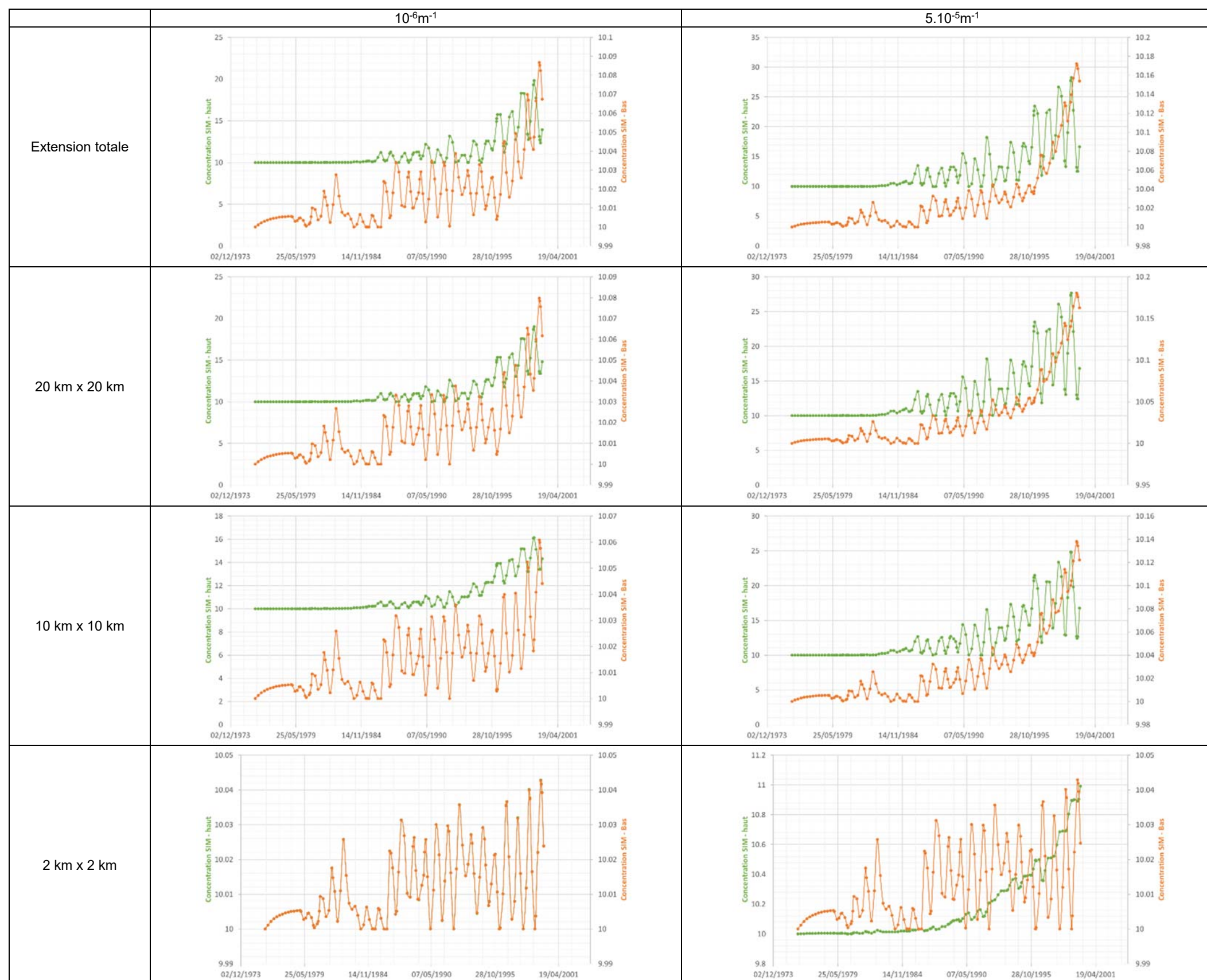


Illustration 54 - Concentration (en mg/l) dans les SIM au droit de Nogaro 2 - modification de la configuration de l'illustration 51 au niveau de l'extension de la lentille sableuse et de son coefficient d'emmagasinement ; les SIM sont divisés en deux sous-couches.<sup>8</sup>

<sup>8</sup> Pour une lentille sableuse de 2 km x 2 km et un coefficient d'emmagasinement de  $10^{-6}$ , les courbes orange et verte se superposent.



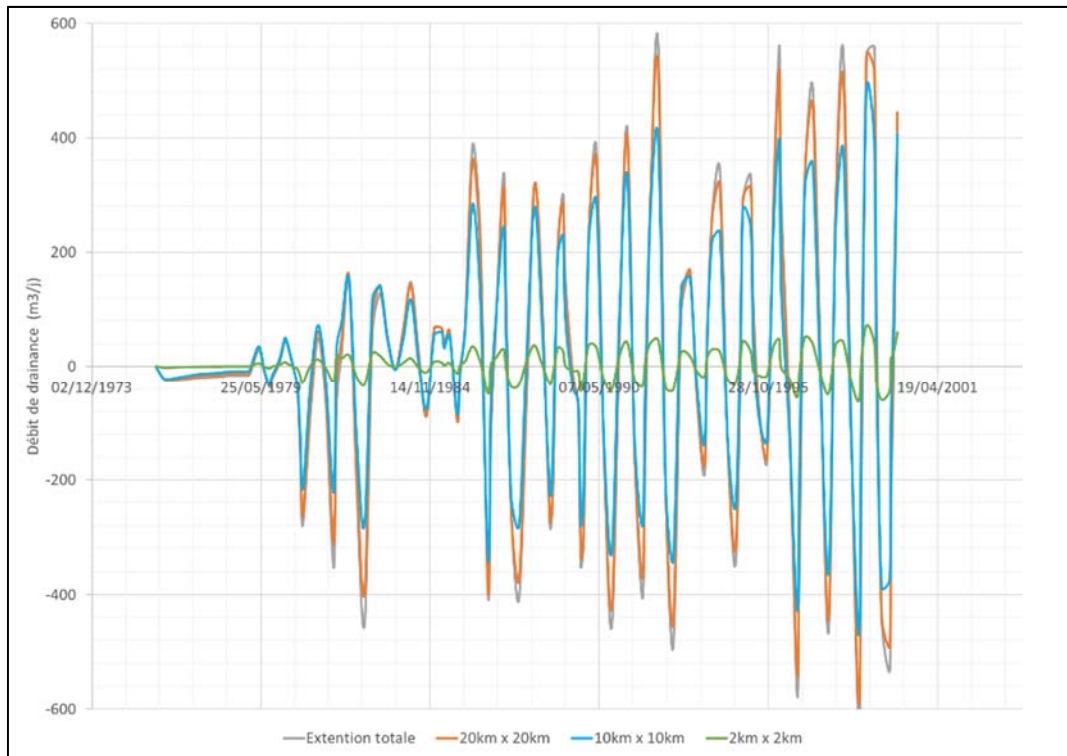


Illustration 55 - Débit d'eau ( $m^3/j$ ) échangé entre les SIM et la base molasse en fonction de l'extension de la lentille sableuse de base molasse

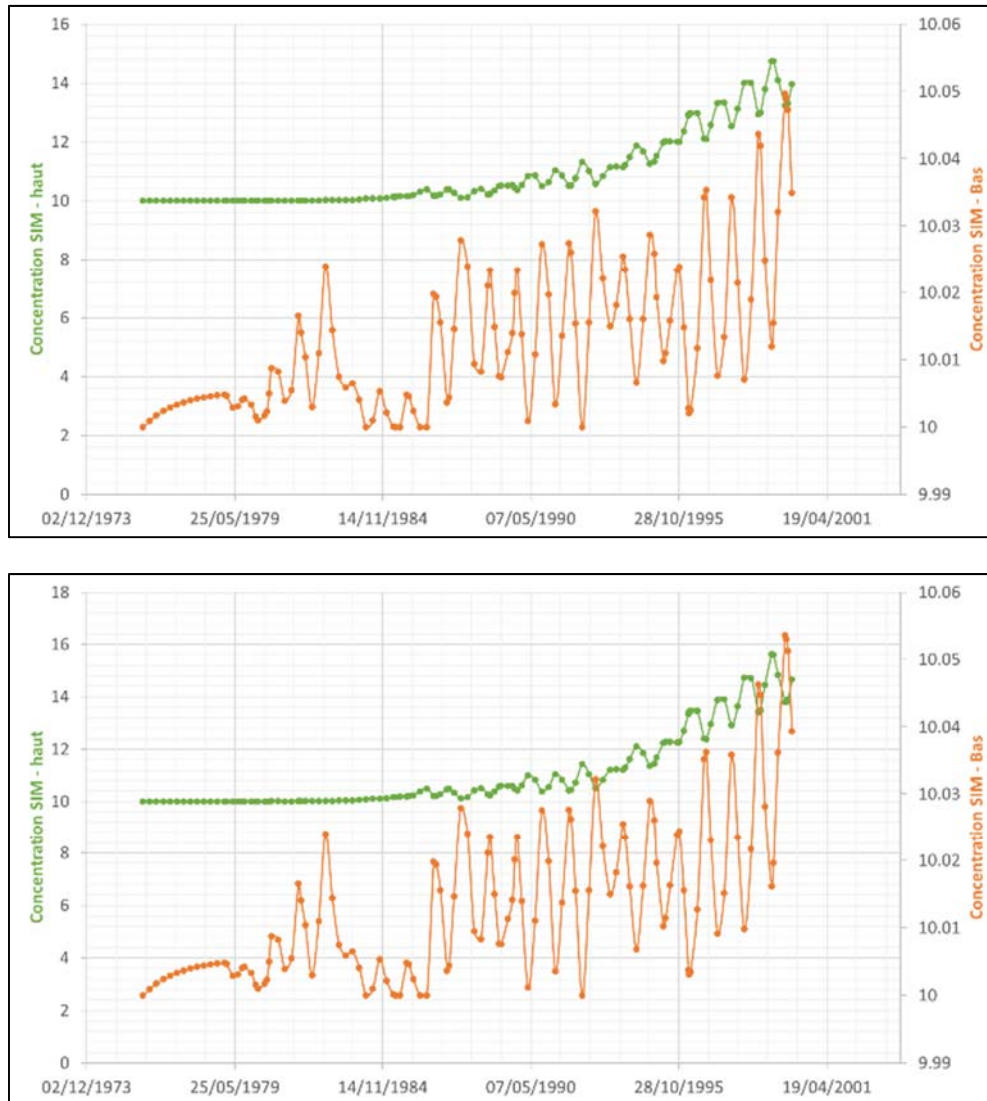


Illustration 56 - Concentration (en mg/l) dans les SIM au droit de Nogaro 2 - modification de la configuration de l'illustration 51 au niveau de la perméabilité de la couche argileuse / [Bas]  $10^{-8}$ m/s au niveau de toute la couche / [Haut]  $10^{-8}$  au niveau de toute la couche sauf au droit de Nogaro 2 ( $10^{-7}$ m/s)

### Points de questionnement restant en suspens pour le modèle conceptuel n°1

Le modèle conceptuel n°1, testé dans cette section, implique des mesures de concentration faites à proximité de la source de sulfate (partie haute des sables) ; sinon, le mélange au sein de la hauteur totale de l'aquifère réduit les concentrations, et surtout l'amplitude des cycles. **Ce point-là pose question dans la mesure où le forage de Nogaro 2 est crépiné dans sa partie basse au niveau des grès à Nummulites, à 100 m environ du toit des sables de Lussagnet et du substratum de la molasse (cf Annexe 1).** Une meilleure connaissance de la circulation de l'eau dans cet ouvrage permettra peut-être de juger de la vraisemblance du modèle conceptuel quant à cette question. Il pourrait éventuellement être possible que des écoulements préférentiels se produisent dans les parties hautes des SIM, du fait d'une variabilité verticale de perméabilité.

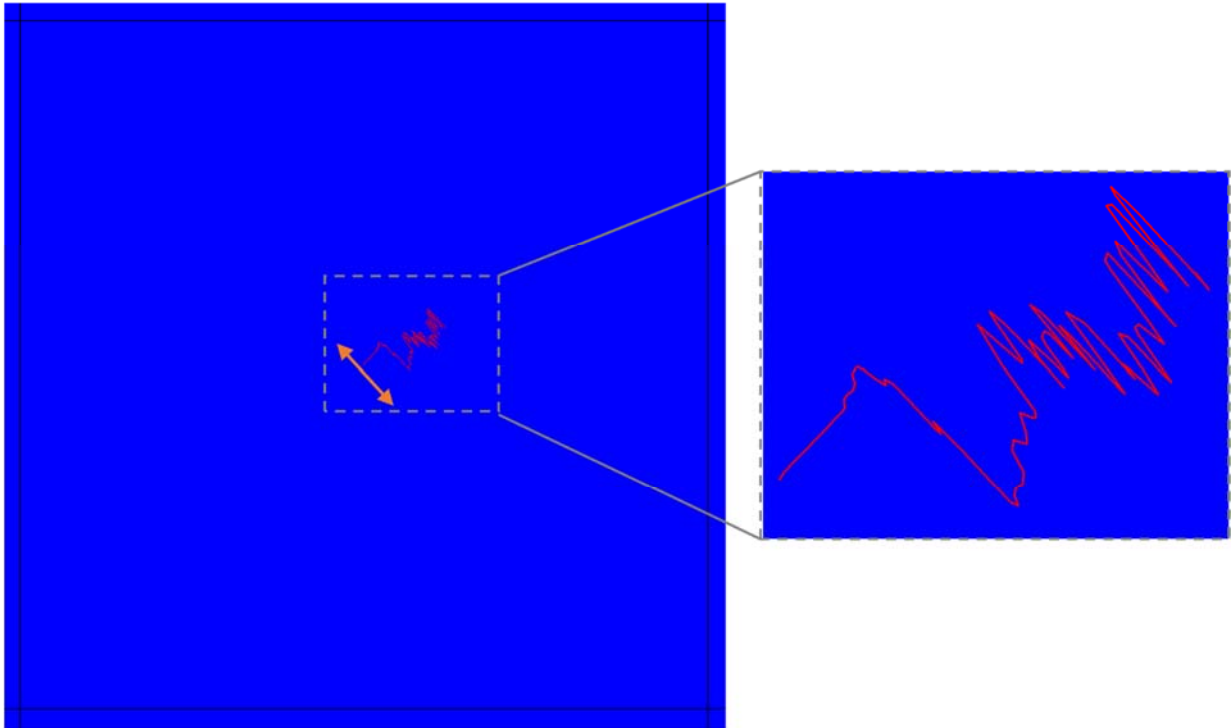
En outre, le modèle conceptuel testé permet d'expliquer des variations de concentration en sulfate anti-corrélées aux variations de charge hydraulique. Or, au niveau du forage d'Eauze, des variations de concentrations en sulfate corrélées positivement aux variations de charges sont soupçonnées. S'il s'avère exact, ce constat ne remet pas forcément en cause le modèle testé pour le forage de Nogaro 2, mais il implique l'existence d'un autre processus expliquant l'évolution des concentrations en sulfate au niveau du forage d'Eauze.

#### **4.3. MODELE CONCEPTUEL N°2 : PRESENCE D'UNE SOURCE DE SULFATE AU SEIN DES SIM ET DEPLACEMENTS « HORIZONTALS » PERIODIQUES DU PANACHE RICHE EN SULFATE**

L'une des « faiblesses » du modèle conceptuel précédent est la nécessité de trouver un compromis entre échanges suffisamment importants entre la lentille sableuse et les SIM (à travers la molasse argileuse), et des charges hydrauliques dans la lentille argileuse qui ne réagissent pas trop rapidement aux variations de charges dans les SIM.

Nous testons alors un modèle conceptuel, proche de celui testé jusqu'à présent, mais qui s'affranchit des échanges molasses/SIM. Le modèle testé suppose l'existence, au préalable, de la mise en place des stockages de gaz, d'un panache riche en sulfate dans les SIM au droit de Nogaro 2. Ce nouveau modèle conceptuel expliquerait donc les arrivées cycliques autour du forage de Nogaro 2, par le déplacement de ce panache au gré des opérations d'injection et de soutirage du gaz.

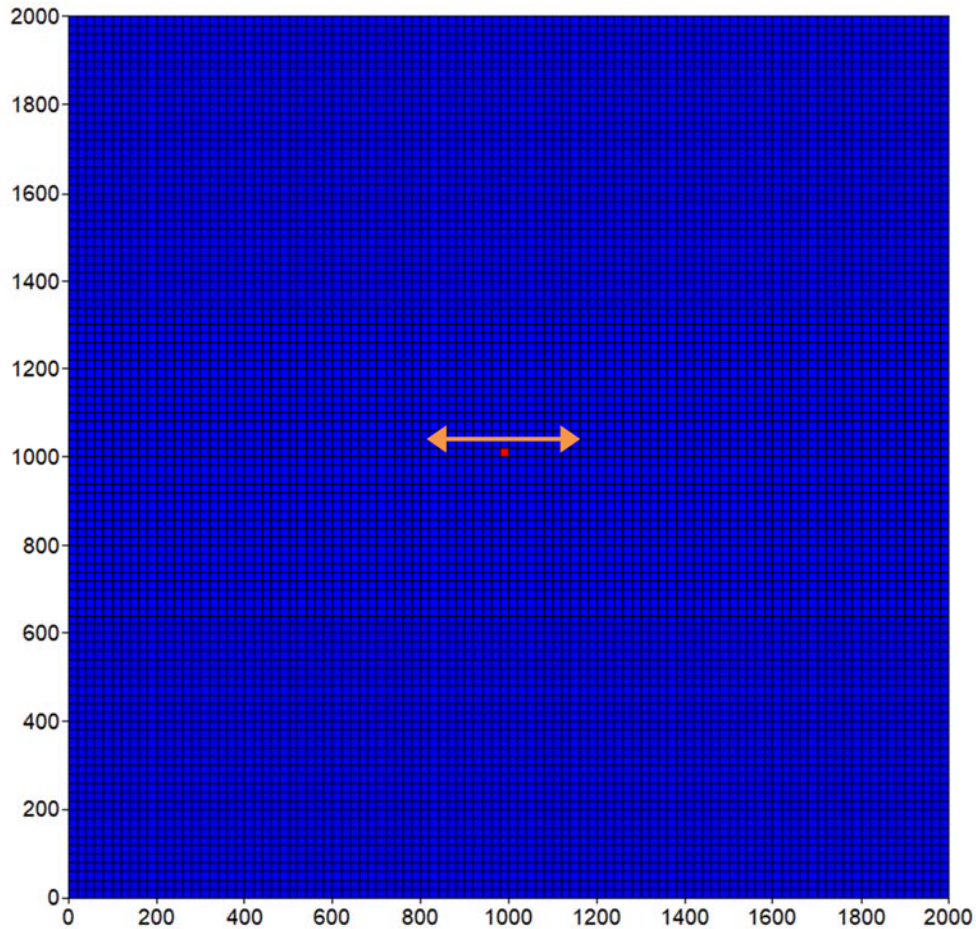
Dans un premier temps, nous évaluons les vitesses de déplacement dans les SIM à l'aide du modèle utilisé jusqu'à présent (cette fois-ci, nous ne modélisons pas la molasse mais uniquement la couche des SIM). Pour cela, nous traçons une trajectoire proche du forage de Nogaro 2 (illustration 57). Ces trajectoires représentent le parcours d'une molécule d'eau, au cours de la modélisation et au gré des différents cycles stockage/déstockage de gaz. On voit sur l'illustration la création du stockage, puis les cycles entraînant des allers-retours de la molécule d'eau dont la trajectoire est tracée. Logiquement la trajectoire est globalement nord-ouest/sud-est, qui correspond à la direction entre les stockages et le forage de Nogaro 2. Les déplacements au court d'un cycle sont limités, les cycles les plus importants entraînant un déplacement d'un peu plus de 50 m. Le modèle utilisé jusqu'à présent ne nous permet donc pas d'évaluer l'hypothèse d'un panache de sulfate se déplaçant à proximité du forage, l'échelle du modèle étant très éloignée de l'échelle nécessaire pour cette évaluation (au moins 250 fois plus faible, ce qui entraîne des difficultés pour l'incorporation d'un maillage gigogne). De plus, les effets du pompage au droit de Nogaro 2 sont moyennés à l'échelle de la maille de 2 km x 2 km et les trajectoires aux abords du points d'injection sont donc vraisemblablement différentes (localement, moins d'effets des cycles stockage/déstockage, plus d'effets du pompage) de celle affichée à l'illustration 57.



*Illustration 57 - Trajectoire au sein de la maille du forage de Nogaro 2 ; un zoom est fourni sur la figure de droite (On rappelle que l'extension des mailles est de 2 km x 2 km. La direction du gradient hydraulique induit par les opérations de stockage et de soutirage de gaz est indiquée par la flèche orange)*

Nous décidons de créer un nouveau modèle, simple, mais plus raffiné que le modèle précédent : l'emprise de ce nouveau modèle correspond à celle de la maille contenant le forage de Nogaro 2 dans le modèle précédemment utilisé, et le nouveau modèle est discrétisé en mailles de 20 m x 20 m. Les mêmes paramètres géométriques et hydrodynamiques, que ceux affectés à cette maille dans le modèle régional, sont repris dans ce modèle local raffiné. Concernant les conditions aux limites, des charges hydrauliques (variables dans le temps) obtenues à partir du modèle initial sont imposées : par commodité, nous reportons le gradient hydraulique induit par les opérations de stockage de gaz, qui était dans la direction nord-ouest/sud-est, dans la direction ouest-est, mais tout en conservant son amplitude, et nous décidons de placer le forage de Nogaro 2 au centre du domaine. Celui-ci induit une simplification des écoulements globaux, mais ce qui nous intéresse ici, c'est l'influence des mouvements d'un panache de sulfate liés au stockage.





*Illustration 58 - Modèle local discrétisé, établi pour évaluer le modèle conceptuel alternatif  
Le forage de Nogaro 2 est considéré au centre du domaine et par commodité le gradient hydraulique dû  
aux opérations de stockage et de soutirage de gaz est imposé dans la direction est-ouest (flèche orange).  
Sa valeur reste la même que celle obtenue avec le modèle régional initial.*

Ensuite nous imposons une concentration fixe au niveau d'une zone située à l'ouest de Nogaro 2 (centre du domaine), c'est-à-dire à l'opposé des stockages, qui sont à l'ouest dans ce nouveau modèle. L'illustration 59 montre les résultats en terme de concentration pour un panache de 750 m x 1 km à une concentration de 100 mg/l, la concentration du reste du domaine étant fixée à 10 mg/l. On voit que cette configuration permet des variations de concentrations en sulfate cohérentes avec les observations faites sur site, c'est à-dire anti-corrélées avec les variations de charge et de l'ordre de grandeur de quelques dizaines de mg/l. D'autres configurations (localisation du panache, concentration du panache) permettent d'obtenir des résultats similaires.

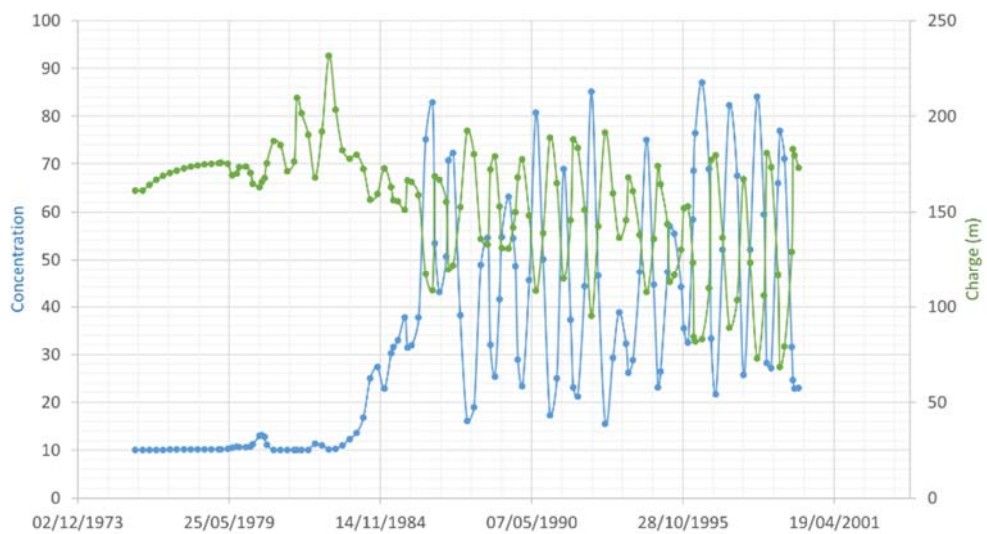
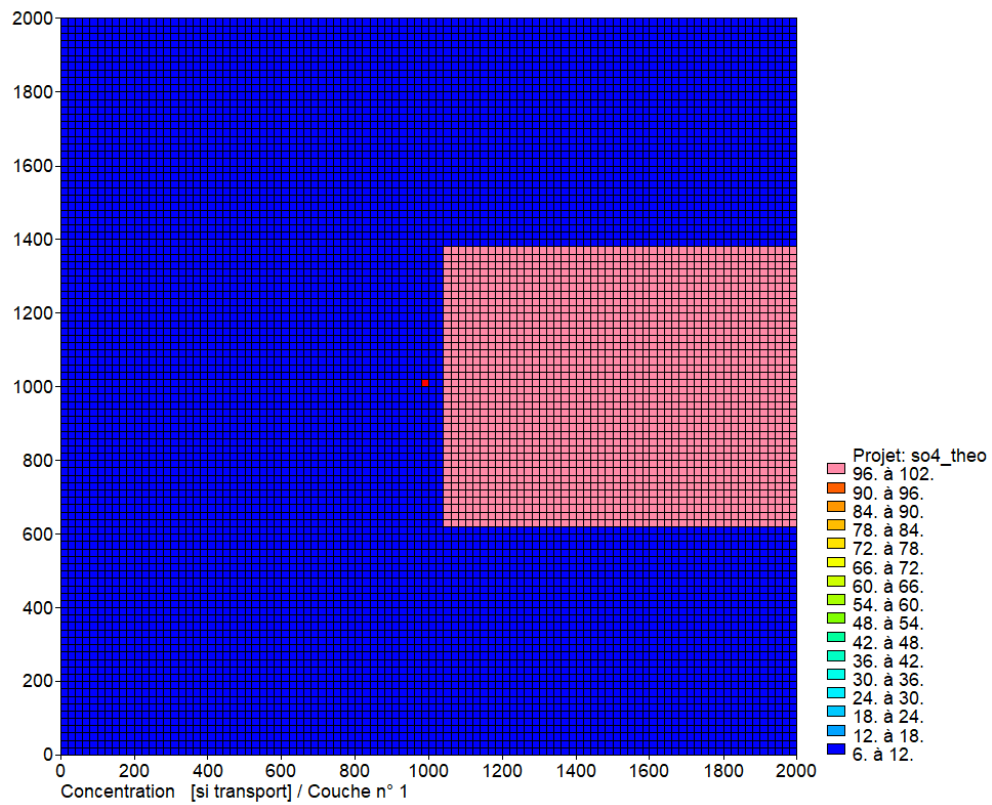
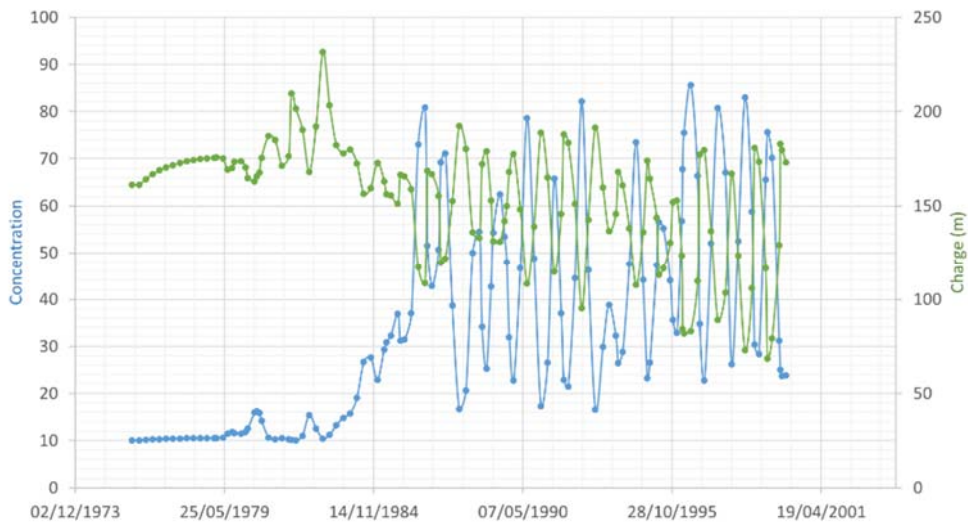


Illustration 59 - [Haut] Localisation et concentration du panache au sein du modèle local discrétisé pour la première configuration testée / [Bas] Concentration obtenue au droit de Nogaro 2 pour cette configuration, les charges hydrauliques au même point sont tracées également

La différence la plus importante avec les observations faites *in situ* concerne la forme des cycles de concentration : des pics suivis de plateaux stables autour de 10 mg/l sont observés sur site, alors que les simulations montrent une cyclicité plus sinusoïdale, avec des valeurs basses des cycles, qui ne redescendent pas à 10 mg.L<sup>-1</sup> si, dans le domaine simulé hors panache une concentration initiale de 10 mg.L<sup>-1</sup> est considérée. Les résultats du premier modèle conceptuel montraient des chroniques de concentrations se rapprochant un peu plus, quant à leur forme, des observations. Les calculs hydrodispersifs ont, pour le moment, été menés sans prise en compte de la diffusion/dispersion. L'illustration 60 montre les résultats obtenus avec la même configuration, mais considérant une dispersivité longitudinale de 5 m (et transversale de 0,5 m), étant donnés les déplacements attendus au cours de la simulation (1/10 des déplacements de 50 m). Les résultats sont assez proches et les effets de dispersion ne modifient donc pas significativement les choses quant à la valeur basse des cycles atteinte.



*Illustration 60 - Concentration obtenue au droit de Nogaro 2 pour la première configuration testée, avec prise en compte des effets de dispersion ; les charges hydrauliques au même point sont tracées également*

Une remarque intéressante peut être faite avec ce nouveau modèle conceptuel, à partir des résultats d'une nouvelle simulation pour laquelle le panache riche en sulfate a été localisé de l'autre côté du forage de Nogaro 2 : comme le montre l'illustration 61, des cycles sont bien observés avec cette nouvelle configuration, mais ces cycles sont cette fois-ci corrélés aux variations de charge. On rappelle que, dans le forage d'Eauze, des variations de concentration, corrélées aux variations de charge hydraulique, sont soupçonnées à partir des quelques mesures disponibles à ce jour. Ce nouveau modèle conceptuel permettrait donc d'expliquer des variations de concentrations en sulfate corrélées ou anti-corrélées aux variations de charge.

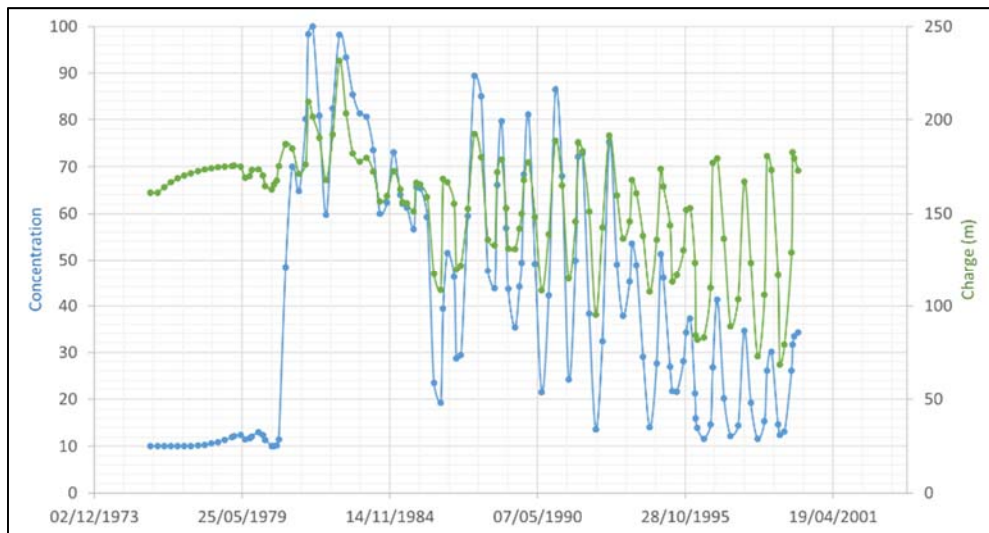
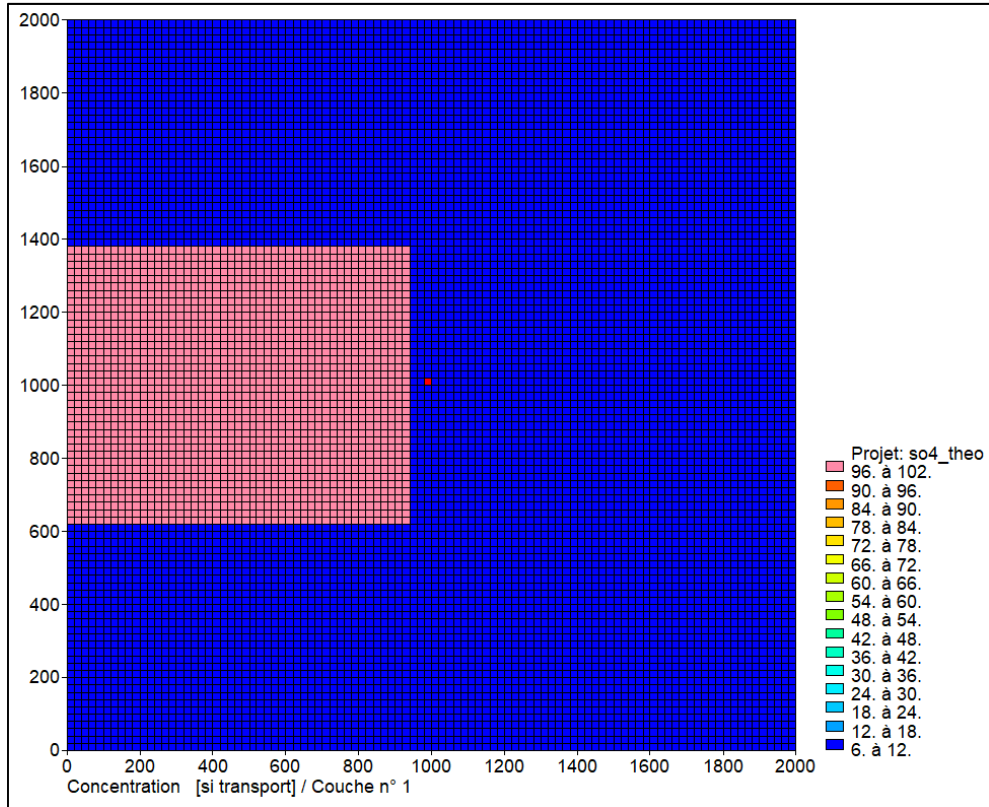
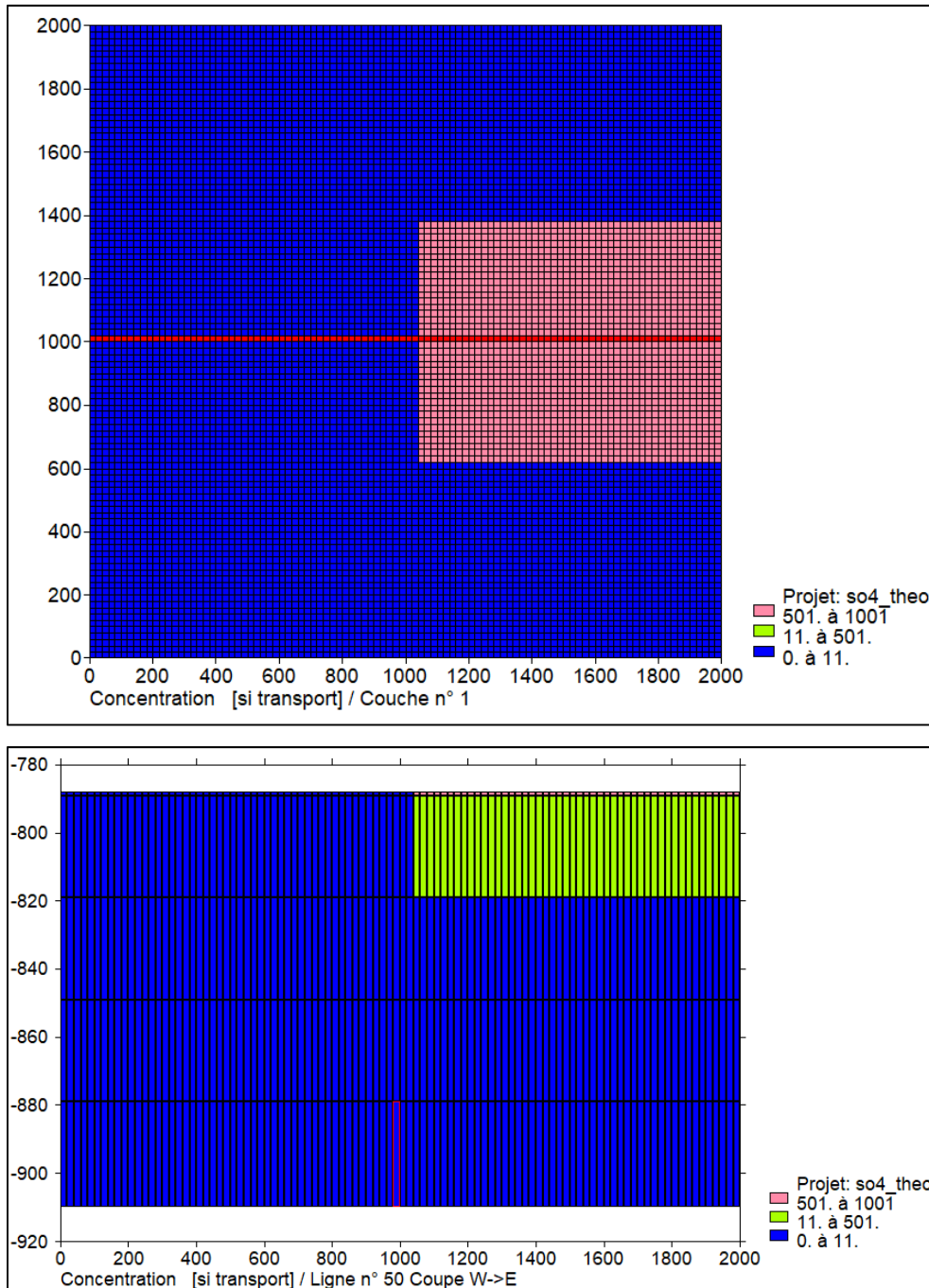


Illustration 61 - [Haut] Localisation et concentration du panache au sein du modèle local discrétisé pour la seconde configuration testée / [Bas] Concentration obtenue au droit de Nogaro 2 pour cette configuration, les charges hydrauliques au même point sont tracées également

Le modèle local raffiné, utilisé jusqu'à présent, ne contient qu'une seule couche représentant les SIM. Par conséquent, les questions, relatives au mélange sur toute la hauteur des SIM et à la localisation des prélèvements (partie basse de la formation des SIM) au sein de cette formation qui se posaient dans le modèle conceptuel initial, se posent également pour ce nouveau modèle, si la source de sulfate provient de la dissolution de gypse de base molasse (ces questions sont moins pertinentes si la source de sulfate est l'oxydation de la pyrite au sein des SIM).

Pour traiter de ces questions, nous avons établi un nouveau modèle local, cette fois-ci discrétisé verticalement (la discrétisation horizontale restant la même). Dans ce nouveau modèle (illustration 62), la formation des SIM est discrétisée en 5 couches différentes d'épaisseurs respectives de (de la couche la plus profonde à la moins profonde) 31 m, 30 m, 30 m, 30 m et 1 m (l'épaisseur initiale de la maille du modèle régional, contenant le forage de Nogaro 2, était de 122 m). Ce découpage a été fait pour deux raisons : d'une part, le forage de Nogaro 2 est crépiné sur 31 m dans la partie basse des SIM (voir annexe 1) ; d'autre part, si on souhaite tester l'hypothèse d'une source de sulfate provenant de gypses situés dans la partie basse de la molasse, il est intéressant d'avoir une fine couche au toit des SIM contenant une forte concentration en sulfate.

Le panache considéré dans la configuration simulée est semblable à celui représenté à l'illustration 59, quant à sa localisation horizontale. Verticalement, seules les deux couches supérieures du modèle contiennent des sulfates, avec une concentration importante à  $1\ 000\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$  pour la fine couche en contact avec la base molasse, et une concentration de  $500\ \text{mg}\ \text{L}^{-1}$  pour la couche sous-jacente (voir illustration 62).



*Illustration 62 - [Haut] Vue de dessus / [Bas] Vue en coupe du modèle local raffiné verticalement  
La vue en coupe est faite en fonction de l'axe tracé en rouge. L'échelle de couleur correspond à la concentration initiale (panache initial) prise en compte dans la configuration étudiée. Les prélèvements du forage de Nogaro 2 sont effectués dans la maille encadrée en rouge sur l'illustration du bas.*

Les résultats en matière de variations des concentrations en sulfate dans le forage de Nogaro 2 sont fournis à l'illustration 63 (sans dispersion et avec dispersion) : même s'il faut un peu de temps pour que les sulfates arrivent au forage, on remarque des variations de concentrations semblables aux observations (anti-corrélations avec les charges hydrauliques et quelques dizaines de mg/l d'amplitude). Ce modèle conceptuel alternatif semble donc pouvoir expliquer, à lui seul, de telles variations dans la partie basse des SIM, contrairement au premier modèle qui ne suffisait pas à l'expliquer.

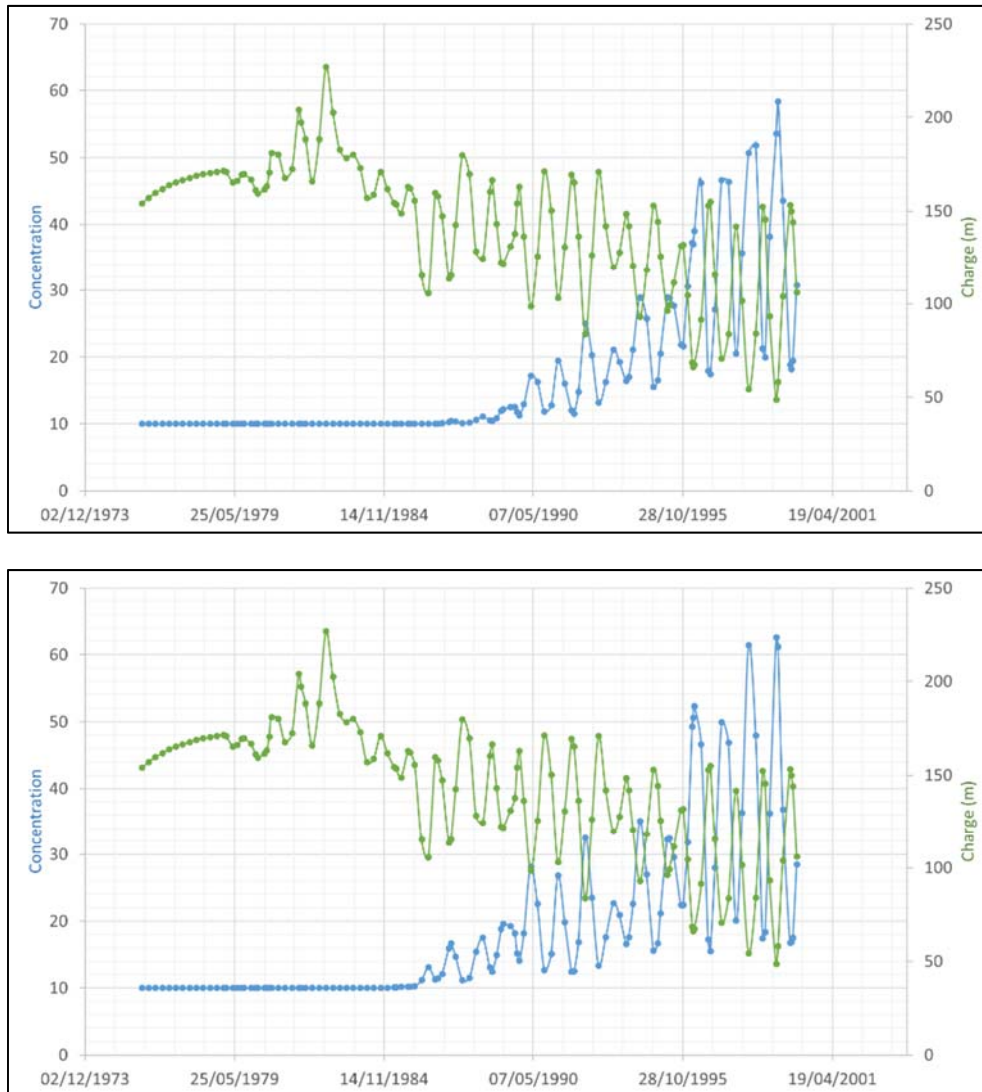


Illustration 63 - Concentration obtenue au droit de Nogaro 2 pour la configuration présentée à l'illustration 62, les charges hydrauliques au même point sont tracées également [Haut] Sans dispersion, [Bas] Avec dispersion.

Afin de mieux comprendre les interactions, telles qu'elles sont modélisées, entre l'existence du panache initial, les variations de charges au sein des SIM et les impacts hydrauliques du pompage de Nogaro 2, nous proposons, à l'illustration 64, une extraction du champ de concentration (vue en coupe intersectant le forage de Nogaro 2) à différentes dates au cours de la simulation (c'est la simulation sans dispersion qui est montrée) :

- Partant d'un état initial où le panache est dans la partie haute des SIM, le pompage dans la partie basse au niveau de la partie crépinée du forage de Nogaro 2 permet l'arrivée progressive des sulfates dans l'eau pompée (partie droite de l'illustration 64).
- Une fois les sulfates arrivés, les opérations de stockage/soutirage de gaz entraînent le déplacement du panache y compris aux abords de la partie crépinée du forage de Nogaro 2. Alternent donc, à ce niveau, concentration plus forte lors des opérations de soutirage (le pompage est au cœur du panache), et plus faible lors des opérations de stockage (le pompage est à la périphérie du panache) (partie gauche de l'illustration 64).





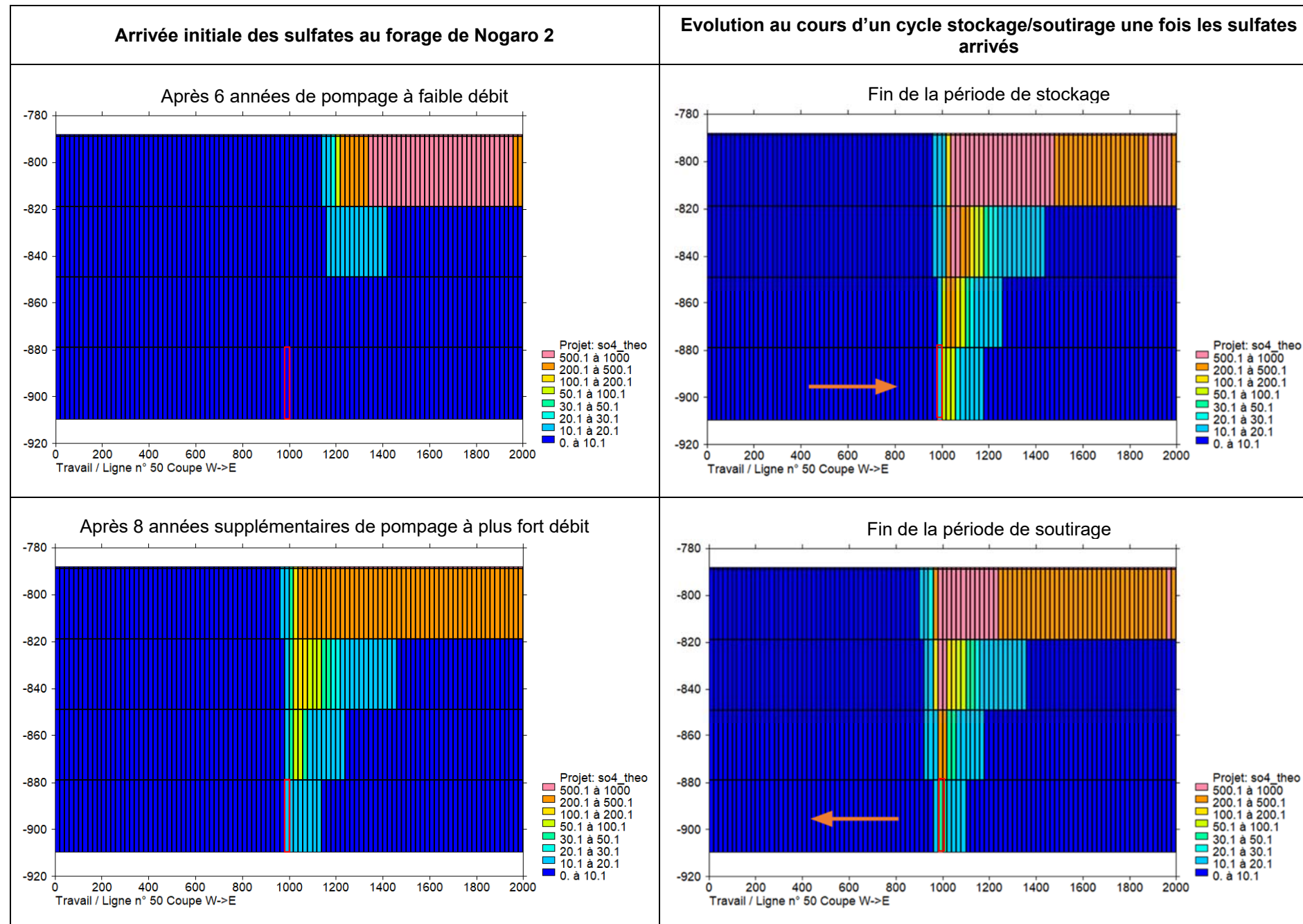


Illustration 64 - Champs de concentration à différentes dates au cours de la simulation [Partie gauche] Arrivée des sulfates au forage prélevé / [Partie droite] Déplacement du panache au cours d'un cycle stockage/soutirage. La zone où le pompage a lieu est encadrée en rouge



#### 4.4. CONCLUSIONS SUR LES MODELES TESTES

Deux modèles conceptuels ont été établis, tous deux pouvant *a priori* expliquer des variations cycliques des concentrations en sulfate dans le forage Nogaro 2.

La différence principale entre eux est la présence ou non d'un panache au sein des SIM, au préalable des opérations de stockage de gaz :

- Le premier modèle considère ainsi que les concentrations en sulfate, observées et leur variation, proviennent d'échanges importants entre la base molasse argilo-sableuse, riche en sulfate (sulfate qui proviendrait de la dissolution de gypse), et les SIM, du fait des opérations de stockage.
- Le second explique les variations observées par des échanges au sein même des SIM où un panache riche en sulfate est présent. Ce panache pourrait avoir été constitué par l'oxydation de la pyrite au sein des SIM et/ou d'échanges, entre la base molasse et les SIM, ayant eu lieu bien avant les opérations de stockage de gaz et donc potentiellement lents (impliquant par exemple des phénomènes de diffusion par exemple).

Le premier modèle n'est pas rejeté, mais nécessite des conditions particulières pour expliquer les observations faites *in situ*. Outre des paramètres hydrogéologiques particuliers permettant des échanges suffisants entre les SIM et la base molasse, les simulations réalisées ont pu expliquer les variations en sulfate seulement en partie haute des SIM, alors que les prélèvements sont réalisés en partie basse. Ce modèle conceptuel nécessiterait donc, en sus, des écoulements préférentiels au sein des SIM, permettant des concentrations en partie basse aussi fortes que celles qui ont pu être obtenues par le modèle en partie haute. En outre, le modèle conceptuel explique des variations des concentrations en sulfate anti-corrélées aux variations de charge hydraulique, ce qui permet d'expliquer les variations observées au forage Nogaro 2, mais pas celles observées au niveau du forage d'Eauze.

Le second modèle nécessite moins d'hypothèses, dans le sens où il ne nécessite pas de paramètres hydrogéologiques particuliers et permet de comprendre le pourquoi de fortes concentrations, même au niveau de la partie crépinée du forage de Nogaro 2. Toutefois, la question de la constitution d'un tel panache n'a pas été traitée, et mériterait une attention particulière.



## 5. Conclusions de l'étude

L'analyse des chroniques historiques de composition chimique des eaux de Nogaro 2 a montré que les concentrations en sulfate présentaient une variation cyclique, anti-corrélée aux variations piézométriques, générées par les cycles de stockage de gaz. Ce phénomène, observé avec une telle amplitude uniquement dans ce forage, est difficilement explicable, compte tenu de données historiques de la composition chimique rarement complètes.

Afin de tenter d'expliquer les mécanismes responsables de ces variations, la première phase de cette étude a consisté à suivre la composition chimique des eaux de Nogaro 2 et de quatre autres forages avoisinants, captant également les Sables Infra-Molassiques. Des mesures trimestrielles ont été entreprises et les éléments majeurs, traces et les isotopes ont été analysés. Les résultats confirment la cyclicité des sulfates (entre 10 et 40 mg.L<sup>-1</sup> en moyenne) ainsi que les variations du soufre-34 des sulfates (entre 6,5 et 8,5 ‰ en moyenne). Ces analyses ont aussi révélé la variation de la concentration en bore (et du bore-11), cyclicité qui est corrélée aux variations piézométriques. Enfin, dans une moindre mesure, des variations de <sup>13</sup>C et <sup>14</sup>C sont aussi observées. Cependant, les activités <sup>14</sup>C sont très faibles et seule une étude plus approfondie de ce paramètre permettrait de conclure sur la signification de ces variations.

En termes d'interprétation géochimique, une modélisation, basée sur des mélanges d'eaux, a permis de restituer, de manière convenable, à la fois les teneurs en sulfate et en bore mesurées dans les eaux (ainsi que les signatures isotopiques en <sup>34</sup>S et <sup>11</sup>B). Ces modélisations mettent en évidence des processus de concentration (liés à des mélanges avec des eaux enrichies en sulfate et en bore) et des phases de dilution, correspondant à des mélanges avec de l'eau du réservoir. Cette approche est cependant exploratoire et seule une étude minéralogique des horizons sus et sous-jacents, au droit de Nogaro, permettrait de définir plus précisément les phases porteuses de soufre et de bore, mais aussi de les caractériser (notamment en termes d'isotopie).

L'étude géologique et minéralogique menée dans le cadre de cette étude confirme que, dans la zone de Nogaro 2, le soufre peut avoir deux origines : le gypse, qui est généralement présent dans les formations molassiques et la pyrite, présente dans le réservoir, à l'état de traces. Cependant, il n'a pas été possible de caractériser le soufre de ces pyrites de manière précise, notamment en termes d'isotopie. En effet, la faible quantité de pyrite et l'enrobage des grains par des dépôts de quartz a empêché toute purification et analyse isotopique. Ces caractérisations seraient cependant nécessaires pour déterminer l'origine des sulfates dans les eaux, notamment lors des phases de pics.

Outre les aspects géochimiques et minéralogiques, une approche hydrodynamique / hydrodispersive a aussi été proposée au cours de cette étude, afin de comprendre les processus responsables de ces variations cycliques de composition chimique. L'objectif était de tenter de reproduire les données observées de concentration en sulfate à l'aide d'un modèle numérique maillé. Deux modèles conceptuels ont été établis, tous deux pouvant *a priori* expliquer ces variations cycliques : le premier suppose que les concentrations en sulfate observées et leurs variations proviennent d'échanges entre la base molasse argilo-sableuse, riche en sulfate, et les SIM ; alors que le second explique les variations observées par des échanges au sein même des SIM où un panache riche en sulfate est présent.

Le premier modèle n'est pas rejeté, mais nécessite des conditions particulières pour expliquer les observations faites *in situ*. Outre des paramètres hydrogéologiques particuliers permettant des échanges suffisants entre les SIM et la base molasse, les simulations réalisées ont pu expliquer les variations en sulfate seulement en partie haute des SIM, alors que les prélèvements

dans Nogaro 2 sont réalisés en partie basse. Ce modèle conceptuel nécessiterait, en sus, des écoulements préférentiels au sein des SIM permettant des concentrations en partie basse aussi fortes que celles qui ont pu être obtenues par le modèle en partie haute. En outre, le modèle conceptuel explique des variations des concentrations en sulfate anti-corrélées aux variations de charge hydraulique, ce qui permet d'expliquer les variations observées au forage Nogaro 2, mais pas celles observées au niveau du forage d'Eauze.

Le second modèle engendre moins d'hypothèses, dans le sens où il ne nécessite pas de paramètres hydrogéologiques particuliers et permet de comprendre le pourquoi de fortes concentrations, même au niveau de la partie crépinée du forage de Nogaro 2. Toutefois, la question de la constitution d'un tel panache n'a pas été traitée, et mériterait une attention particulière.

Cette étude constitue donc une première étape dans la compréhension des processus responsables des variations de concentration en sulfate dans les eaux de Nogaro 2. Il ressort que ces variations sont probablement liées à des processus couplés hydrodynamiques et géochimiques et que seule une caractérisation plus fine des pôles (origine du soufre et du bore, phases porteuses de ces éléments, stock/réserve de ces éléments...) et des échanges entre les différentes parties du réservoir (et de ses épontes) permettra de comprendre les mécanismes particuliers à ce forage. Une approche numérique couplée sera aussi nécessaire pour mieux appréhender ces processus.

## 6. Bibliographie

André L. (2002) - Contribution de la géochimie à la connaissance des écoulements souterrains profonds. Application à l'aquifère des Sables Infra-Molassiques du Bassin Aquitain, *Thèse: Bordeaux 3*. 230 p.

André L., Francheschi M., Pouchan P., Atteia O. (2002) - Origine et évolution du soufre au sein de l'aquifère des Sables infra-molassiques du Bassin aquitain. *C.R. Geoscience*, **334**, 749–756.

André L., Cabaret O., Douez O., Saplaïroles M., Wuilleumier A. (2019) - Projet GAIA. Année 4. Avancement des volets hydrogéologique et hydrogéochimique. Rapport d'étape. BRGM/RP-69126-FR, 121 p., 81 ill., 12 ann.

BRGM-AGSO (2018) - Synthèse géologique et géophysique des Pyrénées - Volumes 2 et 3, Cycle alpin : stratigraphie et phénomènes alpins.

Demoisson F., (2006) - Réactivité aux échelles micronique et submicronique de particules colloïdales : oxydation d'un sulfure de fer (pyrite) par du chrome (VI) et sorption sur un hydroxyde d'aluminium (gibbsite) d'espèces organiques. Thèse de l'Université Henri Poincaré Nancy 1.

Grataloup et al., (à paraître) - Projet GAIA. Modélisation géologique des aquifères profonds du sud du Bassin aquitain.

Malcuit E. (2012) - Origine de la minéralisation des eaux dans un aquifère multicouche profond. Exemple de la "zone minéralisée de l'Entre-Deux-Mers" (Bassin aquitain, France). *Thèse: Bordeaux 3*. 456 p.

Négrel Ph., Petelet-Giraud E., Brenot A., Millot R., Innocent Ch. (2008) - Caractérisation isotopique et géochimique des masses d'eau dans la bassin Adour-Garonne : interconnexions et hétérogénéités - CARISMEAU. Rapport final. Tome 1 : les outils isotopiques appliqués à la gestion des ressources en eau. Exemple de la masse d'eau des sables Infra-Molassiques. Rapport BRGM/RP-56291-FR, 192 p.

Palmer M.R., Helvaci C., Fallick A.E. (2004) - Sulphur, sulphate oxygen and strontium isotope composition of Cenozoic Turkish evaporates. *Chemical Geology*, **209**, 341-356.

Parkhurst D.L., Appelo, C.A.J. (2013) - Description of input and examples for PHREEQC version 3 - A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations: U.S. Geological Survey Techniques and Methods, book 6, chap. A43, 497 p.

Pearson F.J., Hanshaw B.B. (1970) - Sources of dissolved carbonate species in groundwater and their effects on carbon-14 dating In *Isotope Hydrology 1970*, IAEA Symposium 129, Mars 1970, Vienne, pp. 271-286.

Seguin J.J. (2003) - Outil de gestion des aquifères du Sud du Bassin Adour-Garonne - Année 4 Calage du modèle hydrodynamique en régime transitoire. Rapport BRGM/RP-52041-FR.

Serrano O. (2001) - Le Crétacé Supérieur - Paléogène du Bassin Compressif Nord-Pyrénéen (Bassin de l'Adour). Sédimentologie, Stratigraphie, Géodynamique. Thèse de doctorat : Université de Rennes 1, 252 p.

Wuilleumier A., André L., Cabaret O., Abou Akar A., Bardeau M., Mazurier C., Sasseville P-L. (2015) - Projet GAIA - Année 1. Collecte des données hydrogéologiques et hydrogéochimiques. Rapport final. BRGM/RP-64850-FR, 137 p.

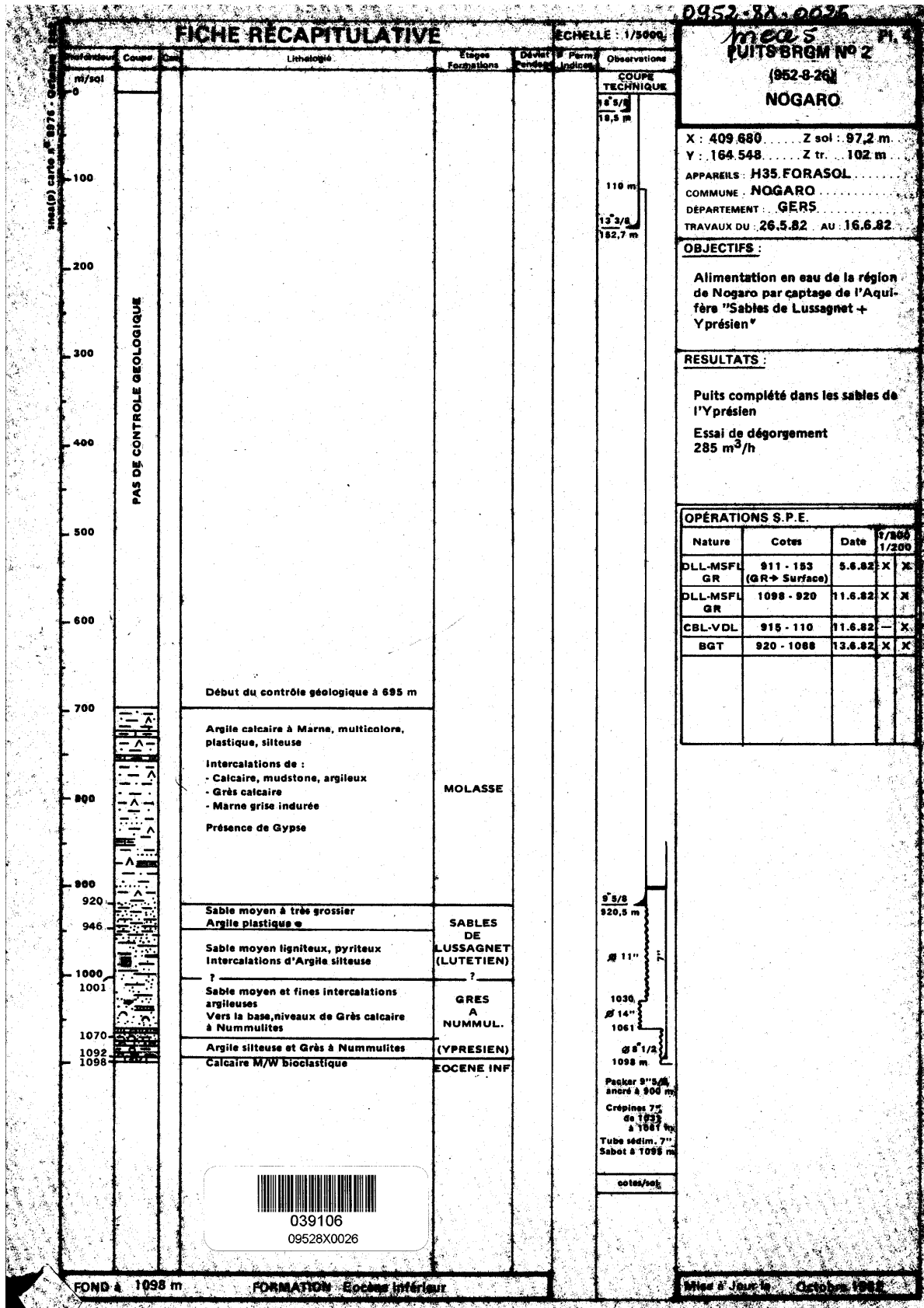
Wuilleumier A., Douez O. (2016) - Projet GAIA. Inter-comparaison des modèles hydrodynamiques existants. Rapport final. BRGM/RP-65498-FR, 148 p., 117 ill., 15 tabl., 5 ann.



## **Annexe 1**

# **Coupe technique et géologique du forage de Nogaro 2**







## **Annexe 2**

### **Compositions chimiques des eaux des forages de Nogaro 2, Eauze, Dému, LUG 57 et IZA 5**

**Paramètres physico-chimiques mesurés in-situ**

| Forage   | Date Mesure | Conductivité<br>( $\mu\text{S/cm}$ ) | pH   | T°C  | O <sub>2</sub> (%) | O <sub>2</sub><br>(mg/l) | Eh brut<br>(mV) | Eh corrigé/<br>ENH<br>(mV) |
|----------|-------------|--------------------------------------|------|------|--------------------|--------------------------|-----------------|----------------------------|
| Nogaro 2 | 19/04/2016  | 325                                  | 7.2  | 51   | 42                 | 2.35                     | -209            | -19                        |
|          | 18/07/2016  | 296                                  | 7.13 | 50.9 | 3.3                | 0.19                     | -284            | -94                        |
|          | 04/10/2016  | Non mesuré                           |      |      |                    |                          |                 |                            |
|          | 10/01/2017  | 347                                  | 7.17 | 48.7 |                    | 0.65                     | -199            | -7                         |
|          | 21/03/2017  | 384                                  | 7.75 | 42.0 | 72.8               | 4.84                     | -129            | 68                         |
|          | 27/06/2017  | 328                                  | 7.55 | 49.1 | 20.2               | 1.18                     | -93             | 98                         |
|          | 03/10/2017  | 296                                  | 7.48 | 47.2 | 39.7               | 2.29                     | -112            | 81                         |
|          | 14/12/2017  | 338                                  | 7.71 | 46   | 67.8               | 4.04                     | -122            | 72                         |
|          | 01/03/2018  | 365                                  | 7.85 | 44.5 | 82.5               | 4.77                     | 94              | 289                        |
| Eauze    | 19/04/2016  | 308                                  | 7.32 | 36.4 | 3.2                | 0.21                     | -169            | 30                         |
|          | 18/07/2016  | 307                                  | 7.14 | 36.4 | 5.9                | 0.4                      | -215            | -14                        |
|          | 04/10/2016  | Non mesuré                           |      |      |                    |                          |                 |                            |
|          | 10/01/2017  | 333                                  | 7.4  | 31.5 |                    | 0.53                     | -165            | 39                         |
|          | 21/03/2017  | 325                                  | 7.73 | 31.8 | 48.2               | 3.76                     | -80             | 124                        |
|          | 27/06/2017  | 330                                  | 7.75 | 35.5 | 58.8               | 4.01                     | 53              | 254                        |
|          | 03/10/2017  | 319                                  | 7.23 | 27.8 | 53.9               | 4.2                      | 135             | 342                        |
|          | 14/12/2017  | 326                                  | 7.65 | 32.0 | 38.5               | 2.78                     | 18.4            | 222                        |
|          | 01/03/2018  | 316                                  | 7.5  | 34.9 | 40.5               | 2.71                     | 95              | 297                        |
| Dému     | 19/04/2016  | 298                                  | 7.38 | 48.1 | 29.1               | 1.83                     | -187            | 5                          |
|          | 18/07/2016  | 293                                  | 7.14 | 53.9 | 56.8               | 3.10                     | -219            | -31                        |
|          | 04/10/2016  | Non mesuré                           |      |      |                    |                          |                 |                            |
|          | 10/01/2017  | 326                                  | 7.25 | 53.2 |                    | 0.10                     | -198            | -10                        |
|          | 21/03/2017  | 323                                  | 7.44 | 46.6 | 14.3               | 0.91                     | -145            | 48                         |
|          | 27/06/2017  | 325                                  | 7.46 | 48.0 | 15.8               | 0.88                     | -125            | 67                         |
|          | 03/10/2017  | 296                                  | 7.21 | 53.0 | 3.0                | 0.16                     | -211            | -22                        |
|          | 14/12/2017  | 326                                  | 7.45 | 49.0 | 15.0               | 0.92                     | -173            | 18                         |
|          | 01/03/2018  | 462                                  | 7.25 | 48.0 | 12.8               | 0.73                     | 52              | 244                        |
| LUG 57   | 10/05/2016  | 350                                  | 7.49 | 40.3 | 14.8               | 0.93                     | -218            | -20                        |
|          | 19/07/2016  | 350                                  | 7.36 | 39.8 | 15                 | 0.95                     | -224            | -26                        |
|          | 12/10/2016  | Non mesuré                           |      |      |                    |                          |                 |                            |
|          | 09/01/2017  | 382                                  | 7.24 | 40.1 |                    | 1.27                     | -143            | 55                         |
|          | 21/03/2017  | 380                                  | 7.53 | 35.9 | 52.1               | 3.60                     | -102            | 99                         |
|          | 27/06/2017  | 377                                  | 7.5  | 40.4 | 27.1               | 1.73                     | -127            | 71                         |
|          | 03/10/2017  | 353                                  | 7.48 | 30.0 | 35.1               | 2.64                     | -135            | 70                         |
|          | 14/12/2017  | 375                                  | 7.67 | 24.9 | 24.6               | 2.06                     | -26             | 183                        |
|          | 01/03/2018  | 338                                  | 7.90 | 20.7 | 45.5               | 3.85                     | 75              | 287                        |
| IZA 5    | 10/05/2016  | 329                                  | 7.91 | 18.4 | 2                  | 0.19                     | -299            | -85                        |
|          | 19/07/2016  | 332                                  | 7.34 | 19.5 | 5.8                | 0.52                     | -277            | -64                        |
|          | 12/10/2016  | Non mesuré                           |      |      |                    |                          |                 |                            |
|          | 09/01/2017  | 367                                  | 7.57 | 21.1 |                    | 0.75                     | -234            | -22                        |
|          | 21/03/2017  | 351                                  | 7.53 | 27.0 | 14.1               | 1.17                     | -223            | -15                        |
|          | 27/06/2017  | 354                                  | 7.84 | 24.4 | 16.1               | 1.31                     | -197            | 12                         |
|          | 03/10/2017  | 400                                  | 7.85 | 21.4 | 29.0               | 2.40                     | -98             | 114                        |
|          | 14/12/2017  | 375                                  | 7.78 | 16.0 | 16.4               | 1.58                     | -179            | 37                         |
|          | 01/03/2018  | non artésien - aucun prélèvement     |      |      |                    |                          |                 |                            |

**Concentrations en éléments majeurs**

| Date<br>prélèvement                            | Forage   | Ca   | Mg  | K   | Na   | SO <sub>4</sub> | HCO <sub>3</sub> | Cl   | SiO <sub>2</sub> |
|--|----------|------|-----|-----|------|-----------------|------------------|------|------------------|
| Concentrations exprimées en mg.L <sup>-1</sup> |          |      |     |     |      |                 |                  |      |                  |
| avr.-16  | NOGARO 2 | 39.2 | 5.2 | 5.2 | 14.5 | 24.2            | 155              | 7.5  | 23.1             |
|  | EAUZE    | 35.4 | 5.1 | 5.7 | 15.7 | 19.5            | 153              | 6.5  | 17.4             |
|  | DEMU     | 32.2 | 4.5 | 5.8 | 17.5 | 6.8             | 160              | 7.9  | 24.5             |
|  | LUG57    | 43.4 | 7.7 | 6.7 | 10.4 | 13.6            | 183              | 5.9  | 18.3             |
|  | IZA5     | 44.7 | 5.9 | 6.0 | 10.3 | 1.3             | 188              | 7.5  | 22.0             |
| juil.-16                                       | NOGARO 2 | 37.4 | 4.5 | 5.3 | 14.1 | 10.1            | 153              | 7.6  | 24.3             |
|  | EAUZE    | 36.0 | 5.3 | 5.8 | 16.4 | 18.8            | 150              | 6.5  | 18.9             |
|  | DEMU     | 33.7 | 4.6 | 5.9 | 18.2 | 7.0             | 157              | 7.9  | 26.3             |
|  | LUG57    | 44.5 | 7.4 | 6.2 | 10.2 | 9.3             | 184              | 5.7  | 16.6             |
|  | IZA5     | 46.7 | 5.9 | 5.6 | 11.1 | 0.6             | 192              | 8.0  | 22.2             |
| oct.-16  | NOGARO 2 | 37   | 4.6 | 5.7 | 14.6 | 10.5            | 153              | 7.7  | 24.3             |
|  | EAUZE    | 36.8 | 5.6 | 6.2 | 17.0 | 23.9            | 149              | 6.6  | 18.9             |
|  | DEMU     | 32.7 | 4.6 | 6.3 | 18.9 | 6.3             | 158              | 8.0  | 25.7             |
|  | LUG57    | 45   | 7.9 | 6.7 | 10.9 | 18.4            | 178              | 5.8  | 20.4             |
|  | IZA5     | 47.3 | 6.4 | 6.0 | 12.3 | 5.3             | 188              | 5.3  | 22.2             |
| janv.-17                                       | NOGARO 2 | 39.1 | 4.9 | 5.5 | 15.2 | 17.9            | 152              | 7.8  | 24.1             |
|  | EAUZE    | 35.8 | 5.4 | 6.0 | 16.6 | 19.8            | 148              | 6.7  | 18.4             |
|  | DEMU     | 33.2 | 4.6 | 6.0 | 19.0 | 6.8             | 155              | 8.1  | 25.8             |
|  | LUG57    | 46.9 | 8.0 | 6.5 | 10.8 | 20.5            | 172              | 5.9  | 20.7             |
|  | IZA5     | 47.4 | 6.3 | 5.8 | 10.9 | 3.9             | 187              | 7.7  | 21.6             |
| mars-17  | NOGARO 2 | 37.2 | 4.7 | 5.6 | 14.9 | 14.9            | 154              | 7.5  | 24.6             |
|  | EAUZE    | 35.3 | 5.3 | 5.9 | 16.6 | 19.8            | 151              | 6.3  | 18.8             |
|  | DEMU     | 33.1 | 4.7 | 6.0 | 18.6 | 6.4             | 159              | 7.8  | 26.5             |
|  | LUG57    | 45.8 | 7.8 | 6.4 | 10.5 | 20.2            | 180              | 5.6  | 20.4             |
|  | IZA5     | 45.2 | 5.9 | 5.6 | 10.3 | 7.3             | 180              | 6.9  | 21.2             |
| juin-17  | NOGARO 2 | 38.8 | 4.4 | 5.5 | 14.5 | 10.7            | 149              | 7.6  | 25.4             |
|  | EAUZE    | 37.3 | 5.1 | 6.0 | 16.7 | 19.7            | 145              | 6.5  | 19.5             |
|  | DEMU     | 34.5 | 4.4 | 6.2 | 18.7 | 6.9             | 152              | 7.9  | 26.8             |
|  | LUG57    | 47.4 | 7.2 | 6.1 | 10.2 | 20.2            | 170              | 5.7  | 21.3             |
|  | IZA5     | 47.4 | 5.8 | 5.7 | 11.3 | 6.0             | 179              | 8.5  | 21.8             |
| oct.-17  | NOGARO 2 | 37.3 | 4.5 | 5.2 | 13.5 | 10.6            | 154              | 7.7  | 23.1             |
|  | EAUZE    | 36.6 | 5.3 | 5.8 | 15.6 | 20.2            | 151              | 6.7  | 17.3             |
|  | DEMU     | 33.4 | 4.6 | 5.9 | 17.5 | 6.6             | 158              | 8.1  | 24.5             |
|  | LUG57    | 46.8 | 7.5 | 6.1 | 9.5  | 20.0            | 178              | 5.8  | 19.8             |
|  | IZA5     | 46.7 | 6.6 | 5.7 | 16.7 | < 0.5           | 196              | 18.7 | 18.8             |
| déc.-17  | NOGARO 2 | 37.6 | 4.5 | 5.6 | 14.1 | 11.2            | 153              | 7.7  | 24.3             |
|  | EAUZE    | 37.1 | 5.3 | 6.0 | 16.4 | 23.2            | 149              | 6.5  | 19.1             |
|  | DEMU     | 33.2 | 4.6 | 6.1 | 18.0 | 6.4             | 157              | 8.0  | 26.3             |
|  | LUG57    | 47.1 | 7.7 | 6.3 | 10.2 | 20.1            | 180              | 5.7  | 19.8             |
|  | IZA5     | 46.3 | 6.2 | 5.8 | 12.6 | < 0.5           | 192              | 11.0 | 18.9             |
| mars-18  | NOGARO 2 | 44.8 | 6.3 | 5.7 | 16.3 | 46.7            | 154              | 7.6  | 24.9             |
|  | EAUZE    | 35.4 | 5.3 | 5.9 | 15.9 | 20.4            | 151              | 6.7  | 19.0             |
|  | DEMU     | 32.8 | 4.5 | 6.0 | 17.8 | 7.1             | 158              | 8.1  | 26.5             |
|  | LUG57    | 44.2 | 7.8 | 6.0 | 10.1 | 12.4            | 184              | 5.8  | 13.3             |

**Concentrations en éléments traces**

| Date<br>prélèvement | Forage   | Al<br>µg/l | B<br>µg/l | Ba<br>µg/l | F<br>mg/l | Fe<br>mg/l | Li<br>µg/l | Mn<br>µg/l | Sr<br>µg/l | Br<br>µg/l |
|---------------------|----------|------------|-----------|------------|-----------|------------|------------|------------|------------|------------|
| avr.-16             | NOGARO 2 | 1.13       | 43.9      | 120        | 0.2       | 0.208      | 11.20      | 7.8        | 496        | < LQ       |
|                     | EAUZE    | 0.66       | 42.2      | 95         | 0.2       | 0.108      | 10.20      | 12.3       | 466        | 81         |
|                     | DEMU     | 1.61       | 42.3      | 113        | 0.2       | 0.232      | 13.80      | 13.4       | 457        | 54         |
|                     | LUG57    | < LQ       | 14.1      | 194        | 0.1       | 0.347      | 7.56       | 65.0       | 614        | 46         |
|                     | IZA5     | 0.82       | 18.9      | 128        | 0.1       | 0.142      | 5.89       | 59.0       | 415        | 42         |
| juil.-16            | NOGARO 2 | 1.02       | 24.3      | 111        | 0.2       | 0.225      | 9.38       | 6.4        | 438        | <50        |
|                     | EAUZE    | 0.58       | 42.5      | 97         | 0.2       | 0.104      | 10.20      | 11.9       | 475        | <50        |
|                     | DEMU     | 1.40       | 43.7      | 112        | 0.2       | 0.210      | 13.90      | 12.1       | 468        | <50        |
|                     | LUG57    | <0.20      | 15.5      | 167        | 0.1       | <0.02      | 7.54       | 63.1       | 575        | 72         |
|                     | IZA5     | <0.20      | 20.8      | 134        | 0.1       | 0.724      | 6.45       | 66.5       | 431        | <50        |
| oct.-16             | NOGARO 2 | 1.92       | 24.7      | 104        | 0.2       | 0.184      | 9.88       | 5.2        | 455        | 145        |
|                     | EAUZE    | 1.16       | 47.6      | 90         | 0.2       | 0.109      | 11.60      | 12.6       | 480        | 208        |
|                     | DEMU     | 1.05       | 47.2      | 105        | 0.2       | 0.265      | 15.20      | 19.4       | 457        | 99         |
|                     | LUG57    | 0.64       | 15.0      | 181        | 0.1       | 1.225      | 8.75       | 53.8       | 613        | 131        |
|                     | IZA5     | 0.73       | 20.8      | 133        | 0.1       | 0.292      | 7.08       | 54.2       | 440        | 49         |
| janv.-17            | NOGARO 2 | 0.6        | 29.3      | 91.4       | 0.2       | 0.309      | 8.27       | 10.9       | 436        | < LQ       |
|                     | EAUZE    | 0.56       | 35.4      | 80.5       | 0.2       | 0.349      | 8.97       | 13.9       | 445        | < LQ       |
|                     | DEMU     | 0.73       | 33.3      | 93.1       | 0.2       | 0.343      | 10.9       | 12.7       | 434        | < LQ       |
|                     | LUG57    | 1.20       | 11.8      | 168        | 0.1       | 1.017      | 7.41       | 34.6       | 573        | < LQ       |
|                     | IZA5     | 0.54       | 17        | 117        | 0.1       | 0.218      | 6.03       | 31.2       | 409        | < LQ       |
| mars-17             | NOGARO 2 | NM         | 33.7      | 109        | 0.2       | 0.192      | 11.2       | 6.63       | 442        | 157        |
|                     | EAUZE    | NM         | 45.1      | 91.7       | 0.2       | 0.191      | 11.2       | 17.1       | 458        | 147        |
|                     | DEMU     | NM         | 46.1      | 109        | 0.2       | 0.122      | 15.3       | 18.6       | 440        | 129        |
|                     | LUG57    | NM         | 13        | 183        | 0.1       | 0.45       | 8.28       | 45.7       | 590        | 186        |
|                     | IZA5     | NM         | 19.6      | 111        | 0.1       | 0.109      | 6.65       | 23.3       | 402        | 164        |
| juin-17             | NOGARO 2 | 1.52       | 25.4      | 110.00     | 0.1       | < LQ       | 9.86       | 6.4        | 433        | 29.0       |
|                     | EAUZE    | 1.90       | 46.6      | 111.00     | 0.2       | 0.173      | 14.5       | 12.6       | 473        | 34.6       |
|                     | DEMU     | 0.61       | 46.0      | 95.60      | 0.2       | < LQ       | 10.5       | 12.4       | 470        | 27.1       |
|                     | LUG57    | 0.59       | 14.1      | 185.00     | 0.1       | 0.735      | 8.1        | 15.8       | 609        | 37.5       |
|                     | IZA5     | 1.29       | 20.7      | 125.00     | 0.1       | 0.187      | 6.76       | 41.8       | 444        | 25.5       |
| oct.-17             | NOGARO 2 | 1.52       | 22.6      | 112.00     | 0.1       | 0.2        | 10.1       | 5.52       | 414        | 67.1       |
|                     | EAUZE    | 1.47       | 41.5      | 96.20      | 0.2       | < 0.02     | 10.7       | 12.6       | 462        | 44.7       |
|                     | DEMU     | 1.46       | 42.3      | 113.00     | 0.2       | 0.376      | 14.4       | 17.2       | 450        | 49.0       |
|                     | LUG57    | < 0.5      | 12.3      | 186.00     | 0.1       | 1.331      | 7.84       | 390.       | 587        | 30.6       |
|                     | IZA5     | 1.51       | 18.2      | 192.00     | < 0.1     | 2.602      | 7.16       | 222.0      | 425        | 32.2       |
| déc.-17             | NOGARO 2 | 1.90       | 25.7      | 105.00     | 0.1       | 0.05       | 10.4       | 5.51       | 309        | 28.6       |
|                     | EAUZE    | 0.90       | 43.4      | 86.60      | 0.2       | < 0.02     | 10.5       | 11.5       | 330        | 24.8       |
|                     | DEMU     | 1.43       | 42.5      | 106.00     | 0.2       | 0.352      | 14.0       | 15.0       | 319        | 34.0       |
|                     | LUG57    | 0.53       | 13.7      | 122.00     | 0.1       | 0.51       | 7.91       | 52.3       | 420        | 29.2       |
|                     | IZA5     | 0.61       | 19.0      | 119.00     | 0.1       | 3.052      | 6.69       | 222        | 293        | 40.9       |
| mars-18             | NOGARO 2 | 1.95       | 79.5      | 101.87     | 0.2       | 0.027      | 14.71      | 8.83       | 570        | 30.9       |
|                     | EAUZE    | 0.69       | 44.3      | 93.93      | 0.2       | 0.036      | 9.51       | 12.13      | 455        | 28.4       |
|                     | DEMU     | 2.00       | 45.1      | 109.36     | 0.2       | 0.214      | 14.68      | 11.84      | 449        | 36.4       |
|                     | LUG57    | < LQ       | 12.1      | 151.52     | 0.1       | 1.041      | 7.15       | 84.39      | 548        | 44.8       |

&lt; LQ : inférieur aux limites de détection ; NM : Non mesuré



**Concentrations isotopiques**

| Date prélèvement | Forage   | $\delta^{13}\text{C}$ | Act. $^{14}\text{C}$ | $\delta^{11}\text{B}$ | $\pm 2\sigma(m)$ | $\delta^{11}\text{B}$ | $\pm 2\sigma(m)$ | $\delta^{34}\text{S} (\text{SO}_4)$ | $\delta^{18}\text{O} (\text{SO}_4)$ |
|------------------|----------|-----------------------|----------------------|-----------------------|------------------|-----------------------|------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|
|                  |          | ‰ vs PDB              | (pCM)                | ‰ (essai 1)           | ‰                | ‰ (essai 2)           | ‰                | ‰ vs CDT                            | ‰ vs SMOW                           |
| Avr.-2016        | NOGARO 2 | -14.60                | 1.8                  | 11.67                 | 0.06             | 11.49                 | 0.11             | 8.00                                | 13.5                                |
|                  | EAUZE    | -14.60                | 1.5                  | 13.97                 | 0.06             | 13.58                 | 0.08             | 9.30                                | 12.8                                |
|                  | DEMU     | -15.30                | 3.2                  | 17.94                 | 0.04             | 17.70                 | 0.09             | 15.90                               | 10.2                                |
|                  | LUG57    | -11.90                | 1.6                  | 14.69                 | 0.05             | 14.35                 | 0.05             | -1.40                               | 6.9                                 |
|                  | IZA5     | NM                    | NM                   | 15.44                 | 0.09             | 15.43                 | 0.12             | 7.00                                | 11.5                                |
| Juil.-16         | NOGARO 2 | -14.80                | 1.5                  | 17.57                 | 0.07             | 17.63                 | 0.09             | 6.80                                | 10.6                                |
|                  | EAUZE    | -14.30                | 0.5                  | 15.23                 | 0.09             | 15.32                 | 0.06             | 9.50                                | 14.1                                |
|                  | DEMU     | -15.50                | 1.1                  | 19.47                 | 0.06             | 19.44                 | 0.11             | 15.80                               | 10.7                                |
|                  | LUG57    | -12.30                | 1.3                  | 15.29                 | 0.05             | 15.74                 | 0.07             | 9.80                                | 8.9                                 |
|                  | IZA5     | NM                    | NM                   | 16.21                 | 0.06             | 16.18                 | 0.06             | < LQ                                | < LQ                                |
| Oct.-16          | NOGARO 2 | -14.30                | 2.0                  | 15.45                 | 0.05             | 15.83                 | 0.08             | 6.80                                | 10.4                                |
|                  | EAUZE    | -14.00                | 0.1                  | 13.68                 | 0.06             | 13.31                 | 0.08             | 9.50                                | 12.3                                |
|                  | DEMU     | -15.30                | 1.5                  | 19.03                 | 0.05             | 18.81                 | 0.08             | 18.40                               | 11.5                                |
|                  | LUG57    | -12.00                | 1.8                  | 16.3                  | 0.18             | 16.49                 | 0.22             | 16.70                               | 11.2                                |
|                  | IZA5     | NM                    | NM                   | 15.14                 | 0.07             | 15.38                 | 0.07             | 8.50                                | 10.5                                |
| Janv.-17         | NOGARO 2 | -15.00                | 1.3                  | 10.95                 | 0.09             | 11.23                 | 0.05             | 8.10                                | 13.0                                |
|                  | EAUZE    | -14.80                | < 0.44               | 14.65                 | 0.08             | 14.28                 | 0.06             | 10.00                               | 13.0                                |
|                  | DEMU     | -15.70                | 0.9                  | 18.67                 | 0.05             | 18.61                 | 0.07             | 17.90                               | 11.0                                |
|                  | LUG57    | -12.40                | 1.1                  | 14.20                 | 0.06             | 14.19                 | 0.05             | -2.90                               | 6.4                                 |
|                  | IZA5     | NM                    | NM                   | 13.56                 | 0.08             | 13.53                 | 0.05             | 14.80                               | 11.4                                |
| Mars-17          | NOGARO 2 | -15.20                | 1.7                  | 9.64                  | 0.06             | 9.89                  | 0.04             | 7.00                                | 11.00                               |
|                  | EAUZE    | -15.30                | 0.8                  | 12.80                 | 0.05             | 12.90                 | 0.04             | 10.00                               | 12.60                               |
|                  | DEMU     | -15.50                | 0.8                  | 19.02                 | 0.17             | 18.84                 | 0.10             | 17.80                               | 11.40                               |
|                  | LUG57    | -12.70                | 1.2                  | 13.59                 | 0.09             | 13.91                 | 0.07             | -2.70                               | 6.50                                |
|                  | IZA5     | -12.40                | 2.8                  | 15.03                 | 0.06             | 15.10                 | 0.08             | 12.20                               | 9.40                                |
| Juin-17          | NOGARO 2 | -14.60                | 1.9                  | 16.90                 | 0.18             | 17.09                 | 0.14             | 6.50                                | 10.50                               |
|                  | EAUZE    | -13.70                | 1.4                  | 14.86                 | 0.27             | 14.66                 | 0.09             | 9.60                                | 12.60                               |
|                  | DEMU     | -15.30                | 1.1                  | 18.80                 | 0.07             | 18.94                 | 0.06             | 17.10                               | 11.20                               |
|                  | LUG57    | -12.60                | 5.2                  | 14.70                 | 0.11             | 14.95                 | 0.09             | -2.90                               | 6.70                                |
|                  | IZA5     | -12.30                | 3.3                  | 14.77                 | 0.13             | 14.52                 | 0.14             | 14.80                               | 10.50                               |
| Oct.-17          | NOGARO 2 | -13.00                | 1.5                  | 17.16                 | 0.03             | 17.17                 | 0.05             | 6.60                                | 11.10                               |
|                  | EAUZE    | -13.80                | 0.9                  | 14.63                 | 0.03             | 14.25                 | 0.05             | 9.80                                | 13.30                               |
|                  | DEMU     | -14.90                | 0.9                  | 18.65                 | 0.04             | 18.82                 | 0.04             | 20.00                               | 11.80                               |
|                  | LUG57    | -11.70                | 1.5                  | 14.8                  | 0.04             | 15.14                 | 0.03             | -2.50                               | 6.80                                |
|                  | IZA5     | -11.30                | 2.5                  | 14.95                 | 0.08             | 15.37                 | 0.05             | < LQ                                | < LQ                                |
| Déc.17           | NOGARO 2 | -13.80                | 2.2                  | 15.94                 | 0.04             | 15.97                 | 0.05             | 6.70                                | 11.20                               |
|                  | EAUZE    | -11.30                | 1.7                  | 14.18                 | 0.05             | 13.98                 | 0.06             | 9.20                                | 13.40                               |
|                  | DEMU     | -14.50                | 1.1                  | 18.91                 | 0.10             | 18.77                 | 0.18             | 17.80                               | 11.40                               |
|                  | LUG57    | -13.30                | 1.1                  | 15.33                 | 0.04             | 15.22                 | 0.06             | -2.30                               | 6.60                                |
|                  | IZA5     | NM                    | NM                   | 15.85                 | 0.04             | 15.70                 | 0.03             | < LQ                                | < LQ                                |
| Mars-18          | NOGARO 2 | -13.80                | 1.5                  | 7.98                  | 0.05             | 7.57                  | 0.18             | 8.20                                | 14.60                               |
|                  | EAUZE    | -14.00                | 0.6                  | 13.89                 | 0.06             | 13.76                 | 0.23             | 9.20                                | 13.20                               |
|                  | DEMU     | -15.10                | 1                    | 18.62                 | 0.05             | 18.17                 | 0.04             | 17.90                               | 11.50                               |
|                  | LUG57    | -11.70                | 1.3                  | 17.77                 | 0.12             | 17.41                 | 0.08             | 10.70                               | 9.60                                |

&lt; LQ : inférieur aux limites de détection ; NM : Non mesuré



**Centre scientifique et technique**  
**Direction de l'Eau, de l'Environnement, des Procédés**  
**et Analyses (DEPA)**  
3, avenue Claude-Guillemain - BP 36009  
45 060 Orléans Cedex 2 - France  
Tél. : 02 38 64 34 34  
[www.brgm.fr](http://www.brgm.fr)

**Direction régionale Nouvelle-Aquitaine**  
Parc technologique Europarc  
24 avenue Léonard de Vinci  
33 600 Pessac - France  
Tél. : 05 57 26 52 70