

**SÉQUESTRATION GÉOLOGIQUE DU CO<sub>2</sub>**  
CHAIRE DE RECHERCHE

**INRS**  
Université d'avant-garde



**Séquestration géologique du carbone**  
**Mesures préliminaires des gaz de sols de la région de Bécancour**  
**Établissement de valeurs de référence**  
**Identification des zones de surveillance**

INRSCO2-2013-V2.16

**Par**

**Jean-Christophe Aznar, Michel Malo et Hilda Paucar**

**Soumis au Ministère du Développement durable, de l'Environnement et des Parcs**

**2013 – Québec**

**R-1435**

Institut national de la recherche scientifique – Centre Eau Terre Environnement, 490 de la Couronne, Québec, Qc, G1K 9A9

Téléphone : (418) 654-2535 ; Télécopieur : (418) 654-2600 ; Site internet : [chaireco2.ete.inrs.ca](http://chaireco2.ete.inrs.ca)



## TABLE DES MATIÈRES

Préambule.....	9
Sommaire .....	11
1. Introduction.....	13
2. Méthodes.....	18
2.1. Aperçu synoptique des travaux effectués .....	18
2.2. Zone d'étude .....	20
2.3. Éléments de géologie.....	22
2.4. Approche multi espèces.....	25
2.4.1. Gaz majeurs.....	25
2.4.2. Gaz rare : radon.....	25
2.5. Échantillonnage du CO <sub>2</sub> atmosphérique.....	30
2.6. Variabilité temporelle des concentrations en gaz de sol.....	32
2.6.1. Dispositif utilisé .....	32
2.6.2. Concentrations en CO <sub>2</sub> et CH <sub>4</sub> .....	35
2.6.3. Concentrations en hydrocarbures gazeux.....	35
2.6.4. Radon .....	36
2.6.5. Absences non significatives pour les gaz majeurs .....	36
2.7. Stratégie d'échantillonnage des gaz de sol.....	37
2.8. Prélèvement des gaz majeurs et mesure des concentrations.....	39

2.8.1.	Échantillonnage des gaz .....	39
2.8.2.	Mesure des concentrations en gaz majeurs .....	41
2.9.	Prélèvement du radon et mesure des concentrations .....	41
2.10.	Prélèvement du CO <sub>2</sub> pour l'analyse des ratios isotopiques <sup>13</sup> C/ <sup>12</sup> C.....	44
2.11.	Mesures de variables de contrôle .....	47
3.	Résultats .....	48
3.1.	Valeurs de référence .....	48
3.2.	CO <sub>2</sub> atmosphérique.....	50
3.2.1.	Correction des données enregistrées par le spectromètre infrarouge laser .....	50
3.2.2.	Distributions spatiales des concentrations.....	51
3.2.3.	Distributions spatiales des anomalies de ratios isotopiques <sup>13</sup> C/ <sup>12</sup> C.....	52
3.2.4.	Variations des concentrations en fonction des ratios .....	54
3.2.5.	Variabilité annuelle .....	56
3.2.6.	Variabilités saisonnières.....	57
3.3.	Gaz majeurs dans les sols .....	57
3.3.1.	Relation entre les composés .....	57
3.3.2.	Origine biogénique et thermogénique du méthane.....	62
3.3.3.	Carte des anomalies en gaz majeurs.....	63
3.3.4.	Relation entre les anomalies en hydrocarbures et en CO <sub>2</sub> .....	68
3.3.5.	Cartes de densité des anomalies en hydrocarbures gazeux .....	68

3.4.	Radon dans les sols.....	71
3.4.1.	Carte des anomalies de radon dans les sols.....	71
3.4.2.	Relation avec les anomalies d'hydrocarbures gazeux.....	72
3.4.3.	Relation avec les mesures de rayonnement gamma aéroportées.....	72
3.4.4.	Relation avec l'occupation du sol .....	74
3.5.	Relation entre les anomalies et la faille de Yamaska .....	78
3.6.	Relations entre les anomalies en hydrocarbures gazeux et le Groupe de Lorraine .....	82
3.6.1.	Carte des anomalies versus géologie.....	82
3.6.2.	Tests des relations .....	83
4.	Discussion .....	85
4.1.	Généralités .....	85
4.2.	Effets confondants .....	85
4.3.	Intérêt des valeurs de référence obtenues .....	85
4.4.	Complémentarité des différents gaz .....	86
4.5.	Relation avec la faille de Yamaska.....	87
4.6.	Relation avec les Formations de Pontgravé et de Nicolet .....	88
4.7.	Étanchéité des roches de couverture.....	88
5.	Recommandations.....	89
5.1.	Identifier l'origine des gaz.....	89
5.2.	Mesurer les flux .....	90

5.3. Organiser des suivis des gaz de sol pendant et après injection.....	90
6. Remerciements.....	91
7. Références.....	93
Annexe 1: Effet de la profondeur sur les gaz de sol.....	99
Annexe 2: Effet de l’humidité et de la température sur les concentrations en gaz .....	103
Ensemble de la zone d’étude .....	103
Site témoin.....	103
Ensemble des sites.....	107
Annexe 3 : Influence de la présence de puits d’exploration .....	110
Généralités.....	110
Données analysées.....	111
Visualisation des données brutes.....	112
Distribution des sites avec des anomalies versus sans anomalies .....	116
Interprétation des résultats.....	116
Annexe 4: Influence des routes .....	118
Généralités.....	118
Données utilisées.....	118
Analyses.....	120
Distributions des distances minimales.....	120
Test non paramétrique de Wilcoxon .....	121

Interprétation des résultats.....	122
Pondération équivalente de chaque observation .....	123
Historique de la zone d'étude.....	123
Annexe 5: Mesure semi-quantitative du radon dans les sols .....	124



## Préambule

Le Ministère du Développement durable, de l'Environnement et des Parcs (MDDEFP) a octroyé une subvention à l'INRS-ETE pour mettre en place une chaire de recherche sur la séquestration géologique du CO<sub>2</sub> au Québec. Le décret n° 714-2008 approuvant l'octroi a été adopté le 25 juin 2008. La subvention d'une durée de cinq ans (exercices financiers 2008-2009 à 2012-2013) provient du Fonds vert. La création de la chaire s'inscrit dans l'action 20 du Plan d'action 2006-2012 sur les changements climatiques intitulé «Le Québec et les changements climatiques, un défi pour l'avenir».

Les travaux de la chaire permettent d'explorer les principales options de séquestration géologique du CO<sub>2</sub> au Québec. Les objectifs principaux sont d'évaluer la capacité de stockage du CO<sub>2</sub> au Québec, de tester quelques sites pour leur potentiel de rétention du CO<sub>2</sub> après injection, et de former une expertise au Québec dans le domaine de la technologie du captage et de la séquestration du CO<sub>2</sub> (CSC). Les objectifs secondaires pour arriver à répondre aux objectifs principaux sont de: 1) faire l'inventaire des réservoirs géologiques potentiels au Québec; 2) faire l'inventaire des sources majeures d'émission de CO<sub>2</sub> au Québec; 3) compiler les travaux réalisés ailleurs dans le monde sur la technologie du CSC; 4) caractériser les paramètres géologiques et géophysiques des réservoirs potentiels; 5) évaluer leur capacité de stockage; 6) choisir des sites potentiels pour réaliser des essais d'injection de CO<sub>2</sub>; 7) tester un ou deux sites avec suivi sur une période d'un à deux ans pour évaluer la capacité de rétention du CO<sub>2</sub> et les risques de fuite.

En marge des objectifs mentionnés plus haut, des volets de recherche complémentaires concernent l'évaluation des enjeux socio-économiques, la réalisation d'études technico-économiques pour l'implantation d'une usine pilote et finalement l'élaboration de méthodes de surveillance environnementale de l'implantation de la technologie du CSC au Québec.

Les cinq volets de recherche suivants de la chaire permettront d'atteindre les objectifs visés et de réaliser les travaux complémentaires :

1. Inventaire ;
2. Caractérisation ;
3. Capacité de stockage ;
4. Test-pilote ;
5. Enjeux socio-économiques.

Le présent rapport cadre dans le volet Caractérisation. Il dresse un portrait des différents gaz de sol mesurés dans la région de Bécancour pour établir des valeurs de référence avant injection et cibler des zones sensibles où concentrer les efforts de surveillance. Il complète un premier rapport concernant la caractérisation environnementale du territoire concerné. La caractérisation de la physicochimie des sols est incluse dans ce premier rapport (Paucar *et al.*, 2013; rapport INRSCO2-2013-V2.15).



## Sommaire

Sur le site de Bécancour, identifié comme un site potentiel de séquestration géologique du carbone (SGC) au Québec, un échantillonnage extensif des gaz majeurs dans les sols superficiels a été réalisé durant les étés et les automnes 2011 et 2012. Les gaz échantillonnés étaient le dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>), le méthane ou CH<sub>4</sub>, l'éthane (C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>) le propane (C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>) et le butane (C<sub>4</sub>H<sub>10</sub>). Un gaz rare a également été mesuré: le radon.

Les valeurs de référence (*baseline*) pour la région de Bécancour peuvent être définies comme les valeurs moyennes enregistrées sur le territoire avant injection. Elles serviront à identifier des changements potentiels après injection. Des mesures ont été effectuées sur l'ensemble du territoire et en particulier dans des zones où la présence de failles est documentée en sous-surface (faille de Yamaska). Les rehaussements de concentrations observés dans ces zones constituent des valeurs de référence particulièrement intéressantes. Elles montrent que des fortes concentrations en gaz peuvent être observées à la surface, naturellement, sans intervention d'opérations d'injection de gaz ou de fluides.

Les concentrations en dioxyde de carbone atmosphérique sont de 370 ppmv. Le rapport isotopique <sup>13</sup>C/<sup>12</sup>C moyen est de -10 pour mille. La répartition spatiale des ratios <sup>13</sup>C/<sup>12</sup>C ainsi que la relation inverse observée entre les ratios <sup>13</sup>C/<sup>12</sup>C et les concentrations de CO<sub>2</sub> laissent supposer qu'il serait possible d'utiliser cet outil pour identifier les sources du CO<sub>2</sub> mesuré dans l'atmosphère au niveau du sol.

La mesure en surface des gaz comme l'éthane (C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>), le propane (C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>) et le butane (C<sub>4</sub>H<sub>10</sub>) dans les sols traduit la présence d'émanations de gaz profonds (géogéniques). Les facteurs confondants analysés pouvant traduire une origine superficielle n'expliquent pas la présence des anomalies enregistrées. Le gaz carbonique (CO<sub>2</sub>) et le méthane (CH<sub>4</sub>) peuvent être reliés au cycle de la matière organique dans les sols et donc peuvent avoir une origine superficielle (biogénique) aussi bien que géogénique.

Sur les territoires retenus pour la SGC, les zones sensibles où se localisent des émanations de gaz profonds doivent être identifiées et surveillées. Les failles et les fractures naturelles pourraient être des voies préférentielles de remontées du CO<sub>2</sub> et des gaz associés en cas de fuite des réservoirs de stockage de CO<sub>2</sub>.

Les données de concentration des différents gaz majeurs fournissent une information concordante. Les fortes concentrations (anomalies) pour les hydrocarbures gazeux, pour le CO<sub>2</sub> et le CH<sub>4</sub> et pour les ratios isotopiques du CO<sub>2</sub> se rencontrent préférentiellement dans le secteur nord de la zone d'étude. Ces anomalies semblent organisées en structures spatiales linéaires d'orientation SO-NE parallèles à la faille de Yamaska en sous-surface et au contact géologique entre les Formations de Pontgravé et de Bécancour. Elles sont concordantes spatialement bien que non colocalisées. Les anomalies en Rn sont localisées plus au sud et ne semblent pas spatialement corrélées aux anomalies observées pour les autres gaz.

Les concentrations anormales en gaz observées en surface peuvent provenir de sources profondes, des roches réservoirs sous l'Utica, mais elles peuvent aussi avoir une origine plus superficielle. Une hypothèse qui expliquerait la relation spatiale entre les anomalies en gaz et la faille de Yamaska est que la faille de Yamaska permettrait la migration naturelle des gaz d'origine profonde vers la surface. Une hypothèse alternative est que les gaz mesurés en surface pourraient provenir de formations géologiques superficielles appartenant au Groupe de Lorraine riches en matière organique (Formations de Nicolet et de Pontgravé). Des poches de gaz pourraient donc être localisées dans des formations plus superficielles. Il en va de même pour le radon (Rn) qui peut provenir d'un enrichissement en uranium ou radium de formations géologiques superficielles ou de nappes phréatiques. Si ces hypothèses étaient confirmées, l'étanchéité des roches de couverture ne serait pas remise en cause.

Même si des concentrations fortes sont mesurées dans les sols, les quantités de gaz libérées peuvent aussi être faibles. Dans ce cas, les risques de fuites seraient a priori moins importants. Pour trancher, il serait nécessaire d'identifier l'origine des gaz observés dans les sols et de mesurer les flux libérés. L'association entre les remontées de gaz profonds et la présence de discontinuités dans les couvertures géologiques doit être confirmée.

Les territoires où se rencontrent préférentiellement les anomalies en gaz sont les territoires où devraient se concentrer les efforts de surveillance futurs. Un réseau de surveillance fixe automatisé pourrait être installé ou des surveillances ponctuelles pourraient être effectuées.

L'approche développée sur le site pilote de Bécancour est transférable aux territoires québécois où des activités de SGC seraient envisagées. Elle est également facilement transférable à la surveillance environnementale des activités d'exploitation des ressources gazières. La méthodologie pourrait être en particulier transférée spécifiquement à la surveillance des territoires faisant l'objet d'exploitations gazières faisant intervenir ou non des techniques de fracturation hydraulique.

Cette étude présente les premières mesures de radon effectuées dans les sols à un niveau régional au Québec. Elles peuvent être utilisées pour des recherches concernant plus spécifiquement le radon, un gaz cancérigène faisant l'objet d'attention.

## 1. Introduction

La séquestration géologique du dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>) est une des solutions envisagée pour réduire les émissions de gaz à effet de serre (IPCC, 2007). Il s'agit de capter le CO<sub>2</sub> à la source (au niveau des grands émetteurs), de le purifier, de le transporter et de le stocker en profondeur. Le CO<sub>2</sub> concentré dans les réservoirs pourrait même être à l'avenir utilisé comme source de carburant de synthèse ou valorisé dans d'autres applications (Song, 2006). Cependant, aussi prometteuse que soit cette technologie, les exemples observés ailleurs dans le monde ont montré que la séquestration géologique du CO<sub>2</sub> (SGC) était conditionnelle à sa rentabilité mais aussi à l'adhésion du public aux projets (Huijts *et al.*, 2007). La SCG est encore largement méconnu du public (Moutenet *et al.*, 2012) et les applications effectives du procédé encore rares à l'échelle mondiale. La mise en œuvre d'un programme de SGC nécessite donc une démonstration claire que ces activités ne s'accompagnent pas de problèmes environnementaux (Sharma *et al.*, 2007). La confiance et l'adhésion des différents acteurs s'obtiennent par l'information concernant le procédé mais surtout grâce à une surveillance approfondie de l'environnement et une communication transparente des résultats de ces suivis. Au Québec, de nombreux chercheurs du MDDEFP appartenant à différentes directions réalisent au quotidien cette tâche de suivi des différentes activités industrielles, agricoles, et plus généralement de tout type d'installation susceptible de modifier les conditions des milieux naturels et humanisés (par exemple, et pour n'en citer qu'une, l'équipe du suivi de la qualité de l'air). Les diverses mesures enregistrées (par exemple des concentrations de polluants dans l'atmosphère) permettent, surtout en cas de conflit, de rationaliser les débats qui seraient sans cela largement dirigés par des arguments plus affectifs. La mise au point de méthodes de surveillance et de gestion du risque des activités de SGC est donc indispensable.

Avant de procéder aux suivis des activités industrielles, il est nécessaire de réaliser des recherches approfondies pour déterminer quels sont les paramètres à mesurer, comment les mesurer, à quel endroit (où) et à quel moment les mesurer (quand). Par conséquent, des programmes de surveillance environnementaux sont mis en place dès le début des projets de SGC (Preston *et al.*, 2009). La surveillance

environnementale doit être effectuée durant les opérations d'injection et après mais également avant l'injection (Simone *et al.*, 2009). Le développement de méthodes de suivis (quoi, comment, où et quand) doit permettre en définitive d'anticiper toute remontée massive de CO<sub>2</sub>. Dès la première phase de recherche de la chaire de séquestration géologique du CO<sub>2</sub> au Québec, une approche approfondie et élargie permettant l'installation d'un futur réseau de surveillance a été adoptée.

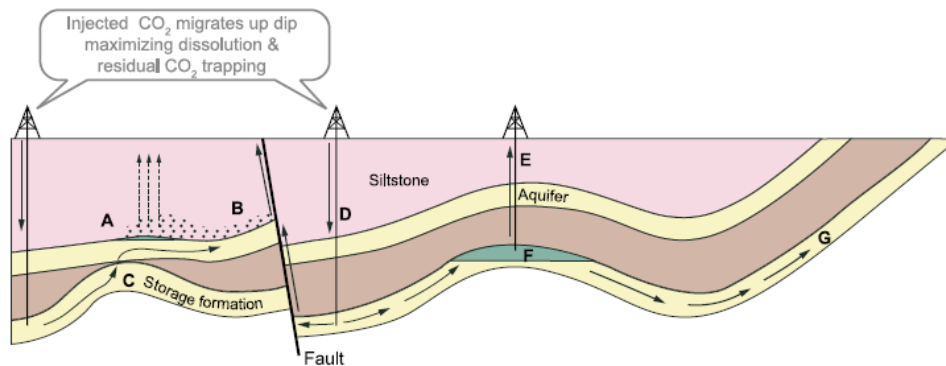
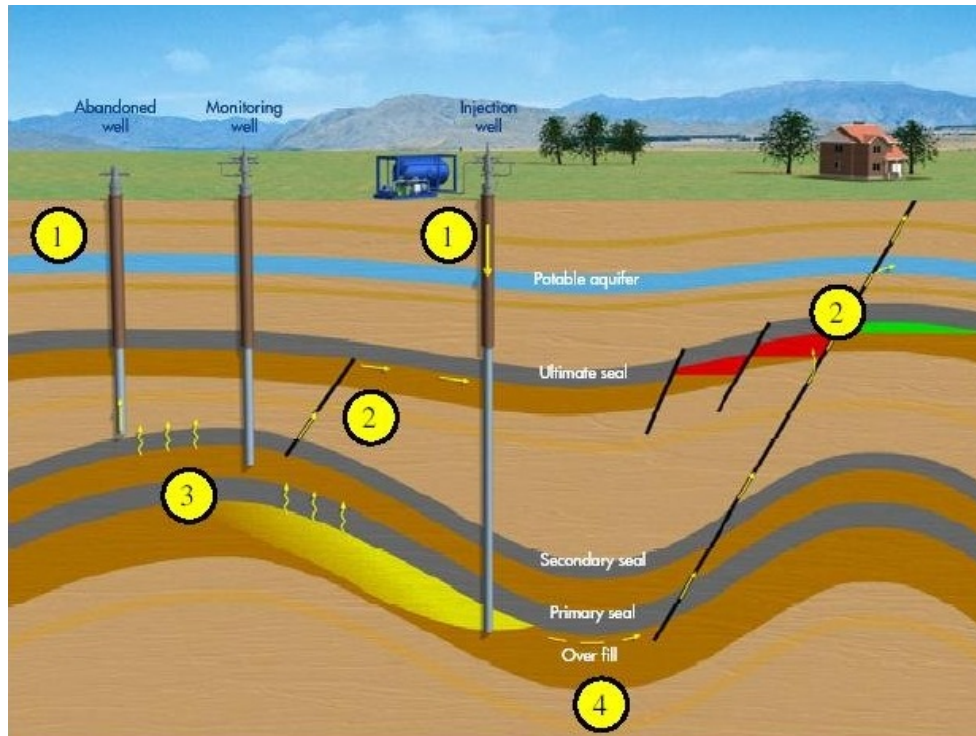
Une croyance largement répandue consiste à considérer que le CO<sub>2</sub> est un gaz inerte dont la toxicité serait reliée à la diminution du pourcentage d'oxygène dans l'air inhalée. Il n'en est rien. Il existe une toxicité propre au CO<sub>2</sub> bien documentée (e.g. Benson *et al.*, 2007). À de fortes teneurs, il affecte les systèmes sanguins et respiratoires. Le CO<sub>2</sub> est le régulateur de la respiration. Il agit sur le système nerveux qui commande le système respiratoire. Lorsque les concentrations de CO<sub>2</sub> dans l'air commencent à atteindre les 3 %, les premiers symptômes, comme une respiration accélérée ou des maux de tête apparaissent. À 10%, en fonction des durées d'exposition, on peut observer le décès de sujets. C'est sur la base de ces considérations que plusieurs pays ont d'ailleurs établi des critères ou des normes. Les concentrations maximales acceptables se situent aux alentours de 2 %.

Lors des phases de caractérisation des réservoirs géologiques, une attention particulière est portée quant à la rétention des gaz en profondeur. Une zone d'enfouissement est jugée adéquate si une roche réservoir est surmontée d'une roche de couverture imperméable. De ce fait, lorsqu'un territoire a été sélectionné adéquatement, les risques de fuites ultérieures pourraient être jugés minimes. Par conséquent, une tentation forte serait de concentrer les efforts de surveillance sur la chaîne de transformation, transport et injection du CO<sub>2</sub>, où la défaillance de système pourrait conduire à la libération brutale de grandes quantités de CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère.

Cependant, une roche de couverture imperméable ne l'est jamais totalement. Des remontées naturelles de gaz profonds sont souvent observées sur les territoires. Elles révèlent la présence de réseaux de failles qui devront par la suite faire l'objet d'attention (Fig. 1). On pense en effet que ce serait des voies de migration préférentielles du CO<sub>2</sub> et des gaz

associés en cas de fuite des réservoirs. Les remontées de gaz injectés pourraient être localisées au niveau des points d'injection (forages), mais également le long des réseaux de failles naturelles (Annunziatellis *et al.*, 2008). La migration de CO<sub>2</sub> pourrait également entraîner celle d'autres gaz plus toxiques, comme le radon. Parmi les critiques adressées aux technologies

impliquant l'injection de gaz ou de fluides en surpression dans les formations géologiques, certaines concernent la possibilité de réactiver des failles inactives. L'identification des discontinuités géologiques est donc essentielle pour mesurer les flux naturels et juger de modifications postérieures à l'activité.



**Potential Escape Mechanisms**

<p><b>A.</b> CO<sub>2</sub> gas pressure exceeds capillary pressure &amp; passes through siltstone</p>	<p><b>B.</b> Free CO<sub>2</sub> leaks from A into upper aquifer up fault</p>	<p><b>C.</b> CO<sub>2</sub> escapes through 'gap' in cap rock into higher aquifer</p>	<p><b>D.</b> Injected CO<sub>2</sub> migrates up dip, increases reservoir pressure &amp; permeability of fault</p>	<p><b>E.</b> CO<sub>2</sub> escapes via poorly plugged old abandoned well</p>	<p><b>F.</b> Natural flow dissolves CO<sub>2</sub> at CO<sub>2</sub> / water interface &amp; transports it out of closure</p>	<p><b>G.</b> Dissolved CO<sub>2</sub> escapes to atmosphere or ocean</p>
--	---	---	--	---	---	--

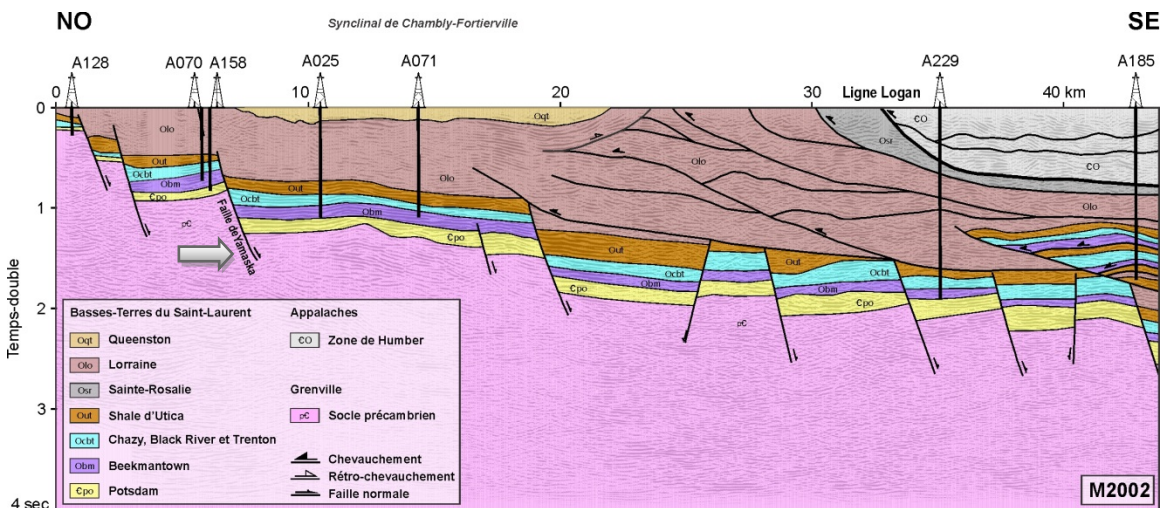
**Figure 1.** Les fuites de gaz injectés (figure du haut) concernent (1) les puits d'injection et abandonnés, (2) les failles et les fractures, (3) les mauvaises étanchéités de la roche de couverture et (4) les zones latérales de migration (Sharma *et al.*, 2007). Les risques associés aux activités de stockage géologique du CO<sub>2</sub> sont construits sur ce schéma (figure du bas, IPCC, 2007).

La présence de failles, de ruptures dans la couverture géologique sont donc au centre des préoccupations (Fig. 1, bas). L'étanchéité de la roche de couverture est d'ailleurs si importante que certains auteurs ont jugé que les activités de SGC étaient incompatibles avec l'exploitation gazière lorsque des technologies de fracturation hydraulique de la roche réservoir (shale) sont mises en œuvre (Elliot et Celia, 2012).

Il est essentiel de considérer lors de la définition de la zone d'étude que les zones à prospecter sont nécessairement plus étendues que les zones où l'on injecte le CO<sub>2</sub>. Des travaux d'exploration pétrolière ont par exemple montré que des anomalies détectées en surface ne sont pas nécessairement localisées au-dessus des gisements, du fait de phénomènes de migration le long des réseaux de failles (Holys et Toth, 1996). Par conséquent, même si les sites d'injection concernent une surface relativement restreinte des territoires, les programmes de surveillance doivent être effectués régionalement (Leuning *et*

*al.*, 2008). En l'absence de modèle prédéfini, une approche possible consiste à se focaliser progressivement sur des territoires de plus en plus restreints. Par exemple, les échantillonnages régionaux permettent de dresser un premier portrait global des patrons des remontées éventuelles de gaz. Ils doivent par la suite être complétés par des relevés locaux avec des densités de points plus fortes (Jones et Pirkle, 2007). Dans une troisième étape, les mesures effectuées couplées aux modèles de circulation atmosphérique permettent de définir des stations permanentes de mesures à long terme (Jones et Pirkle, 2007). Il est nécessaire, finalement, que des mesures en continu soient effectuées en profondeur, dans les formations géologiques, pour anticiper des problèmes potentiels en surface.

La figure ci-dessous (Fig. 2) localise des failles et des fractures et résume les interrogations quant à la rétention du CO<sub>2</sub> dans les formations géologiques où il serait injecté.



**Figure 2 Profils sismiques M2002 qui traverse la région immédiate de Bécancour, juste au sud de Trois-Rivières Adaptée de Castonguay et al. (2010).**

La zone de Bécancour, notre zone d'étude, est traversée par la faille de Yamaska qui dans la région de Bécancour n'apparaît pas en surface (Fig. 2). Elle est scellée par les roches silicoclastiques à grain fin des flyschs du Lorraine tout comme les autres failles normales au NO de la faille de Yamaska sur la figure 2. La présence de fractures dans les roches de

couverture superficielles est aussi envisagée. Ces discontinuités pourraient être des zones de libération préférentielle de gaz profonds. En cas d'injection de CO<sub>2</sub>, un risque pourrait provenir des migrations importantes de CO<sub>2</sub> et d'autres gaz le long des fractures et de voir augmenter les concentrations de ces gaz dans l'atmosphère des territoires concernés. La présence de la faille de

Yamaska dans notre zone d'étude impliquait donc de porter une attention particulière à cette problématique.

L'identification des failles et des fractures à un niveau local et régional, peut être réalisée avec des méthodes géochimiques et géophysiques ou les deux. Les méthodes sismiques offrent un moyen robuste de mettre en évidence ces réseaux de discontinuités des couvertures géologiques. Cependant, le coût financier de ces méthodes limite leur utilisation à quelques transects. Quadriller un territoire avec des levés sismiques est réservé à l'exploration des ressources naturelles à fort potentiel financier comme le pétrole. De plus, les levés sismiques, même ceux réalisés avec de l'équipement léger, sont plus délicats à mettre en œuvre que les levés géochimiques. Les autorisations nécessaires sont plus difficiles à obtenir. L'instrumentation réclame sur le terrain plus d'expertise. D'ailleurs, en exploration des ressources naturelles, on procède souvent à des levés géochimiques avant de réaliser des levés sismiques afin de définir des zones cibles (Devine et Sears, 1977). Les levés géochimiques offrent également une mesure directe des éléments recherchés comme les concentrations en gaz.

Les gaz recueillis en surface des sols sont des indicateurs largement utilisés pour identifier les réseaux de failles et de fractures. On peut citer par exemple des gaz carbonés (les hydrocarbures gazeux comme l'éthane, le propane et le butane sont souvent mesurés), ou encore des gaz rares comme l'hélium, le radon et le thoron (Jones et Pirkle, 2007; Chadwick *et al.*, 2009; Voltattorni *et al.*, 2009). La mesure conjointe de différentes espèces gazeuses permet d'ailleurs de mieux définir les zones anomaliques où se rencontrent les fortes concentrations en gaz indicatrices des réseaux de failles et de fractures (Michel-le Pierres *et al.*, 2010). L'éthane, le propane, le butane sont souvent plus utilisés que le CO<sub>2</sub> ou le CH<sub>4</sub>. Ces gaz (aussi dénommés C2-C4 dans la littérature) sont censés être moins influencés par l'activité en surface des sols que le CO<sub>2</sub> et le CH<sub>4</sub> qui peuvent être produits par la décomposition de la matière organique, l'activité microbienne, ou d'autres processus biogéniques. Il est courant d'attribuer une origine thermogénique aux hydrocarbures gazeux. Les mesures de CO<sub>2</sub> et de CH<sub>4</sub> peuvent pourtant, malgré les biais potentiels être aussi de bons indicateurs de la présence de remontées de gaz profonds (Jones et Pirkle, 2007; Klusman, 2011). L'échantillonnage de ces gaz est plus facile que celui des hydrocarbures

gazeux. Au sol, l'instrumentation existante peut fournir des lectures rapides avec le niveau de précision adéquate pour un coût réduit. Il n'en va pas de même avec la mesure des concentrations en hydrocarbures gazeux qui réclament des dispositifs plus sophistiqués comme des chaînes de purification couplés à des chromatographes. Il existe même des méthodes aéroportées utilisant des instrumentations laser permettant de couvrir de vastes territoires et d'obtenir une imagerie exhaustive de l'ensemble des zones concernées ([www.boreal-laser.com](http://www.boreal-laser.com)). Le recueil de données de CH<sub>4</sub> et de CO<sub>2</sub> est donc particulièrement attractif pour surveiller de larges étendues et de manière répétée. Ceci même si des confusions sont possibles quant à l'origine thermogénique ou biogéniques des anomalies observées.

La répétabilité des mesures est recommandée pour juger de la probabilité de détection des fortes concentrations en gaz. Une attention particulière a été apportée à cet aspect car par expérience, il a été observé sur d'autres territoires au Québec que la répétabilité n'est pas toujours très bonne (Marc Richer-Lafèche, communication personnelle). Si les concentrations en gaz mesurées varient de manière importante au cours du temps, comme cela est montré généralement dans la littérature (Jones et Pirkle, 2007; Klusman, 2011), cela signifie que des secteurs anomaliques peuvent ne pas être détectés. La probabilité de détection étant inférieure à 1, cela signifie que les absences de fortes concentrations ne sont pas significatives au contraire des fortes concentrations, qui même observées une fois, révèlent la présence d'anomalie. Si la non-répétabilité des mesures est confirmée, les cartes de présence-absence de fortes concentrations qui sont produites habituellement dans les rapports sont à prendre avec beaucoup de circonspection. On ne peut en effet exclure que des zones entières, cartographiées comme non-anomaliques le soient. Le fait de s'appuyer sur des variables complémentaires (autres espèces de gaz, produits de télédétection...) et surtout de proposer un modèle statistique de présence d'anomalies permet de contourner ce problème. Le modèle peut mettre en évidence des zones propices aux anomalies mais qui n'ont pas été détectées au moment de l'échantillonnage. Cette manière de considérer les données, en termes de « présence seule », est largement employée en écologie lorsqu'il s'agit de traiter de données d'observations. La détection des anomalies est reliée en définitive à l'intensité de

l'échantillonnage. L'augmentation de la densité spatiale des mesures (ou leur répétition dans le temps) permet d'augmenter la probabilité de détection.

Les objectifs de ce rapport étaient donc d'identifier:

- des valeurs de référence (*baseline*) pour les concentrations en gaz (CO<sub>2</sub>, hydrocarbures gazeux, radon) et pour les ratios isotopiques du carbone <sup>13</sup>C/<sup>12</sup>C,
- les zones de libération de gaz sur le site de Bécancour afin de définir des zones sensibles devant faire dans le futur l'objet de suivis.

Pour ce faire, des mesures denses des concentrations en gaz majeurs (CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub> et hydrocarbures gazeux) et rare (radon), ainsi que

des mesures des ratios isotopiques du carbone <sup>13</sup>C/<sup>12</sup>C ont été effectuées dans les sols. Dans l'atmosphère, seules les mesures concernant le CO<sub>2</sub> ont été réalisées (concentrations et isotopie).

## 2. Méthodes

### 2.1. Aperçu synoptique des travaux effectués

Les mesures de gaz effectuées et présentées dans ce rapport sont présentées dans le tableau ci-dessous (Tab. 1).

D'autres travaux ont été effectués dans le volet géochimie de surface (Tab.2). Ils sont présentés dans un rapport complémentaire (Pauca *et al.*, 2013).

**Tableau 1. Mesures de gaz effectuées dans la région de Bécancour en 2011 et 2012.**

	Gaz atmosphérique	Gaz de sol
<b>Concentrations</b>		
CO <sub>2</sub>	X	X
Méthane		X
Butane, éthane, propane		X
Radon	(X)	X
<b>Ratios isotopiques</b>		
<sup>13</sup> C/ <sup>12</sup> C du CO <sub>2</sub>	X	X

**Tableau 2. Travaux effectués pour caractériser la zone d'étude et optimiser un échantillonnage d'hydrocarbure gazeux.**

<b>Sol</b>
pH, taux de matière organique, densité
Humidité et température au moment du prélèvement
Concentrations en éléments majeurs et en éléments traces
Carte pédologique
Granulométrie par unité pédologique
<b>Téledétection</b>
Ikonos haute résolution: planification de l'échantillonnage (identification de sites)
Landsat: optimisation des zones à échantillonner, pédologie

**Tableau 3. Recommandations de travaux de surveillance environnementale à effectuer dans le cadre des activités de SGC.**

Objectif	Réalisation Québec	Rodosta <i>et al.</i> 2011	National Energy Technology Laboratory, 2009	Chadwick <i>et al.</i> 2008	Forbes <i>et al.</i> 2008
<b>Atmosphère</b>					
Flux de CO <sub>2</sub>	non (phase 2)	Oui	Oui	Oui	Oui
Concentrations en CO <sub>2</sub>	Oui		Oui	Oui	Oui
Traceurs isotopiques	Oui		Oui		
<b>Sol</b>					
concentrations en CO <sub>2</sub>	Oui		Oui	Oui	Oui
isotope du CO <sub>2</sub>	Oui		Oui		
Hydrocarbures	Oui		Oui		Oui CH4
gaz rares sauf radon (Xe, Ar, Kr, He)	Non		Oui		
Téledétection	partielle		Oui	Oui	
concentrations en éléments				Oui	
Radon	Oui		Oui		
<b>Nappes</b>					
Physicochimie	non (hydrogéologie)	Oui	Oui	Oui	
<b>Faïlles</b>					
identification des failles	Oui	Oui		Oui	
<b>zones humides</b>					
caractérisation spécifique	Non	Oui			
<b>Global</b>					
caractérisation environnement	Oui	Oui			
incidence des fuites	Non		Oui		
identification des zones classées	Oui	Oui			
identification des zones sensibles	Oui	Oui			

La majorité de mesures effectuées correspondent à des recommandations de travaux de surveillance environnementale (« Best practices ») identifiées dans différents rapports de synthèse (Tab. 3).

A la lecture de ce tableau, il est visible que les travaux engagés dans le cadre de la chaire de SGC de Québec correspondent aux recommandations effectuées à un niveau international pour ce genre de projet.

Certains travaux recommandés n'ont pas été effectués. Les mesures des flux ou des gaz rares non radiogéniques ont été reportées à une seconde phase où l'objectif serait de porter une attention à des sites spécifiques. Les travaux concernant les aquifères sont un mandat qui concerne plus spécifiquement le champ disciplinaire de l'hydrogéologie. Ils n'ont pas été réalisés dans cette étude qui concerne la géochimie de surface. De plus, une caractérisation régionale des aquifères étant en cours de réalisation par le MDDEFP dans le cadre du Programme d'acquisition de connaissances sur les eaux souterraines (PACES; <http://www.mddefp.gouv.qc.ca/eau/souterraines/programmes/acquisition-connaissance.htm>), il aurait été peu judicieux de répéter les travaux effectués par les autres équipes de recherche. Une fois ces rapports déposés et les résultats disponibles, des travaux complémentaires spécifiques à la SGC pourraient être envisagés.

## 2.2. Zone d'étude

Au Québec, un bon site pour la SGC pourrait se situer dans la région de Bécancour (<http://chaireco2.ete.inrs.ca/?q=fr/objectifs>). S'y côtoient, en effet, des usines émettrices de CO<sub>2</sub> et un aquifère salin profond capable de servir de réservoir de stockage. C'est également une zone

pour laquelle on possède des données de puits d'exploration pétrolière et gazière, facilitant l'établissement d'un modèle géologique. La zone du parc industriel et portuaire de Bécancour, particulièrement attractive au vue de ses caractéristiques géologiques et de la présence de grands émetteurs (plus de 100 000 t de CO<sub>2</sub> par année), a donc été retenue comme un site potentiel d'injection. C'est dans cette région qu'a été définie la zone d'étude du présent rapport (Fig. 3).

La région de Bécancour présente un aspect contrasté. Les industries lourdes (aluminerie, industries chimiques,...) côtoient une flore et une faune diversifiées associées aux zones humides et au fleuve Saint-Laurent. Les populations, essentiellement regroupées dans la ville de Bécancour, trouvent dans ces territoires des sources d'activités professionnelles et récréatives (chasse, pêche). Lorsque les territoires ne sont pas occupés par des zones urbanisées ou des installations industrielles, ils sont occupés par des forêts de résineux et des zones agricoles actives ou abandonnées. Ces dernières ont été colonisées par une végétation basse de graminées, d'espèces ligneuses buissonnantes et d'espèces d'arbres pionniers (couvert de jeunes feuillus et de quelques pins). Le lecteur intéressé par la géographie de ce territoire pourra consulter un rapport complémentaire (Pauca *et al.*, 2013).

La zone sur laquelle est concentré l'échantillonnage représente environ 80 km<sup>2</sup>. Elle englobe une partie de la ville de Bécancour ainsi que le parc industriel et portuaire (Fig. 3). Sur ces territoires où vivent et travaillent des populations, la réalisation de suivis environnementaux est donc particulièrement nécessaire.



Figure 3. Zone d'étude. Vue aérienne générale. La ligne pointillée en rouge représente les limites de notre zone d'étude.

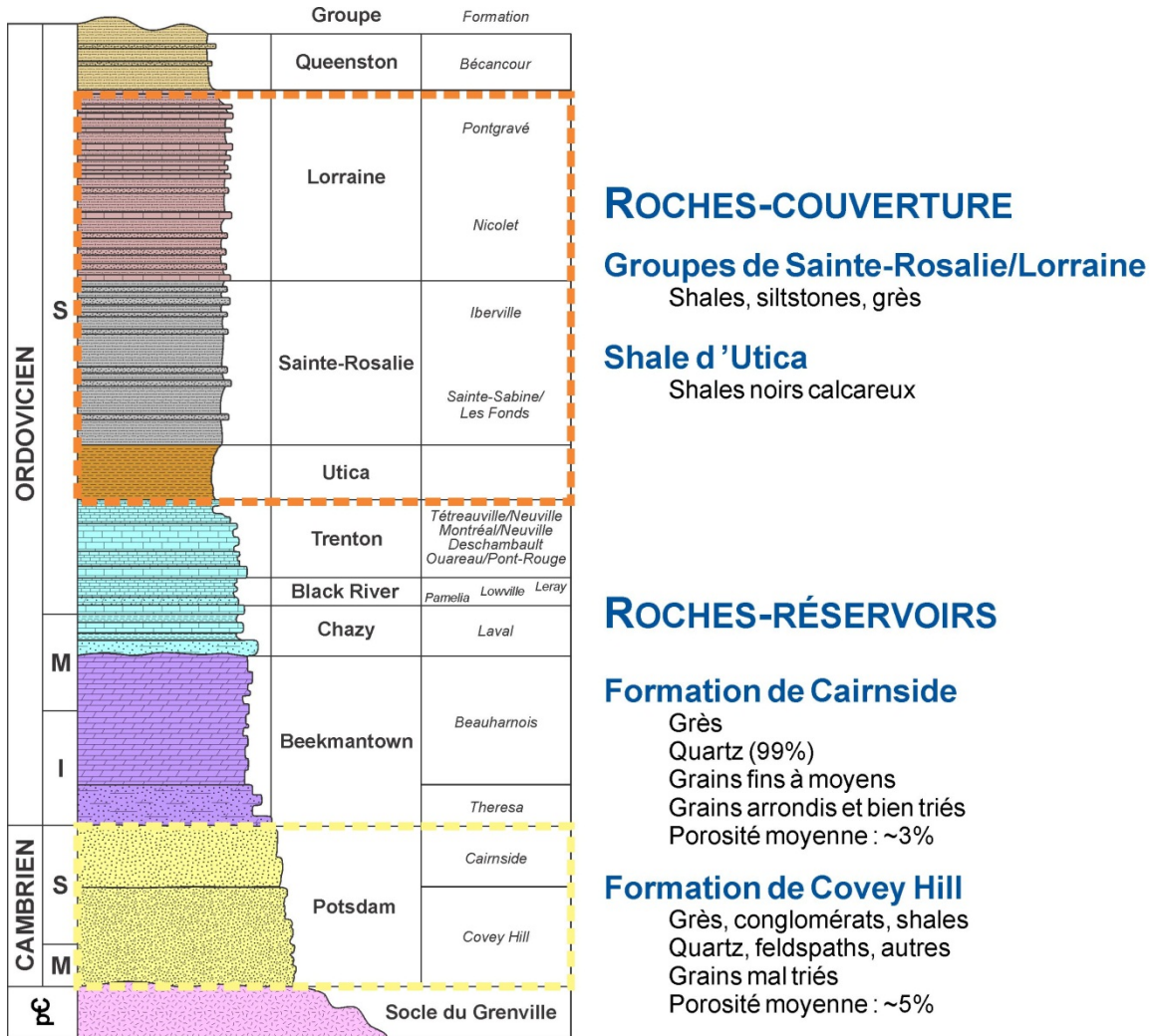


Figure 4. Séquence sédimentaire observée dans la région de Bécancour (source : Bédard *et al.*, 2012, Chaire de séquestration géologique du CO<sub>2</sub> de Québec). Les roches réservoirs pour le stockage du CO<sub>2</sub> et les roches de couverture assurant l'étanchéité du système (*caprock*) sont indiquées.

### 2.3. Éléments de géologie

Les Basses-Terres du Saint-Laurent sont constitués d'une séquence de formations sédimentaires de 1500 à 3000 m d'épaisseur reposant sur un socle grenvillien de composition granitique (Globensky, 1987).

La séquence est présentée dans la figure ci-dessous (Fig. 4).

A la base de la séquence, les Formations de Covey Hill et de Cairnside sont les formations dans lesquelles serait injecté le CO<sub>2</sub>. Plus haut dans la séquence, les shales d'Utica et du Lorraine assurent l'étanchéité du système.

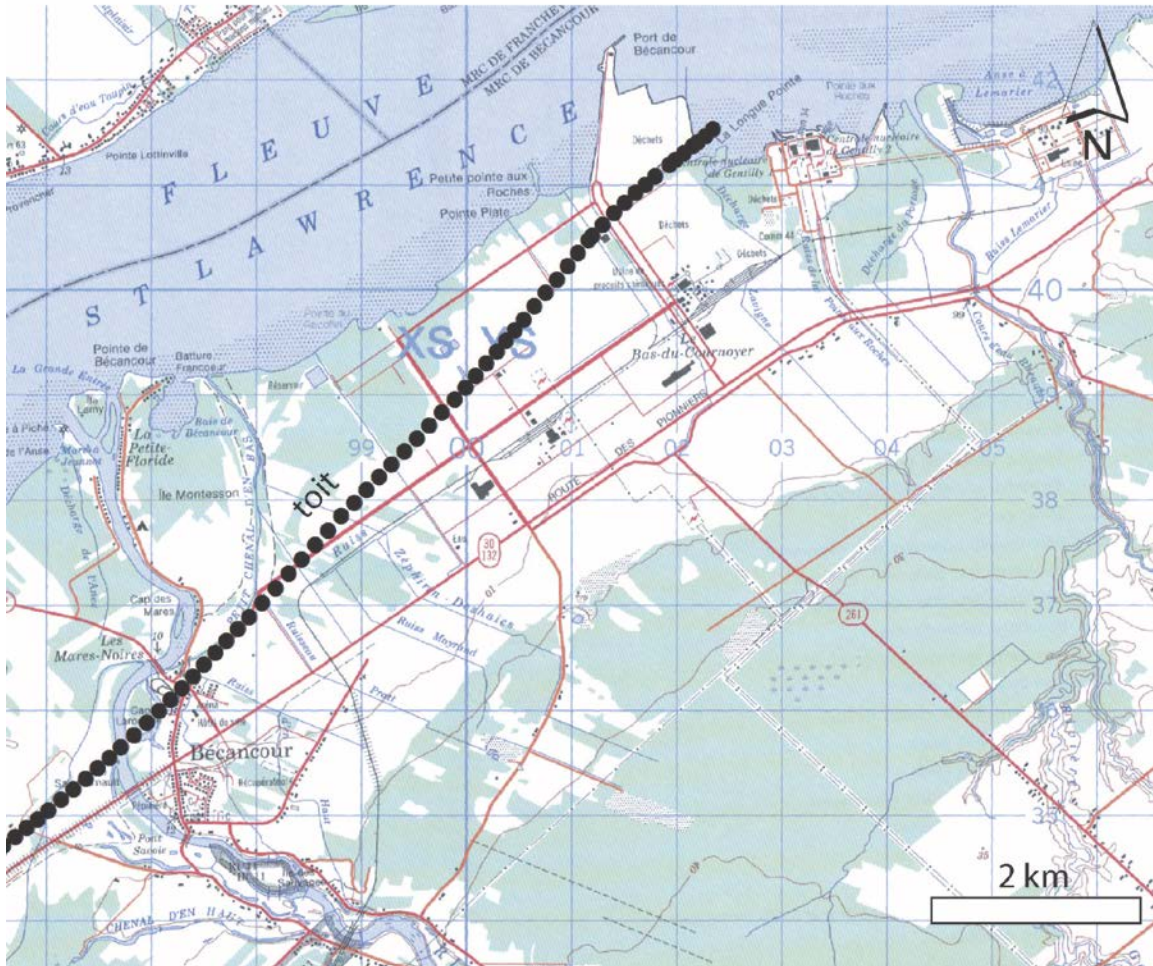
Cette séquence type est néanmoins perturbée localement par des discontinuités. La zone

d'étude est en effet traversée en sous-surface par la faille normale de Yamaska (Castonguay *et al.*, 2012). Sa présence suscite des interrogations quant à la migration de gaz profonds le long des discontinuités associées (faille et fractures). Les réseaux de failles et de fractures sont en effet des voies potentielles de migration en surface préférentielles des gaz stockés en profondeur (cf. introduction).

Dans la littérature citée, la présence de la faille de Yamaska est documentée à une échelle géographique régionale et la localisation de la faille est incertaine à une échelle plus locale. Un modèle géologique en trois dimensions a été établi dans le cadre des travaux menés dans la

Chaire de SGC. Ce modèle obtenu par combinaison de l'information géologique (analyse des carottes de forages) et sismique,

permet de projeter verticalement, en surface, la trace de la faille de Yamaska (Fig. 5).

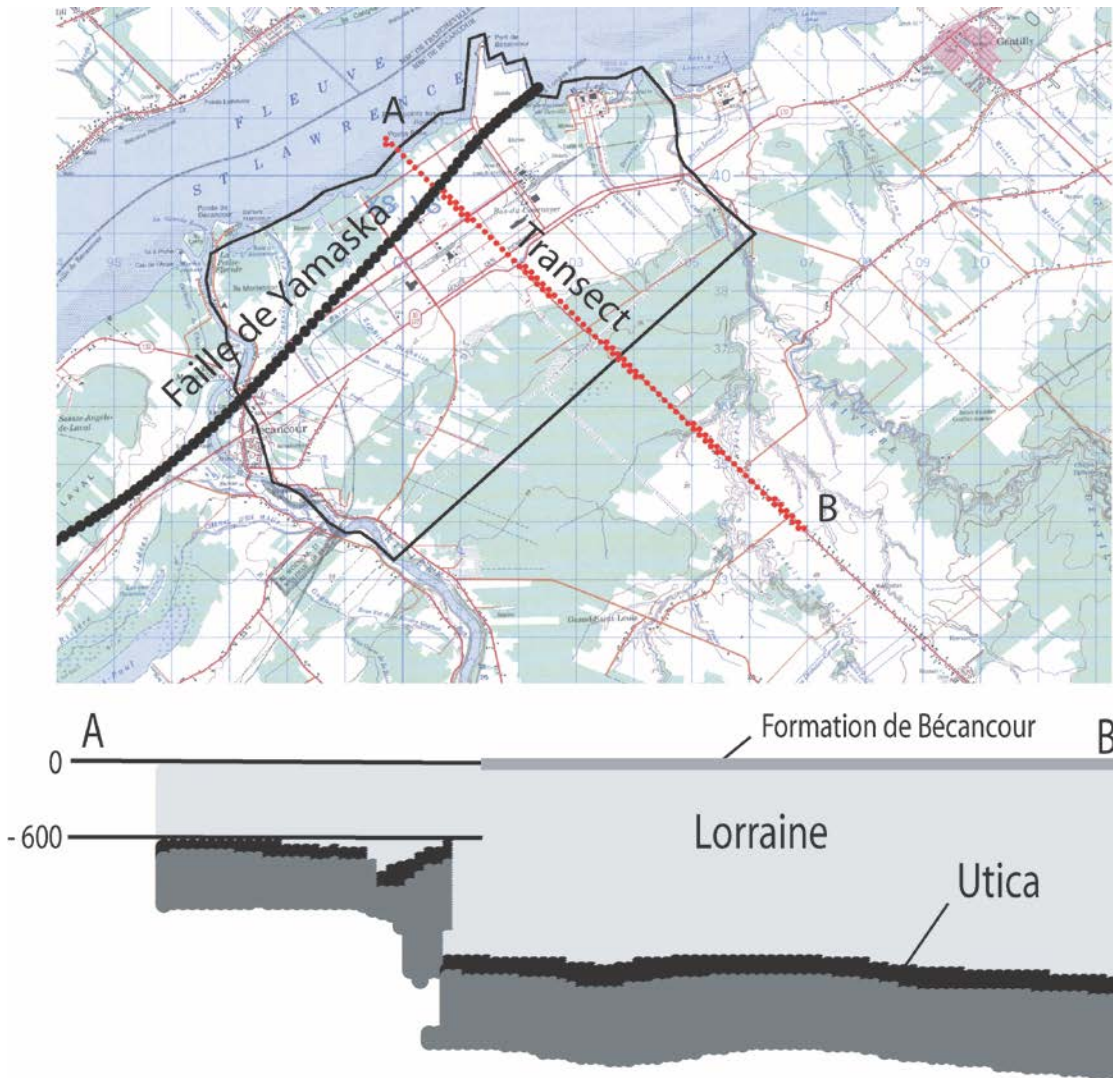


**Figure 5. Projection en surface de la faille de Yamaska (ronds noirs) à partir du modèle géologique 3D de la sous-surface. Le modèle géologique a été établi par l'équipe de la chaire de séquestration du CO<sub>2</sub> à partir des données de forages et sismiques disponibles.**

La figure 5 montre que la faille de Yamaska est présente en sous-surface dans la zone d'étude. Tel que mentionné plus haut, la ligne représentée sur la carte est une projection verticale au niveau de la surface d'une faille non affleurante (Castonguay *et al.*, 2010). Selon la coupe géologique du transect A-B issue du modèle géologique 3D (Fig. 6), la faille se termine à 600 mètres sous la surface.

Des fractures secondaires superficielles et d'extensions limitées sont peut-être également

présentes. Elles peuvent être associées à la faille de Yamaska et avoir été mise en place au moment de la déglaciation et du rebond post glaciaire (Adams, 1989). Leur présence n'est pas documentée dans le modèle géologique utilisée et par conséquent elles ne sont pas représentées. La faible résolution de l'information sismique utilisée ne permet pas de représenter les fractures dans le Lorraine.



**Figure 6. Coupe géologique simplifiée. Les unités inférieures à l'Utica sont représentées en gris foncé. La coupe montre que la faille de Yamaska ne recoupe pas les formations géologiques appartenant au Groupe de Lorraine et qu'une couverture de 600 mètres de cette unité recouvre son toit.**

Même si le contexte géologique semble confirmer l'hypothèse d'une étanchéité des roches de couverture, l'importance régionale de la faille de Yamaska et la présence potentielle de fractures superficielles impose d'étudier la possibilité de remontées de gaz profonds le long des discontinuités.

Les plus fortes concentrations en gaz observées en surface peuvent provenir de sources profondes, des roches réservoirs sous l'Utica, mais elles peuvent aussi avoir une origine plus

superficielle. Une hypothèse alternative est que certaines formations géologiques pourraient potentiellement générer des anomalies en gaz et notamment en hydrocarbures gazeux. Dans les Basses-Terres du Saint-Laurent, le Groupe de Lorraine contient les Formations de Nicolet et de Pontgravé connues comme étant très riches en fossiles (Globensky, 1987). Riches en matière organique, elles pourraient présenter des caractéristiques de roches mères sources d'hydrocarbures.

## 2.4. Approche multi espèces

Deux types de gaz ont été échantillonnés: des gaz majeurs (CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub> et hydrocarbures gazeux) et trace (radon).

### 2.4.1. Gaz majeurs

Il était indispensable de mesurer le CO<sub>2</sub> qui est le produit d'enfouissement des projets de SGC. Le CH<sub>4</sub> est une espèce abondante dans les gaz de sol et fait l'objet d'enjeux concernant les travaux d'exploitation gazière (une libération de CH<sub>4</sub> est parfois invoquée). La présence de ces gaz est fortement influencée par les processus biologiques de respiration et de décomposition de la matière organique. Le CO<sub>2</sub> et le CH<sub>4</sub> sont des indicateurs moins robustes que les hydrocarbures gazeux des zones anomaliques de remontées de gaz profonds mais leur avantage réside dans la facilité avec laquelle ils peuvent être obtenus. Le CO<sub>2</sub> et le CH<sub>4</sub> ont été recueillis à 50 cm de profondeur selon la même méthodologie que pour les hydrocarbures gazeux. À cette profondeur, les données recueillies sont moins influencées par les processus biologiques et les mélanges atmosphériques que les données prélevées en surface des sols.

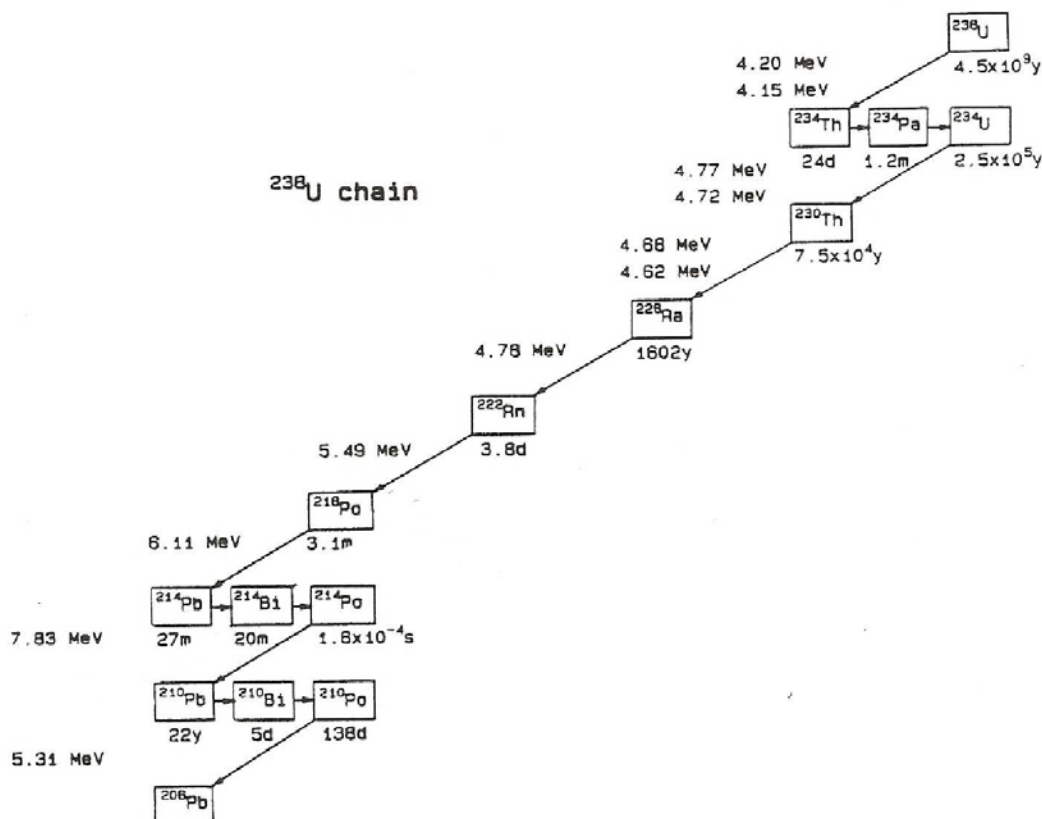
Les concentrations en hydrocarbures gazeux (éthane, propane et butane) sont nos variables principales. Deux isomères du butane ont été mesurées : le n-butane ou «butane normal» de formule moléculaire CH<sub>3</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub> et son isomère le i-butane de formule CH(CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>. La première molécule correspond à un arrangement linéaire des groupements des atomes de carbone alors que pour l'i-butane, trois atomes de carbone sont attachés sur un atome de carbone central. En

pratique, cette distinction chimique n'apporte pas d'information supplémentaire pour des objectifs de prospection des zones de libération d'hydrocarbures gazeux, car les concentrations en n-butane sont souvent reliées avec celles de l'i-butane.

Des résultats sont rapportés pour les deux isomères pour pouvoir effectuer d'éventuelles comparaisons futures. Les concentrations en hydrocarbures gazeux permettent de définir avec plus de robustesse des zones de remontées de gaz géogéniques (d'origine géologique) car elles sont moins affectées par les processus biologiques en surface. Ce sont des données plus dispendieuses à obtenir que des mesures de concentrations de CO<sub>2</sub> et de CH<sub>4</sub>. Dans ce travail ces gaz ont été échantillonnés sur l'ensemble de la zone pour pouvoir valider notre approche. Mais l'objectif final de ce travail est de mettre au point une approche permettant d'optimiser l'échantillonnage des hydrocarbures gazeux, c'est-à-dire de réduire leur échantillonnage à une partie du territoire concerné.

### 2.4.2. Gaz rare : radon

Finalement, le radon (Rn) venait compléter la population de gaz mesurés. Le Rn est un gaz radioactif qui est généré naturellement durant trois séries de désintégration : (i) la série de l'uranium (parent U<sub>238</sub>), (ii) la série du thorium (parent Th<sub>232</sub>) et (iii) la série de l'actinium (Ac<sub>227</sub>). Une quatrième série, celle du neptunium (Np<sub>239</sub>), a déjà existé mais a maintenant disparu. Le Rn produit par la décomposition du Th<sub>232</sub> et de l'Ac<sub>227</sub> a une courte demi-vie de 55.6 et 3.92 secondes respectivement. Au contraire, le Rn<sub>222</sub> produit par la décomposition radioactive de l'U<sub>238</sub> a une demi-vie de 4 jours (Fig. 7).



**Figure 7. Série de décomposition radioactive de l' $^{238}\text{U}$ .**

Par conséquent, le  $\text{Rn}_{222}$  est le principal isotope du Rn rencontré naturellement dans les gaz de sol et l'atmosphère. Il est à noter également que les concentrations en U et en Rn sont directement reliées. La décroissance radioactive du  $^{222}\text{Rn}$  produit des atomes non gazeux qui se déposent sur les surfaces (comme le  $^{218}\text{Po}$  le  $^{214}\text{Po}$ ). Certains détecteurs utilisés pour contrôler les niveaux de Rn dans les maisons utilisent cette particularité.

Le radon est un gaz rare. Il n'entre pas dans les réactions chimiques avec d'autres éléments. Il est transporté par advection, avec les autres gaz. Plus lourd que l'air, il peut être accumulé dans les sous-sols mal ventilés des maisons ou dans les phases gazeuses des sols. Le Rn peut aussi être rencontré sous forme dissoute dans l'eau et donc dans les nappes phréatiques.

La mobilité du radon dans les roches et les sédiments est limitée par son temps de demi-vie. Dans une roche de faible porosité sa capacité de

migration a été évaluée à quelques mètres. Par conséquent, le Rn mesuré dans les gaz de sol ne peut pas provenir de formations géologiques profondes sauf si des failles et des fractures facilitent sa migration vers la surface ou si on a des accumulations de parents comme l' $^{238}\text{U}$  et le  $\text{Ra}_{226}$  dans les failles, les sols ou les aquifères (Gascoyne et Barber, 1992; Gainon *et al.*, 2007; Koike *et al.*, 2009).

Il est couramment admis que les fortes concentrations de Rn mesurées en surface sont généralement observées lorsque les sols sont très perméables et qu'à l'opposé, les dépôts d'argile forment une barrière contre la migration du Rn. L'ajout d'une couche argileuse est d'ailleurs parfois une intervention proposée comme une remédiation (en plus de la ventilation) à l'accumulation du Rn dans le sous-sol des maisons. Par conséquent, une prédiction pour notre étude est que les concentrations de Rn dans

les gaz de sol devraient être plus fortes dans les sols de plus fortes perméabilités (sableux).

Comme souligné précédemment, le Rn est transporté par le dégazage naturel de la terre qui produit un flux permanent de CO<sub>2</sub>, d'azote et en moindre proportion d'hélium ou de méthane (Allard *et al.*, 1998). Ces dégazages sont naturellement observés dans des contextes de volcans actifs et de sources thermales. Dans le cas des projets de SCG, si des flux massifs de CO<sub>2</sub> étaient libérés, il est probable que les concentrations de Rn en surface augmenteraient également.

Les discontinuités fragmentant la croûte terrestre constituent les lieux préférentiels de ces circulations de gaz qui entraînent au passage le Rn (Lelsch *et al.*, 2010). Dans ces conditions, les vitesses de transport associées à ces processus peuvent atteindre plusieurs dizaines de mètres par heure. C'est pourquoi des quantités importantes de radon sont observées au niveau des failles actives et sur les champs géothermiques. Une bonne illustration du rôle des failles est illustrée par les concentrations de radon élevées observées en surface dans des

massifs calcaires très pauvres en U et Ra. Elles s'expliquent par la présence d'un réseau de fractures karstique favorisant le processus d'advection depuis le socle granitique plus riche en U (Peano *et al.*, 2011).

Le modèle courant est que le Rn trouve sa source dans certaines formations géologiques riches en U. Les roches ignées ultramafiques comme les dunites, les serpentines, les éclogites sont celles qui contiennent le moins d'U. À l'opposé, les roches plus riches en silice comme les granites et les rhyolites, sont celles où les plus fortes teneurs en U sont rencontrées. Le métamorphisme entraîne une redistribution de l'U. Les roches métamorphiques sont donc appauvries en U. Les départs sont compensés par des accumulations localisées. Ainsi, si le niveau de métamorphisme est faible, l'U peut localement se minéraliser dans des fractures.

Dans notre zone d'étude, on ne note pas de présence de gites d'U qui pourraient favoriser l'observation de fortes concentrations en Rn dans les gaz de sol (Fig. 8).

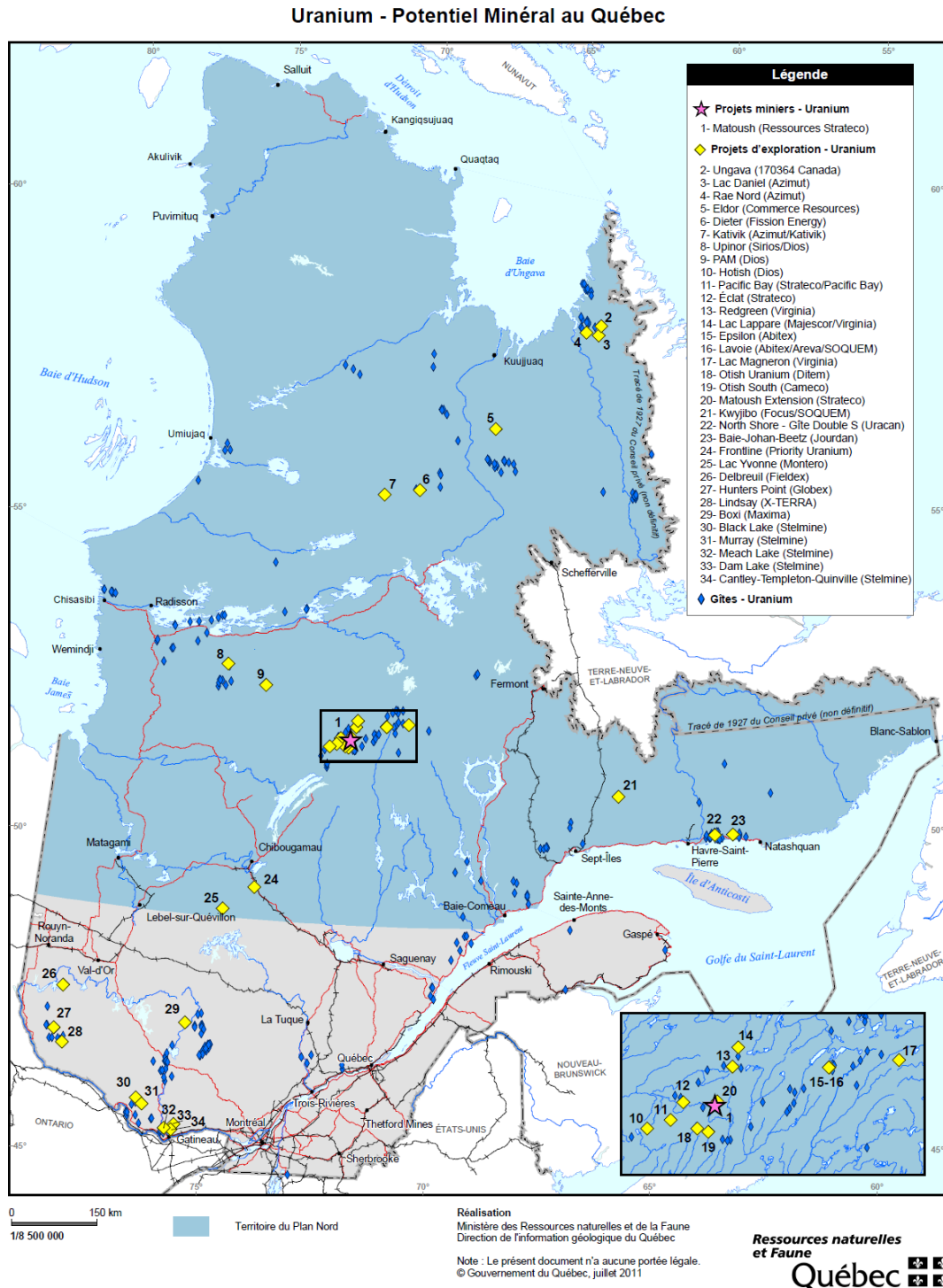
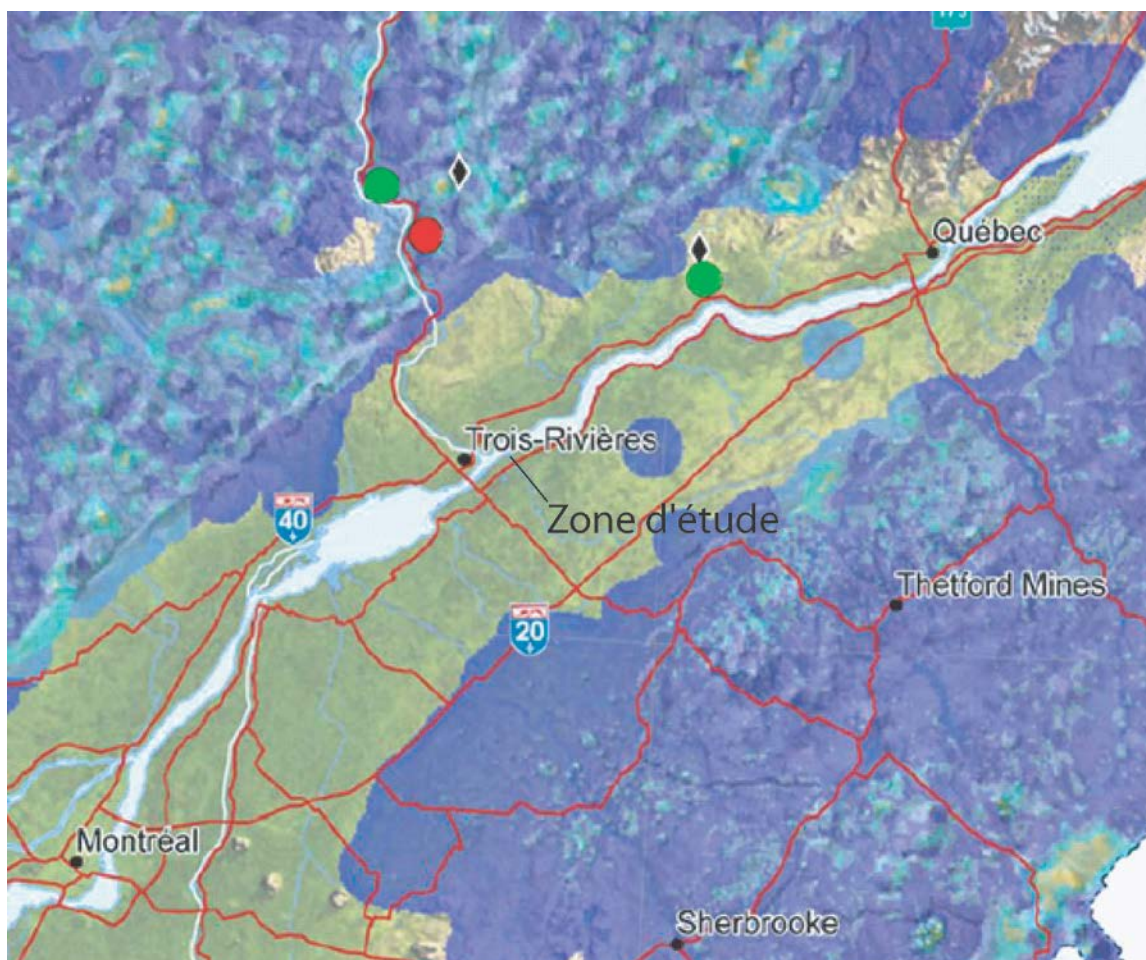


Figure 8. Gîtes d'uranium recensées au Québec. Gouvernement du Québec, MRNF, 2011 (<http://www.mrn.gouv.qc.ca/mines/publications/publications-cartes.jsp#geologie>). La zone d'étude (Bécancour) est située à proximité de Trois-Rivières, au sud de la carte.



**Figure 9. Localisation de gîtes (losange noirs) et veines uranifères (points rouges et verts) à proximité de notre zone d'étude. Compilation des données géochimiques des sédiments de ruisseau et de lacs, des sols et des tills (Lamothe, 2009). La zone d'étude (Bécancour) est située à proximité de Trois-Rivières**

L'analyse géochimique des échantillons de sédiments, de sols et de tills compilés en 2009 a révélé la présence d'une veine uranifère au nord du fleuve Saint-Laurent (Fig. 9). Mais ces anomalies sont situées à environ 100 km de notre zone d'étude.

Le contenu en U du substrat rocheux et du sol, la structure de la roche, la distance aux failles et la perméabilité et l'humidité des sols sont les variables courantes entrées dans les modèles pour prédire la présence de Rn en surface (Lelsch *et al.*, 2010). Cependant, des mécanismes alternatifs à la remontée de gaz profonds peuvent expliquer l'observation de fortes concentrations de Rn dans les gaz de sol. Dans certains cas, le Rn mesuré en surface peut provenir de la décomposition de l'U contenu dans les sols eux-mêmes. Le Ra et l'U peuvent être accumulés

dans les argiles et d'autres sédiments par des mécanismes naturels (Girault *et al.*, 2010). L'U peut être adsorbé sur les oxy-hydroxydes et sur les minéraux argileux par des mécanismes de lessivage en surface et des accumulations dans des horizons plus profonds (Buccianti *et al.*, 2009). Des formations géologiques peuvent aussi accumuler de l'U par circulation de fluides hydrothermaux (Pereira *et al.*, 2010). Les accumulations observées dans les sols peuvent aussi avoir des origines anthropiques : aérosols en provenance des mines d'U, dépôts de déchets contenant des radionucléides, fertilisants... (Takeda *et al.*, 2006; Borylo *et al.*, 2012; Neves *et al.*, 2012).

Dans cette étude, le Rn a été sélectionné parmi les autres gaz rares car c'est un gaz radioactif. Il peut donc être mesuré facilement et à moindre

coût, avec des compteurs à scintillation. Mesurer les concentrations pour les autres gaz rares nécessite des chromatographes en phase gazeuse évolués (avec des chaînes de concentration). Les mesures sont longues et coûteuses et il n'est pas envisageable d'effectuer un grand nombre de mesures (excepté pour l'hélium). Le Rn est aussi l'objet d'attention, car c'est un gaz cancérigène. Sachant que sa présence en surface pourrait être reliée (à partir de considérations théoriques) à la libération de CO<sub>2</sub>, il était donc important d'avoir des valeurs de référence avant injection.

## 2.5. Échantillonnage du CO<sub>2</sub> atmosphérique

Les échantillonnages des concentrations de CO<sub>2</sub> et de leurs ratios isotopiques dans l'atmosphère et au niveau du sol ont été effectués le long des routes carrossables de la zone d'étude. L'instrument utilisé pour mesurer les concentrations de CO<sub>2</sub> (<sup>12</sup>C et <sup>13</sup>C) et les ratios isotopiques (<sup>13</sup>C/<sup>12</sup>C) en flux continu est un spectromètre laser (Picarro, modèle G1301). Aucun échantillonnage n'a été effectué les jours de pluie ou de vent moyen et fort.

En 2010, un dispositif mobile a été utilisé pour prendre des mesures. L'instrument mesurant en continu à 1 Hz était placé sur un chariot tiré le long des routes par les opérateurs (Fig. 10).



**Figure 10. Dispositif mobile d'échantillonnage du CO<sub>2</sub> atmosphérique au niveau du sol (concentrations et ratios isotopiques). Deux opérateurs tractent un spectromètre laser (premier chariot) qui enregistre des mesures en continu. Il est alimenté par un set de batteries à décharge profonde (second chariot). Un GPS enregistre les positions spatiales des mesures.**



**Figure 11. Échantillonnage du CO<sub>2</sub> atmosphérique utilisé en 2011. Un véhicule est stationné le long de la route. Le spectromètre laser est embarqué à l'arrière du véhicule. Il est alimenté par des batteries 12v. L'entrée d'air est visible à l'arrière droit.**

Cette stratégie d'échantillonnage a permis de couvrir en 2010 un territoire important en relativement peu de temps et donc à moindre coût. Cependant, l'analyse des données a montré que de fortes variabilités liées en premier lieu à l'instrument et à des facteurs externes (comme le passage des voitures et des camions) venaient influencer les données. Les données devaient donc être filtrées sur une base spatiale et donc finalement lissées. Cette stratégie d'échantillonnage et le traitement des données qu'elle imposait ne permettaient donc pas d'identifier des sites anormaux. En 2011, une autre stratégie d'échantillonnage a donc été adoptée (Fig. 11).

Le même instrument que l'année précédente a été utilisé mais il était disposé à l'intérieur d'un véhicule, sur la plage arrière et l'entrée d'air

placée à l'extérieur (Fig. 11). Pour minimiser le volume mort, la longueur du tube d'entrée d'air était réduite (60 cm, diamètre 4 mm). Les sites d'échantillonnage étaient distants de 150 mètres.

Pour chacun des sites, la période d'enregistrement des mesures était de 45 minutes avec une mesure toutes les 10 secondes environ. La série temporelle d'acquisition était donc composée d'environ 270 mesures individuelles. Le filtrage des données a donc été effectué sur une base temporelle. Les données finales enregistrées étaient donc mieux reliées à chaque site et permettaient théoriquement de mieux identifier des anomalies spatiales. Les séries temporelles ont été vérifiées individuellement pour chacune des trois variables mesurées (<sup>12</sup>C, <sup>13</sup>C, <sup>13</sup>C/<sup>12</sup>C) afin de détecter un problème majeur dans les enregistrements ou un

disfonctionnement de l'instrument. Dans un second temps, des moyennes par site ont été calculées grâce à une analyse de régression robuste où les données trop dispersées ne sont pas prises en compte. Les méthodes de détection des données à rejeter sont diverses. Plusieurs ont été essayées, elles conduisaient aux mêmes résultats (les statistiques produites étaient identiques). Ceci provenait du fait que les données divergentes l'étaient très nettement.

Au cours de l'échantillonnage certains sites ont été déplacés de quelques mètres ou voir supprimés pour tenir compte de facteurs locaux (routes trop étroites, croisement, ...). Au total, 239 sites ont été échantillonnés.

## **2.6. Variabilité temporelle des concentrations en gaz de sol**

### **2.6.1. Dispositif utilisé**

Une grande variabilité des données de gaz était attendue. Les remontées de gaz en surface ne sont pas forcément continues et régulières mais peuvent correspondre à des remontés de bulles de gaz. De plus, les concentrations observées dans les sols à faible profondeur doivent être influencées par des paramètres climatiques comme la pression atmosphérique ou la température. Comprendre comment se comportent les variables mesurées est essentiel pour adapter les stratégies d'échantillonnage et l'analyse des données recueillies.

Afin de mieux saisir la nature des données, des stations permanentes d'échantillonnage ont été installées et des mesures répétées dans le temps ont été effectuées au cours de la période

d'échantillonnage (Fig. 12). Le dispositif utilisé et créé pour les besoins de cette étude est très simple, peu onéreux et facile à mettre en place. Il pourrait être utilisé dans d'autres approches nécessitant le suivi de stations permanentes.

L'emporte-pièce est réalisé à partir d'un tuyau de chauffage en acier d'un mètre de long. Une des extrémités est martelée afin de diminuer le diamètre du tube. Ceci permet de retenir le matériel (sol) dans le tube lorsque le tube est extrait et de pouvoir vider le matériel à l'extérieur du trou. Pour pouvoir couper d'éventuelles racines, cette extrémité est ensuite meulée pour rendre le rebord tranchant. Deux encoches permettent d'améliorer la coupe. Le tube est ensuite porté à haute température (dans un feu de charbon) et trempé dans l'eau. La trempe est indispensable pour donner au tube de chauffage une rigidité suffisante pour ne pas s'écraser lors de l'enfoncement. Finalement, deux pinces étai servent de poignées. Des tubes construits avec d'autres aciers peuvent aussi être utilisés pour éviter la trempe. Cependant, sur le terrain, il est toujours avantageux de construire des outils avec du matériel courant facilement remplaçable en cas de bris ou de perte. Lors de l'utilisation, l'extrémité du tube se casse sur les roches et graviers rencontrés. Il est nécessaire de meuler régulièrement l'extrémité, ce qui demande peu de temps.

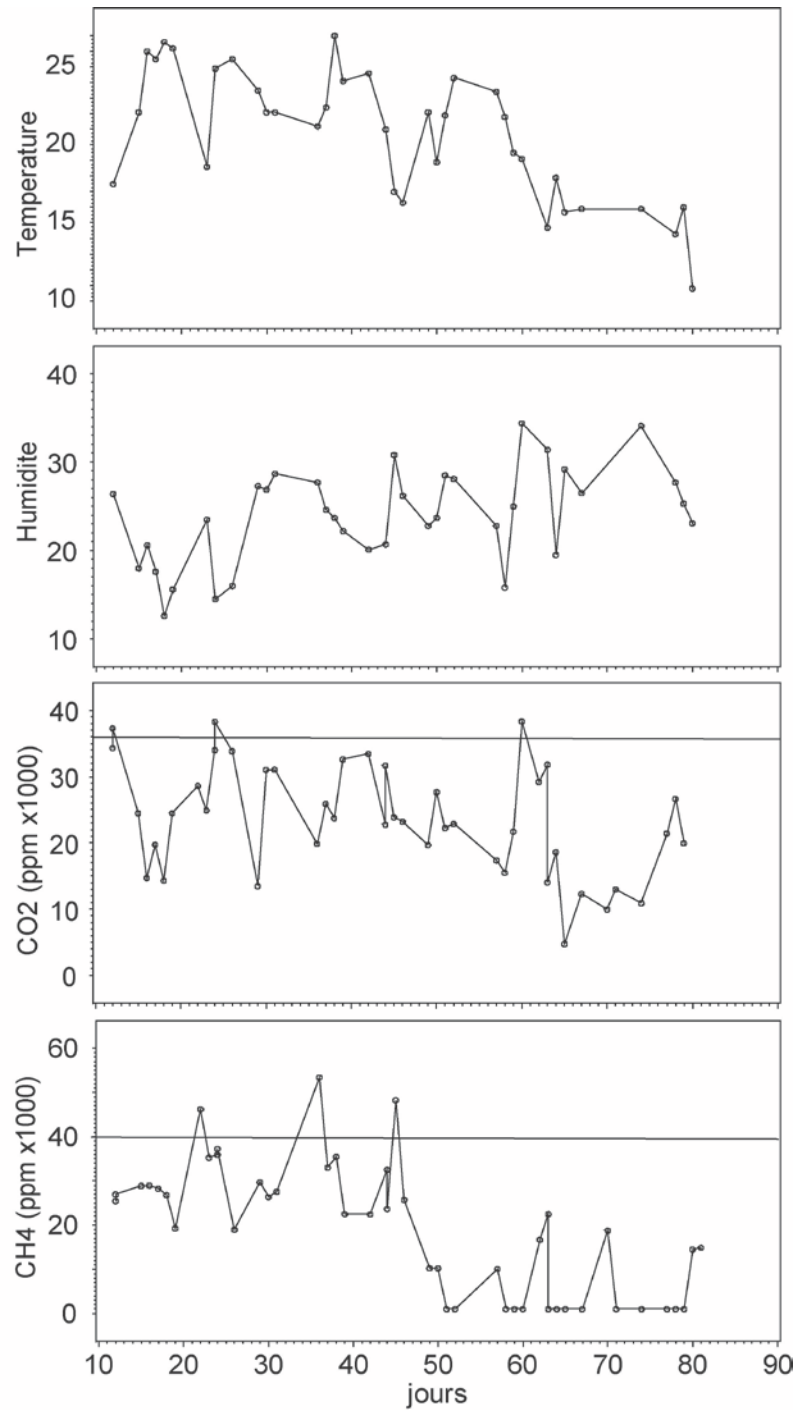
Les mesures ont été effectuées en 2011 pour les le CO<sub>2</sub>, le CH<sub>4</sub> et les hydrocarbures gazeux. Et en 2012 pour le radon. Les protocoles différaient du fait du coût financier différent des mesures des gaz ou du temps nécessaire (Tableau 4).



**Figure 12. Stations permanentes d'échantillonnage des gaz de sol. Un trou de 60 cm est effectué dans le sol avec un emporte-pièce (en haut, à gauche) par pallier de 5 cm. A chaque pallier, le matériel est chassé du tube (en haut, à droite). Un tube est installé dans le trou. Une de ses extrémités est terminée par un septum (au milieu, à gauche) et l'autre par un matériel poreux utilisé en aquariophilie (au milieu, à gauche). Le tube est installé. Un sable poreux remplit le fond du trou (les 10 derniers cm) et le reste du trou est rebouché avec le matériel d'origine (en bas, à gauche).**

**Tableau 4. Protocole de mesures répétées utilisé pour les différents gaz.**

CO <sub>2</sub> et CH <sub>4</sub>	46 mesures répétées sur 1 site choisi où de fortes valeurs avaient été observées.
Hydrocarbures gazeux	2 mesures répétées sur 16 sites. Une mesure en début de période d'échantillonnage et une en fin de période.
Radon	7 mesures répétées sur 6 sites.



**Figure 13. Variabilité temporelle des concentrations de CH<sub>4</sub> et de CO<sub>2</sub> mesurées sur un site au cours d'une période d'échantillonnage de 90 jours. L'humidité et la température du sol au moment de l'échantillonnage sont aussi présentées. Les lignes noires horizontales représentent les valeurs seuils à partir desquelles une concentration est jugée anormale.**

### 2.6.2. Concentrations en CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub>

Pour le site, où 46 mesures répétées de CO<sub>2</sub> et le CH<sub>4</sub> ont été effectuées, 2 présentent des valeurs de concentration en CO<sub>2</sub> supérieures au seuil défini comme anormalique tandis pour le CH<sub>4</sub>, ce nombre est égal à 3. Les valeurs mesurées sur un même site varient donc fortement au cours du temps comme on peut le voir sur la figure

suivante (Fig. 13). Certaines fois, elles sont anormaliques, d'autres fois non.

### 2.6.3. Concentrations en hydrocarbures gazeux

Les répétitions de mesures des hydrocarbures gazeux sont présentées sur la figure suivante (Fig. 14).

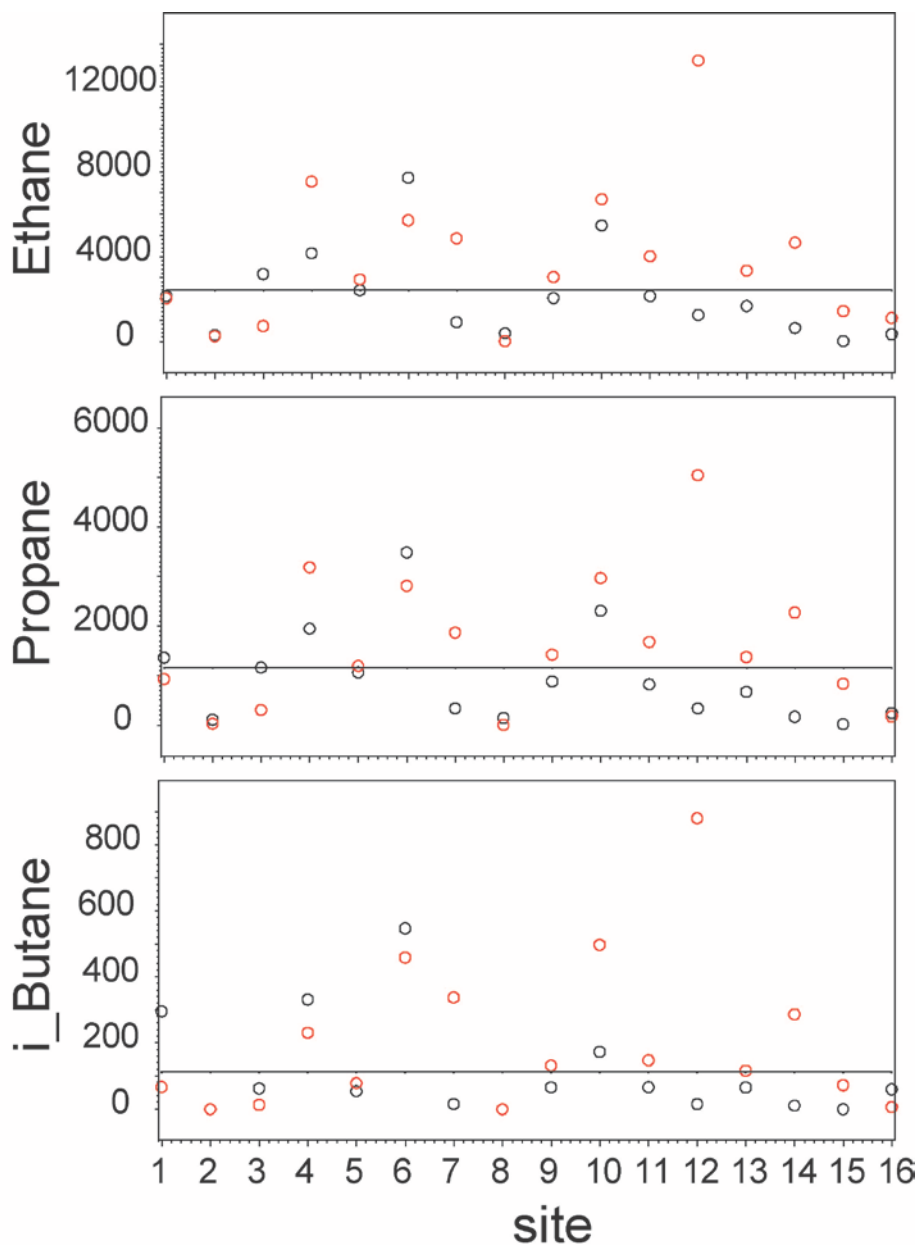
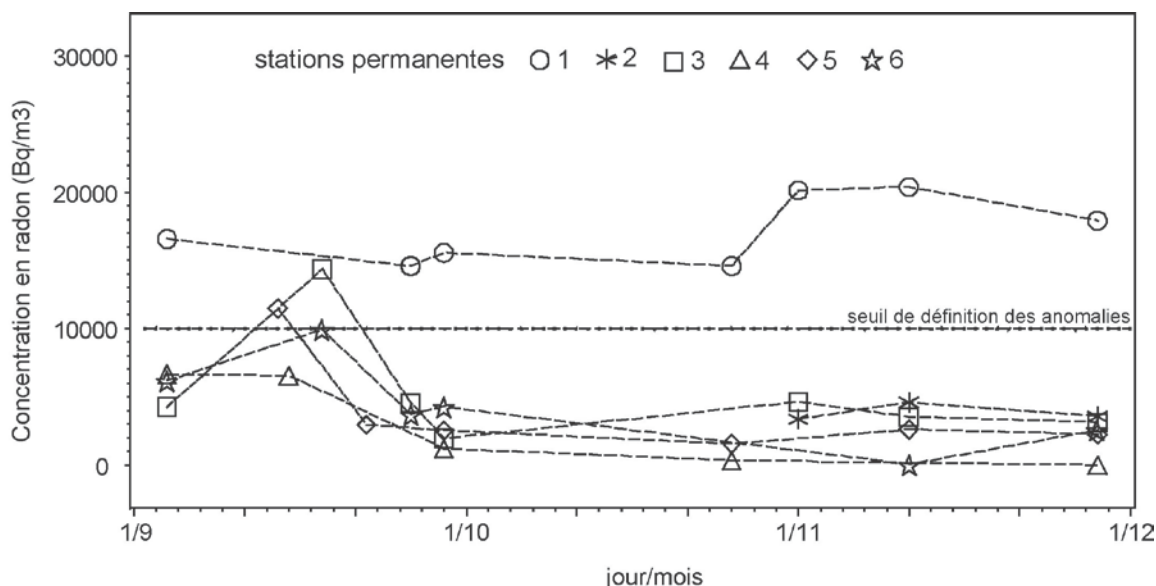


Figure 14. Variation entre la première mesure (cercles noirs) et la seconde (cercles rouges) d'hydrocarbures gazeux sur 16 sites (abscisse). Les lignes noires horizontales représentent les valeurs seuils à partir desquelles une concentration est jugée anormalique.



**Figure 15. Mesures répétées de radon (concentrations en Bq/m3) dans les gaz de sol effectuées sur 6 sites pendant toute la période d'échantillonnage. Les différents symboles identifient les sites. La ligne horizontale indique le seuil à partir duquel une concentration est jugée anormale.**

Comme observé pour le CO<sub>2</sub> et le CH<sub>4</sub>, les concentrations d'hydrocarbures gazeux mesurées sur un site varient fortement dans le temps. Même si certains sites sont toujours anormaux (exemple : site 6) ou toujours non-anormaux (exemple : site 2), beaucoup de sites présentent beaucoup d'irrégularités. Les concentrations observées sur ces sites sont quelquefois anormales et les autres fois non (exemple : site 12).

#### 2.6.4. Radon

Les mesures répétées de radon effectuées sur 7 sites montrent que ce gaz possède un comportement différent des autres gaz (Fig. 15).

La répétabilité des mesures est meilleure pour le radon. Le site 1 (cercles blancs) a présenté de fortes concentrations durant toute la période. À l'opposé, les concentrations en radon mesurées sur les sites 6 et 4 étaient toujours non-anormales. La répétabilité intra-site était donc meilleure que pour les autres gaz.

Il est à noter cependant que cette répétabilité n'est pas parfaite. Pour les sites 3 et 4, de fortes valeurs ont été observées pendant la même

période (aux alentours du 15 septembre). Le site 6 a vu également ses valeurs augmenter au cours de la même période. Les paramètres climatiques testés (température et humidité du sol, le jour de l'échantillonnage, un et deux jours avant) ne permettent pas d'expliquer ces augmentations ponctuelles de concentrations en radon. L'instrumentation et la méthode utilisée ne semblent pas non plus en cause. Les effets d'autres paramètres, comme la pression atmosphérique, pourraient être recherchés mais pour le moment, l'origine de ces rehaussements reste indéterminée.

#### 2.6.5. Absences non significatives pour les gaz majeurs

Le Rn présente généralement une bonne répétabilité. C'est-à-dire qu'une faible concentration enregistrée sur un site à un moment donné traduit le fait que la concentration en Rn est généralement faible sur ce site et inversement. Les présences et les absences d'anomalies sont donc significatives.

Les gaz majeurs (CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, hydrocarbures gazeux) ont un comportement opposé. Les mesures de gaz majeurs ne sont pas répétables

dans le temps. Sur un site, de faibles concentrations peuvent être mesurées une journée et la semaine suivante, il est possible de détecter au même endroit de fortes concentrations. La probabilité de détecter une anomalie en gaz est donc inférieure à 1 ou autrement dit, les absences ne sont pas significatives. Ce n'est pas parce qu'on n'observe pas de fortes concentrations à un endroit qu'on ne peut jamais en observer. Les présences sont par contre significatives. Une forte concentration mesurée traduit bien la présence du gaz dans le sol. Ces données dites de « présences seules » (*presence only* en anglais) sont couramment rencontrées lorsque les phénomènes observés sont difficilement détectables. Des méthodes d'analyse ont été développées pour traiter ce type de données, notamment en écologie, par exemple pour les présences-absences d'oiseaux (eg. Zaniwski *et al.*, 2002). Les oiseaux ne sont pas toujours détectables par les opérateurs bien que présents sur le site.

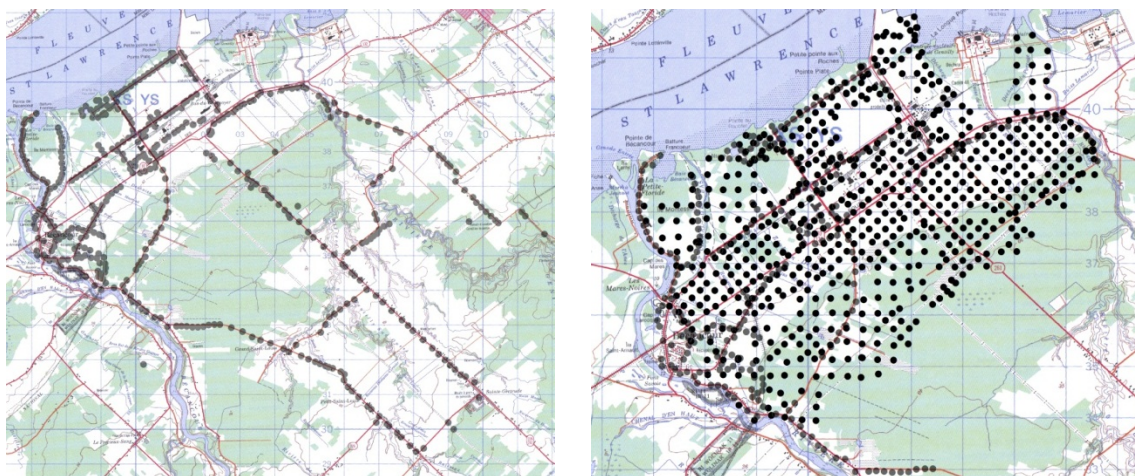
Dans notre cas, les absences d'anomalies en gaz rares ne peuvent pas être considérées lors des

analyses ou pour produire des cartes. Les méthodes classiques d'interpolation (krigeage) ne peuvent pas, en particulier, être effectuées à partir des concentrations ou d'une information binaire (présence-absence) d'anomalies.

Dans une première approche, il est possible de cartographier les présences d'anomalies uniquement ou bien les densités d'anomalies par m<sup>2</sup> (dans le cas de grille régulière). Des méthodes plus élaborées d'interpolation existent. Elles font intervenir des pseudo-absences ou bien des modèles de présences a priori qui sont ajustés aux présences vraies.

## **2.7. Stratégie d'échantillonnage des gaz de sol**

Il ressort de la pré-étude des variabilités temporelles des différents gaz (cf. section précédente) que des stratégies d'échantillonnage différentes devaient être mise en place pour le radon et pour les autres gaz (Fig. 16).



**Radon**  
Absences vraies  
Densité plus faible  
Transects, zone large  
(2012 ; 511 sites)

**Autres gaz**  
Absences non-significatives  
Densité forte  
Grille régulière, zone plus restreinte  
(2011 et 2012 ; ± 1000 sites)

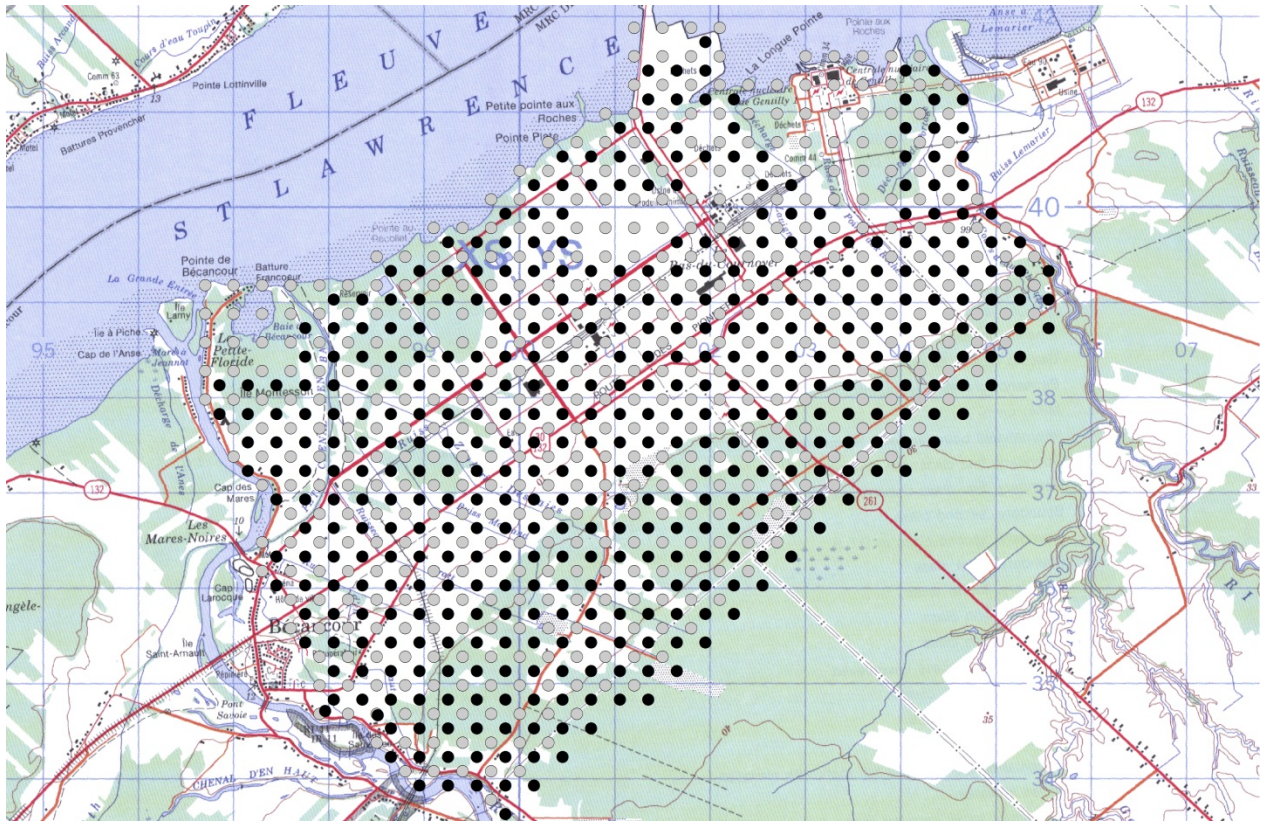
**Figure 16. Sites échantillonnés en 2011 et 2012. Comparaison de la stratégie d'échantillonnage utilisée pour le radon et les autres gaz. Les points noirs indiquent les sites visités. Les enclaves sans points correspondent à des installations industrielles ou des terrains non accessibles.**

Pour le radon, la bonne répétabilité des mesures a montré que les absences pouvaient être considérées comme vraies. Une plus faible densité d'échantillonnage a été adoptée. Les sites visités ont été disposés en transects, le long des routes pour faciliter leur accès. En une campagne de terrain (été-automne 2012), un total de 512 sites a pu être visité permettant de couvrir un territoire plus étendu que pour les autres gaz. Les sites étaient espacés de 200 m et distants de 150 m des routes.

Pour les autres gaz, la probabilité de détecter une anomalie est inférieure à 1. Ceci implique que le nombre d'anomalies détectées est fonction de la densité d'échantillonnage (dans le temps ou dans l'espace). Autrement dit, plus le nombre de sites visités au m<sup>2</sup> est important et plus la probabilité de détecter une anomalie en gaz est importante également. Il est donc important avec ce type de

données d'avoir la même densité d'échantillonnage sur l'ensemble de la zone d'étude ou de corriger a posteriori pour les différences. Le lecteur intéressé par cette thématique pourra se référer aux travaux de biostatistiques concernant les modèles de capture-recapture (e.g. Nichols, 1992). Pour tenir compte de ces considérations et ne pas biaiser les résultats, un nombre important de sites répartis uniformément (1000 sites visités en 2011 et 2012) ont été échantillonnés.

Une précaution supplémentaire a été prise pour les gaz majeurs. Pour éviter les corrélations entre l'espace et le temps, les points proches n'ont pas été échantillonnés à la même période. Les sites d'échantillonnage étaient disposés sur l'ensemble de la zone d'étude sur deux grilles régulières disposées en quinconce (Fig. 17).



**Figure 17. Dispositif d'échantillonnage théorique initial. Deux grilles régulières (points gris et noirs) avec des sites distants de 300 mètres sont disposées en quinconce.**

La distance entre les points d'échantillonnage sur chacune des grilles est de 300 mètres. La couverture finale représente un semis de points disposés régulièrement et distants de 200 mètres. Les prélèvements ont été effectués sur la première grille et ensuite sur la seconde. La présence attendue d'anomalies localisées dans certains secteurs ne peut pas donc être imputable à la présence de périodes favorables versus défavorables. Un second avantage inhérent à cette technique est que même en cas d'échantillonnage incomplet, la première grille assure une couverture complète de la zone d'étude même si certaines portions du territoire sont moins densément couvertes.

Les points ont été entrés dans des GPS (Garmin modèle 78) utilisés ensuite sur le terrain pour se

diriger vers les sites d'échantillonnage. Du fait de l'imprécision du positionnement GPS, une tolérance de 10 m était acceptée entre la cible et le site échantillonné. De plus, sur le terrain, lorsqu'un site n'était pas réalisable du fait d'obstacles, d'installations industrielles ou d'autres infrastructures, il était déplacé ou supprimé. La grille des sites échantillonnés finalement diffère de cette grille cible.

## **2.8. Prélèvement des gaz majeurs et mesure des concentrations**

### **2.8.1. Échantillonnage des gaz**

La méthode utilisée est identique pour le prélèvement de tous les gaz de sol (Fig. 18).



**Figure 18. Prélèvement des gaz de sol. Une sonde (tube métallique avec en son centre un fin capillaire) est enfoncée dans le sol à une profondeur de 50 cm. Après la purge du système, un volume de gaz est prélevé à la seringue et injecté dans des contenants.**

Une sonde métallique de prélèvement des gaz (Geofrontiers) a été enfoncée dans le sol à une profondeur de 50 cm. Cette profondeur a été choisie car elle plaçait le prélèvement en dessous des horizons organiques et permettait d'effectuer le prélèvement avec un effort acceptable pour les opérateurs. Ce faisant, les prélèvements étaient toujours effectués à la même profondeur. Quelques prélèvements ont été effectués à des profondeurs supérieures mais ont été éliminés au moment de l'analyse des données. Des profondeurs d'échantillonnage supérieures sont parfois visées (70 cm par exemple), mais sur le terrain, elles ne sont pas toujours respectées par les opérateurs du fait de l'effort physique

nécessaire pour enfoncer mais surtout pour ressortir la sonde après le prélèvement. En réalité, les données recueillies le sont à des profondeurs variables. Dans le cadre de cette étude, l'influence de la profondeur d'échantillonnage a été testée (voir la section Résultats).

Une fois la sonde en place, un prélèvement de 20 cm<sup>3</sup> a été effectué avec une seringue pour purger le système (volume mort dans le capillaire). Les gaz recueillis ensuite étaient envoyés dans des contenants différents en fonction de la méthode d'analyse prévue (Tab. 5).

**Tableau 5. Relation entre la méthode d'analyse et la méthode d'échantillonnage des gaz.**

Gaz mesurés	Méthode d'analyse	Volume recueilli	Contenant
Concentrations en CO <sub>2</sub> et CH <sub>4</sub>	Chromatographe en phase gazeuse	30 cm <sup>3</sup>	Vial en verre maintenu sous vide
Concentrations en Hydrocarbures gazeux	Chromatographe en phase gazeuse	30 cm <sup>3</sup>	Vial en verre maintenu sous vide
Ratio isotopique du CO <sub>2</sub>	Spectromètre laser	10 x 30 cm <sup>3</sup>	Sac en Tedlar
Concentration en radon	Compteur à scintillation	10 x 30 cm <sup>3</sup>	Cellule de Lucas

Comme il n'était pas envisageable de prélever au même endroit un volume important, la sonde a été positionnée à plusieurs endroits sur chaque site. Le fait de soutirer un volume de gaz trop important sur chaque position n'est pas recommandé car on augmente la probabilité de drainer des zones du sol éloignées du point de prélèvement (et donc de modifier la profondeur d'échantillonnage) ou de provoquer des intrusions superficielles le long du tube. Pour chaque position, le volume maximal recueilli était de 30 cm<sup>3</sup>.

## 2.8.2. Mesure des concentrations en gaz majeurs

Le CH<sub>4</sub> et le CO<sub>2</sub> ont été analysés à l'INRS sur un chromatographe Varian 3800 selon la méthode «Pora-BOND U CO<sub>2</sub>-CH<sub>4</sub>». La courbe de calibration utilisée s'étalait de 0 à 50000 ppm pour le CO<sub>2</sub> et de 0 à 500 ppm pour le CH<sub>4</sub>. Les limites de détection étaient inférieures à 50 ppm pour le CO<sub>2</sub> et 10 ppm pour le CH<sub>4</sub>.



**Figure 19. Analyse des concentrations en hydrocarbures gazeux (Dr. Gary Rice, Geofrontiers).**

Les hydrocarbures gazeux ont été analysés par les laboratoires de la compagnie Geofrontiers (Fig. 19).

L'INRS ne possédait pas au moment de cette étude de moyens analytiques pour mesurer les hydrocarbures gazeux. La compagnie Geofrontiers est spécialisée dans la fabrication du matériel de prélèvement et d'analyse des hydrocarbures gazeux pour l'exploration pétrolière. Les limites de détection pour l'éthane, le propane, le i-butane et le n-butane étaient de 10, 14, 26 et 34 ppm respectivement. Des dilutions ont été effectuées lorsque les concentrations étaient trop fortes.

## 2.9. Prélèvement du radon et mesure des concentrations

Un kit de prélèvement du radon dans le sol a été acheté à la compagnie Pylon Electronic. Pour notre étude, le dispositif proposé ne permettait pas d'échantillonner les gaz de sol de manière satisfaisante et un dispositif spécifique a été adapté. Le dispositif proposé suppose de creuser en premier un trou dans le sol et d'y insérer une tige creuse permettant de récupérer le gaz de sol. Ce dispositif est sans doute adapté à l'acquisition de mesures pendant un long temps d'acquisition, car le gaz de sol a le temps de se rééquilibrer, mais dans notre cas, il induirait trop de

contamination du gaz de sol. Le prélèvement est en effet effectué immédiatement lors de l'arrivée sur le site. La figure suivante résume les différentes étapes de recueil et d'analyse des concentrations en radon (Fig. 20). Le gros avantage de cette approche est que le gaz de sol

est prélevé avec la sonde Geofrontiers qui ne permet pas de contamination depuis la surface et qui est rapide à installer.

	<p>Comme pour les autres gaz, un volume de 30 cm<sup>3</sup> est prélevé avec la sonde Geofrontiers. Un septum obture un fin capillaire. Le gaz est prélevé avec une seringue, l'aiguille est enfoncée dans le septum.</p>
	<p>Le volume est immédiatement injecté dans une cellule de Lucas. La cellule a préalablement été mise sous vide et une mesure des comptes initiaux (blanc) a été effectuée sur le compteur pendant 5 minutes. La chaîne tubulaire comprend à une extrémité la cellule de Lucas et à l'autre extrémité un septum permettant l'injection. Un manomètre (qui contrôle la dépression) et un robinet complètent le dispositif. Avant injection, on contrôle, avec le manomètre, qu'aucune fuite ne biaise la mesure.</p>
	<p>La cellule de Lucas contenant 270 ml de gaz de sol est placée sur le compteur à scintillation. Le compteur reste dans le véhicule pour éviter toute détérioration. Il est nécessaire d'attendre 2 minutes une fois la cellule placée sur le compteur. La séquence d'acquisition de 12 minutes comprend 12 mesures du nombre de désintégration observées en une minute. Les données sont compilées immédiatement sur papier et entrées dans un ordinateur portable.</p>
	<p>Chaque cellule est identifiée pour éviter toute confusion. Sur l'écran à cristaux liquide, on voit le nombre de désintégration compté (69). Une fois la mesure effectuée, la cellule est vidée et on la laisse reposer 30 minutes minimum. Une mesure de blanc est effectuée ensuite avec la cellule sous vide.</p>




Figure 20. Séquence d'acquisition des mesures de radon dans les gaz de sol.

## 2.10. Prélèvement du CO<sub>2</sub> pour l'analyse des ratios isotopiques <sup>13</sup>C/<sup>12</sup>C

L'instrument utilisé pour mesurer des ratios <sup>13</sup>C/<sup>12</sup>C dans les gaz de sol est un spectromètre infrarouge laser à flux continu (Picarro, modèle G1301). Les informations concernant cet appareil peuvent être trouvées sur le site du fabricant (<http://www.picarro.com>). Les gaz collectés sur le terrain ont été analysés dans les 12 heures suivantes.

Cet instrument a été développé pour mesurer des concentrations en CO<sub>2</sub> et des ratios <sup>13</sup>C/<sup>12</sup>C dans l'air avec donc des concentrations de CO<sub>2</sub> en de l'ordre de 400 ppmv. Dans les sols, les premières mesures ont montré que ces concentrations étaient 1000 fois plus élevées, ce qui sature le détecteur de l'instrument et ne permet pas de bonnes mesures. Une dilution du gaz de sol avec un gaz porteur (air sans CO<sub>2</sub>) était donc nécessaire. Une méthodologie spécifique à cette étude a donc été développée (Fig. 21).

	<p>Sur le terrain, un volume 30 cm<sup>3</sup> de gaz de sol est prélevé et placé dans des flacons en verre maintenus sous vide. Ils sont placés au frais et dans l'obscurité pour éviter le fractionnement.</p>
	<p>Au laboratoire de terrain, on injecte du gaz porteur (air sans CO<sub>2</sub>) dans des sacs Tedlar pour les rincer trois fois de suite. Les sacs sont ensuite vidés et on injecte 500 ml de gaz porteur dans le sac avec une seringue de un litre. Ce volume apprécié visuellement est approximatif mais l'objectif est de mesurer des rapports isotopiques et non des concentrations.</p>
	<p>Un volume de 10 cm<sup>3</sup> de gaz de sol est prélevé dans le flacon. Un septum est connecté au sac Tedlar.</p>

	<p>Le sous échantillon de gaz de sol est ensuite injecté dans le sac Tedlar. Le robinet du sac est fermé. La dilution initiale est donc de 2%. Ce facteur de dilution a été choisi empiriquement pour permettre de bonnes lectures des ratios.</p>
	<p>Le sac Tedlar contenant l'échantillon dilué est placé sur le spectromètre. Le robinet est ouvert d'un demi-tour.</p>
	<p>Les ratios <math>^{13}\text{C}/^{12}\text{C}</math> dans le mélange de gaz de sol et de gaz porteur sont mesurés pendant 7 minutes pour chaque échantillon. La séquence est enregistrée dans l'instrument. L'analyse des données par ondelettes permet par la suite de dégager une valeur de <math>^{13}\text{C}/^{12}\text{C}</math> pour l'échantillon.</p> <p>Après deux minutes de mesures, l'opérateur vérifie que la concentration de <math>\text{CO}_2</math> se trouve dans une gamme acceptable (100-1500 ppmv). Dans le cas contraire, il injecte dans le sac un supplément de gaz porteur (dilution) ou 10 cm<sup>3</sup> supplémentaire de gaz de sol (concentration).</p>

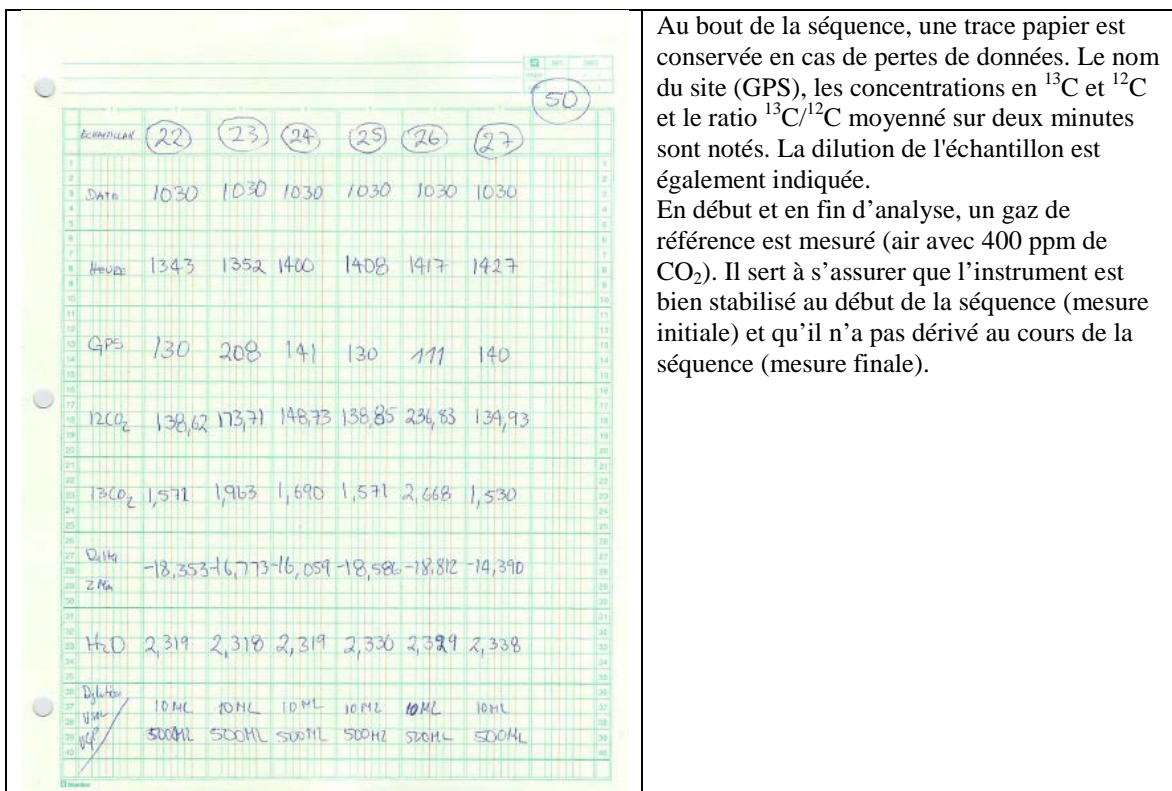


Figure 21. Séquence d'analyse des ratios isotopiques  $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  dans les gaz de sol.

Au moment de la mesure, le gaz n'était pas comprimé à l'intérieur du sac. Le pompage du gaz à l'intérieur du sac ne créait pas de dépression du fait de la contraction progressive des parois fines du sac. Cet élément est important car le fabricant recommande de ne pas injecter de gaz en surpression ou en dépression dans l'appareil, ce qui pourrait endommager le système de calibration du flux passant dans la chambre de mesure optique.

Des tests de dilution progressive ont été effectués pour vérifier que le fait de mélanger l'échantillon de gaz de sol avec un gaz porteur (air sans  $\text{CO}_2$ ) ne modifiait pas les ratios isotopiques obtenus.

Un gaz de concentration connue a été utilisé comme gaz de référence pour vérifier la bonne adéquation entre les concentrations mesurées et réelles. Un sac en Tedlar a été rempli avec ce gaz de référence le matin et transporté sur le terrain durant toute la journée d'échantillonnage. Il a été analysé le soir avec les échantillons de gaz de sol. Des tests effectués en 2011 ont permis de vérifier l'absence de phénomènes de dérive au cours de la séquence d'analyse. La séquence

d'analyse comprenait l'analyse de deux échantillons de gaz de sol suivi d'une analyse du gaz de référence. Les lectures des valeurs étaient toutes effectuées après 2 minutes. En 2012, une mesure ouvrait et fermait la séquence. La comparaison de toutes les valeurs de toutes les séquences permettait de s'assurer d'une absence de dérive de l'instrument au cours de toute la période de travail. Finalement, la méthodologie utilisée se rapprochait des analyses effectuées avec les spectromètres de masse par les équipes du MDDEFP notamment (Carole Deblois, MDDEFP, communication personnelle).

L'instrument a été utilisé pour obtenir le ratio isotopique  $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  du carbone du  $\text{CO}_2$  dans les gaz de sol. Les concentrations en  $\text{CO}_2$  n'ont pas été conservées du fait des dilutions successives utilisées réalisées de manière approximatives (repère sur une seringue). Les concentrations en  $\text{CO}_2$  ont été mesurées au moment de l'analyse des concentrations de  $\text{CH}_4$  avec un chromatographe en phase gazeuse. Les concentrations en  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  des sols pourraient être obtenues facilement sur le terrain avec des

instrumentations portables alors que les ratios isotopiques nécessitent des analyseurs plus lourds et coûteux.

### 2.11. Mesures de variables de contrôle

Sur chaque site, les conditions de prélèvement (température, humidité du sol) ont été recueillies (Tab. 6). La physicochimie des sols a aussi été étudiée (texture, origine des dépôts, pH, chimie

des éléments majeurs et des éléments traces). Un modèle d'occupation du sol pour toute la zone a aussi été réalisé. Le recueil et la présentation de ces données font l'objet d'un autre rapport spécifique (Pauca *et al.*, 2013).

L'influence des variables descriptives des conditions de prélèvement sur les gaz de sol a été étudiée. Elles permettaient de vérifier l'absence de biais dans les données de gaz de sol.

**Tableau 6. Données de caractérisation des sites d'échantillonnage. Ces données sont présentées dans le rapport Pauca *et al.*, (2013).**

---

#### Description pédologique

Origine des dépôts de surface

Texture (appréciation visuelle et granulométrie au laboratoire)

#### Caractérisation régionale

Altitude

Modèle d'occupation du sol

Modèle de présence d'anomalies en hydrocarbures

#### Physicochimie des sols

pH

Taux de matière organique

Concentrations en éléments majeurs et traces

---

### 3. Résultats

#### 3.1. Valeurs de référence

Les valeurs de référence appelées parfois « *baseline* » ou « *background* » en anglais correspondent aux statistiques décrivant la distribution des valeurs. Ces statistiques sont présentées dans le tableau suivant (Tab. 7).

Les valeurs de référence produites sont robustes du fait du nombre important de mesures effectuées (environ 1000 pour les gaz majeurs et 500 pour le radon).

Dans les sols, les variabilités entre les sites sont marquées. Les écart-types sont importants par rapport aux moyennes et par conséquent, les coefficients de variation varient entre 97% pour le radon et 2460 pour le méthane. Ceci suggère la présence de valeurs dispersées et très fortes.

**Tableau 7. Statistiques descriptives des gaz échantillonnés en 2011 et 2012 dans la région de Bécancour.**

	n	Moyenne	Écart- type	min	max	p5	p95
<b>Atmosphère</b>							
CO <sub>2</sub> (ppm)	7420	370.8	14.8	343	632	357	393
delta 13C/12C	7420	-10	1.6	-15	-5	-12.7	-7.3
<b>Sols</b>							
CO <sub>2</sub> (ppm)	1114	16003	25950	198	464499	2087	43799
delta <sup>13</sup> C/ <sup>12</sup> C	854	-23.1	3.5	-30	-8.1	-27.2	-16
méthane (ppm)	1114	492	12105	1	401249	1	68
éthane (ppb)	1073	795	4031	0	84284	11	2633
propane (ppb)	1073	340	1806	0	35104	0	1166
i-butane (ppb)	1073	57	320	0	6051	0	198
n-butane (ppb)	1073	81	570	0	11132	0	223
Rn (Bq/m <sup>3</sup> ) *	508	6085	5924	3	48625	548	16434

\* 511 sites visités, 508 mesures retenues (autres valeurs en dehors de la gamme acceptable)

Cette constatation est particulièrement importante à souligner pour le radon, un gaz aux effets cancérigènes reconnus. Au Canada, il n'existe pas de valeurs de référence officielles (critères ou concentrations acceptables) pour les concentrations de radon dans les sols. En Suède, ces valeurs existent (Swedish Building Code, 1980) et des risques relatifs aux concentrations ont été définis:

Zone à haut risque: concentrations en radon > 50 000 Bq/m<sup>3</sup>

Zone de risque « normal » : concentrations comprises entre 10 000 et 50 000 Bq/m<sup>3</sup>

Zone à faible risque : concentrations inférieures à 10 000 Bq/m<sup>3</sup>

Dans notre zone, aucune valeur mesurée ne dépasse le seuil de 50 000 Bq/m<sup>3</sup> mais une valeur maximum en est très proche (48 625 Bq/m<sup>3</sup>).

Le tableau suivant présente des valeurs utilisées pour juger des risques environnementaux (Tab. 8).

**Tableau 8. Concentrations de référence pour deux systèmes de gestion des risques environnementaux (source : compilation réalisée par Roy *et al.*, 2004).**

	Temporary Emergency Exposure limits (ppm)			Valeurs d'exposition en milieu de travail au Québec (ppm)
	TEEL1	TEEL2	TEEL3	VEMP
Méthane	15 000	25 000	50 000	
Éthane	3 000	3 000	3 000	
Propane	2 100	2 100	2 100	1 000
Butane	2 400	4 000	19 000	800

TEEL1 : Concentration maximale dans l'air sous laquelle presque tous les individus peuvent être exposés jusqu'à 15 minutes sans qu'il n'y ait d'effets sur la santé autres que des effets mineurs et transitoires ou sans que ces individus ne perçoivent une odeur clairement désagréable.

TEEL2 : Concentration maximale dans l'air sous laquelle presque tous les individus peuvent être exposés jusqu'à une heure sans qu'il n'y ait d'effets sérieux ou irréversibles sur la santé ou sans qu'ils éprouvent des symptômes qui pourraient les empêcher de se protéger.

TEEL3 : Concentration maximale dans l'air sous laquelle presque tous les individus peuvent être exposés jusqu'à une heure sans qu'il n'y ait d'effets sur leur santé susceptibles de menacer leur vie.

VEMP : valeur d'exposition moyenne pondérée. Concentration moyenne pondérée pour une période de 8 heures par jour, en fonction d'une semaine de 40 heures, d'une substance chimique (sous forme de gaz, poussières, fumées, vapeurs ou brouillards) présente dans l'air au niveau de la zone respiratoire du travailleur.

Des normes (Emergency Response Planning Guideline, American Industrial Hygiene Association) ont été développées pour évaluer, lors d'un accident industriel, les impacts potentiels de la libération de substances chimiques sur les populations humaines. Ces valeurs ne sont pas disponibles pour toutes les substances. Pour pallier à ces absences, une liste plus complète de valeurs temporaires (TEEL) a été établie selon une méthodologie approuvée par le Département de l'énergie (DOE) des États-Unis mais non révisée par un comité de pairs (d'où le « temporaire »). Les durées d'exposition pour les TEEL sont de 15 minutes.

On voit que les valeurs de concentrations mesurées dans les sols, sont en dessous des valeurs de référence définies dans l'atmosphère excepté pour le méthane où quelques valeurs de concentrations sont très fortes (seules 4 mesures sont supérieures à 15 000 ppm).

Le CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère présente des valeurs relativement constantes pour l'ensemble de la zone. Les coefficients de variation sont de 4% pour les concentrations de CO<sub>2</sub> et de 16% pour les ratios isotopiques <sup>13</sup>C/<sup>12</sup>C. Dans l'atmosphère, l'effet de dilution et d'homogénéisation est plus important et par conséquent, il n'est pas étonnant d'observer des valeurs moins dispersées et donc

une variabilité plus faible. Concernant les risques toxicologiques, les valeurs observées dans l'atmosphère sont bien en dessous du seuil 3% (30 000 ppmv), à partir duquel se note un premier effet (cf. introduction).

Les concentrations en CO<sub>2</sub> dans les sols sont 1000 fois plus importantes que celles observées dans l'atmosphère. Cet enrichissement peut provenir de remontées de gaz profonds (processus géogéniques) mais également de l'activité des organismes biologiques présents dans le sol (respiration) et de processus de décomposition (processus biogéniques). Cette dualité des sources se retrouve pour tous les gaz mais la probabilité que des processus biogéniques soient à l'origine des concentrations en hydrocarbures gazeux observées est minime. Au contraire, les concentrations en CO<sub>2</sub> et en CH<sub>4</sub> vont être plus influencées par les phénomènes superficiels biologiques. Les rapports entre espèces peuvent être calculés. Ils permettent de juger dans certains cas de l'influence des processus biogéniques.

En résumé, les données recueillies ne révèlent pas de problèmes particuliers de toxicologie.

Comme souligné dans la section méthode (« absences non significatives pour les gaz

majeurs »), les cartographies des valeurs brutes de concentration pour les gaz majeurs seraient peu robustes du fait de la variabilité des concentrations sur un même site. Dans la suite du document, le 95<sup>ème</sup> percentile pour les concentrations en gaz et le 5<sup>ème</sup> percentile pour les ratios isotopiques (valeurs négatives) ont permis de définir les seuils à partir desquels des concentrations étaient anormales et correspondaient à des sites où les concentrations étaient anormalement fortes.

### 3.2. CO<sub>2</sub> atmosphérique

#### 3.2.1. Correction des données enregistrées par le spectromètre infrarouge laser

Les valeurs de concentration en CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère et les ratios isotopiques dans l'atmosphère et les sols ont été mesurées avec un spectromètre infrarouge à flux continu. Les séquences de mesures à 1Hz ont permis d'accumuler des données et de procéder à l'élimination de valeurs dispersées ou de portion de séquence non significative (Fig. 22).

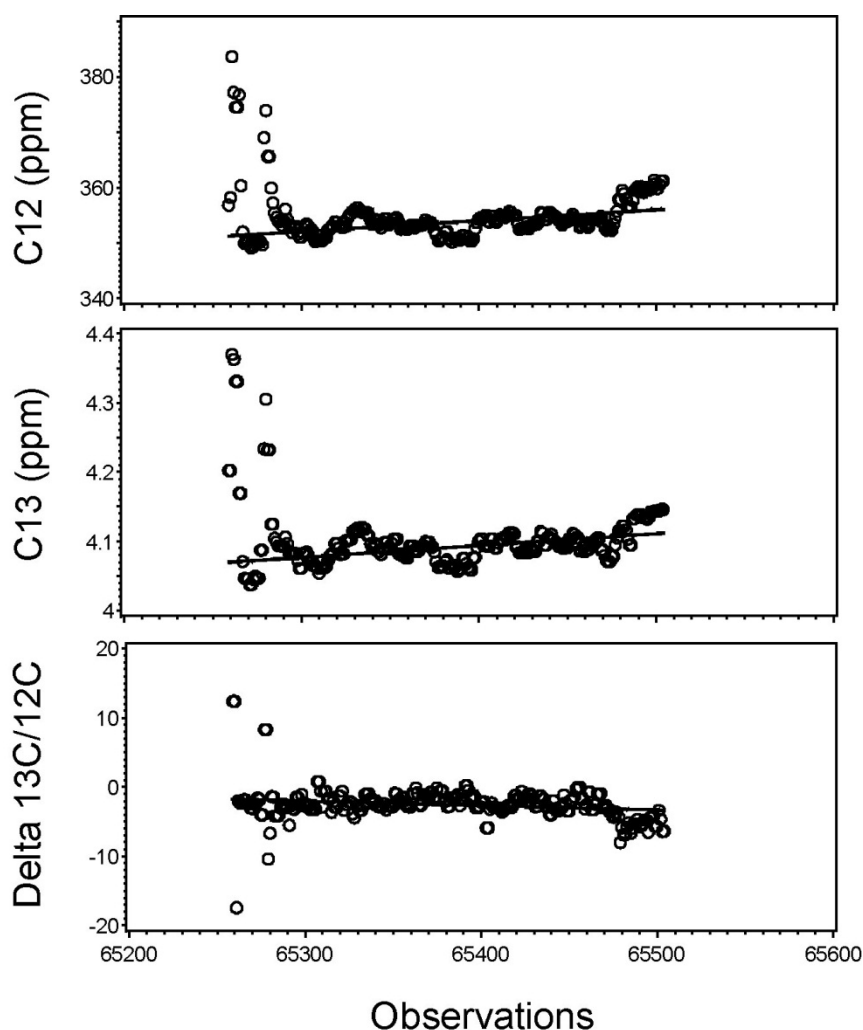


Figure 22. Mesures du CO<sub>2</sub> atmosphérique (<sup>12</sup>C, <sup>13</sup>C, <sup>13</sup>C/<sup>12</sup>C) sur un site. Mesures brutes.

La figure 22 présente un enregistrement du CO<sub>2</sub> atmosphérique sur un site. Une période chaotique est présente au début de l'enregistrement. On la retrouve pour la quasi-totalité des autres sites. Les valeurs oscillent entre des extrêmes et se stabilisent par la suite. Ces fortes variations de concentrations et de rapports isotopiques ne sont pas significatives des conditions rencontrées sur chaque site mais s'apparentent plutôt à des biais, peut-être reliées à l'arrêt du véhicule. Ces données ne doivent donc pas être considérées. Les valeurs de <sup>12</sup>C, <sup>13</sup>C et les ratios isotopiques <sup>13</sup>C/<sup>12</sup>C prédites par les régressions robustes (les

traits noirs sur la figure 22) ne sont pas influencées par ces données. Les moyennes obtenues par ces régressions robustes sont celles qui pourraient être calculées à partir de ces données prédites.

### 3.2.2. Distributions spatiales des concentrations

En 2010, la cartographie des valeurs brutes des concentrations en CO<sub>2</sub> (<sup>12</sup>C) permettait d'identifier des rehaussements locaux des valeurs dans la zone industrielle (Fig. 23).

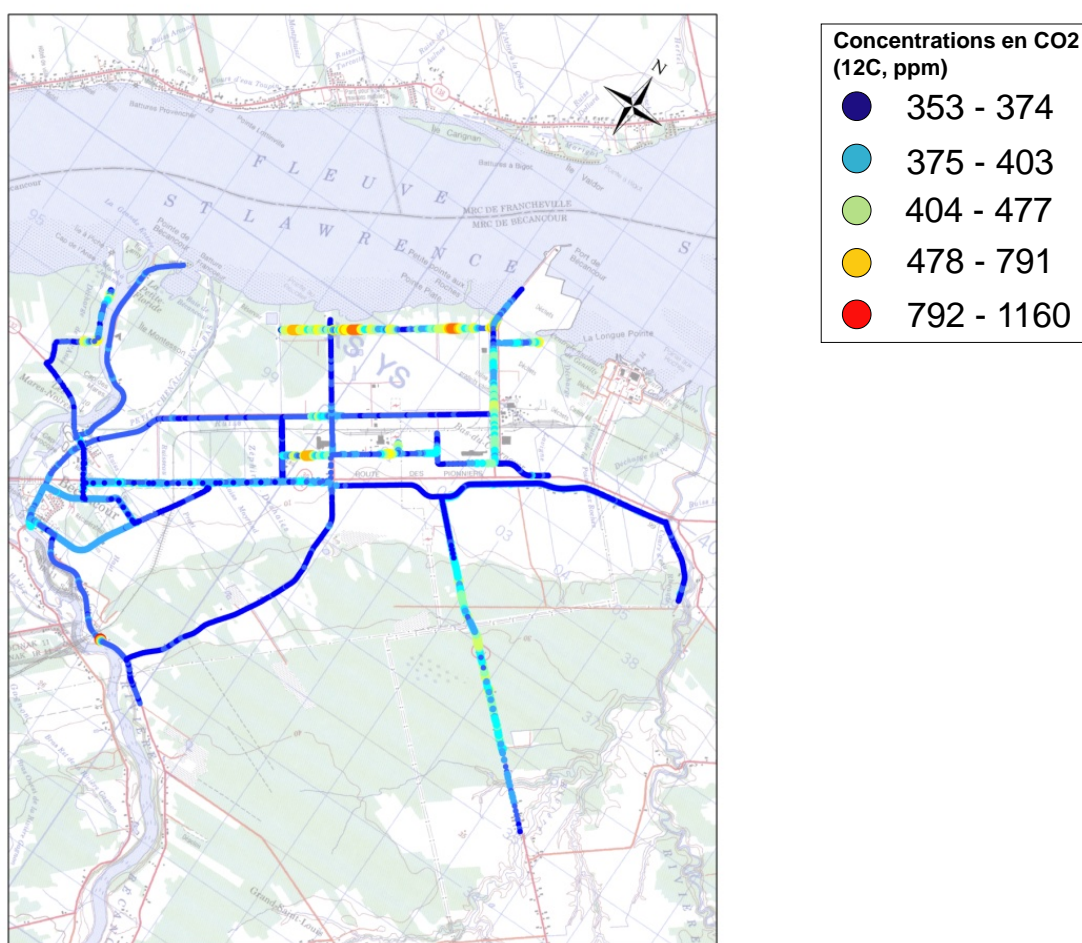


Figure 23. Carte des concentrations atmosphériques en CO<sub>2</sub> (<sup>12</sup>C) au niveau du sol en 2010.

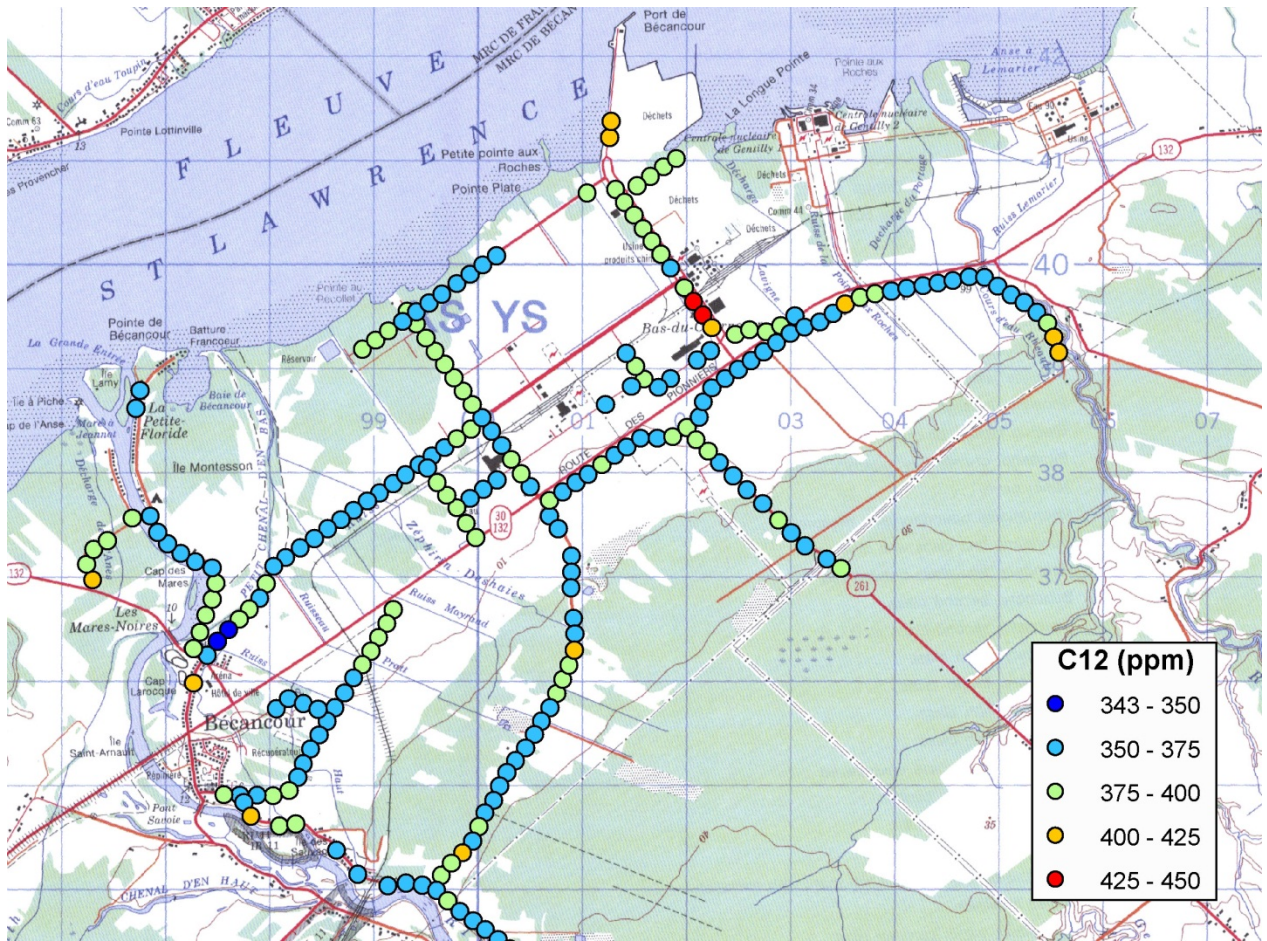


Figure 24. Carte des concentrations en  $^{12}\text{C}$  (ppm) mesurées en 2011.

Le même exercice a été effectué avec les données de 2011. Les patrons de concentration ne sont plus clairement visibles (Fig. 24). Les concentrations observées dans le secteur nord-est semblent toutefois plus fortes.

Ces cartographies de concentrations brutes, comme expliqué dans la section méthode, sont sujettes à caution.

Des relations ont été cherchées entre les concentrations de  $\text{CO}_2$  mesurées dans l'atmosphère et les gaz majeurs (dont le  $\text{CO}_2$ ) mesurés dans les sols. Aucune relation ne semble se dégager. Les concentrations de  $\text{CO}_2$  dans l'atmosphère semblent bien plus influencées par des émissions en surface (émanations d'usine, points rouges de plus fortes concentrations

visibles sur la figure 24) que par des libérations de gaz profonds. Cette observation est valable dans un contexte de pré-injection. Par contre, en cas de libération massive de  $\text{CO}_2$ , il est trivial de rappeler que des rehaussements de concentration en  $\text{CO}_2$  pourraient être observés.

### 3.2.3. Distributions spatiales des anomalies de ratios isotopiques $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$

Des ratios isotopiques anormaux peuvent aussi être représentés (Fig. 25). Ils sont définis comme les valeurs inférieures au seuil du 95<sup>ème</sup> percentile, soit -17.1. Ce rapport isotopique est très divergent de celui rencontré généralement qui oscille entre -10 et -11 dans notre zone.

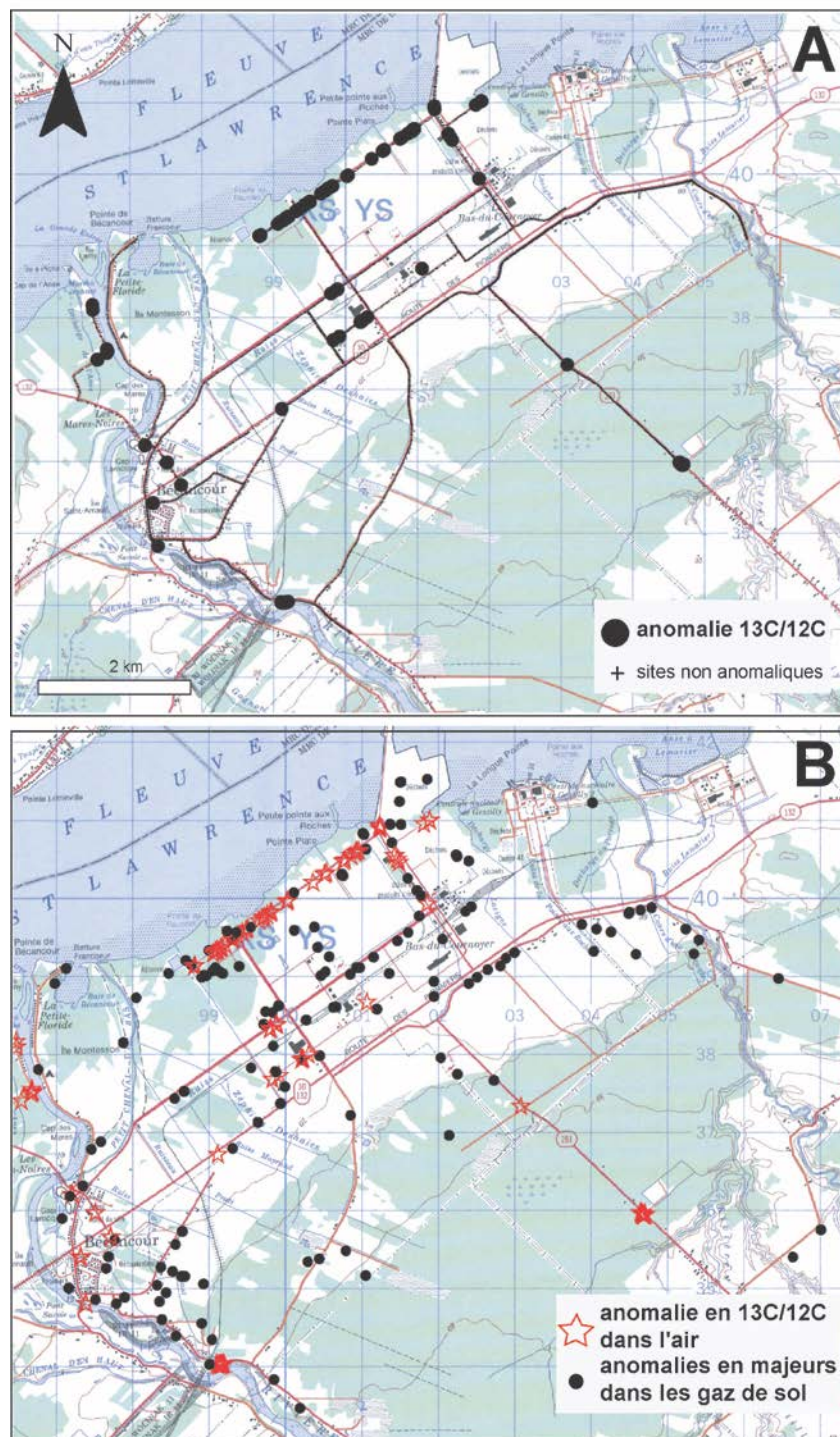


Figure 25. Cartes des anomalies des ratios isotopiques  $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  mesurés en 2011 dans l'atmosphère au niveau du sol. En haut (A), localisation des anomalies et des mesures non-anomaliées. En bas (B), relations entre les anomalies de ratio isotopique et les anomalies en gaz majeurs dans les gaz de sol (concentrations en  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$ , éthane, propane et butane).

Comme pour les concentrations les plus faibles ratios se retrouvent dans la partie nord et notamment au niveau de la zone industrielle. Il serait probable que les activités qui y sont pratiquées provoquent ces rehaussements mais il pourrait également s'agir de dégazages profonds.

Ces mesures de ratios isotopiques atmosphériques semblent reliées spatialement aux anomalies en gaz majeurs détectés dans les gaz de sol (Fig. 25 B). Les ratios isotopiques  $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  dans l'atmosphère pourraient donc potentiellement constituer de bons traceurs des flux gazeux en surface. Cette observation est particulièrement intéressante car le déploiement d'un système de mesure en continu de variables

mesurées dans l'atmosphère est particulièrement simple comparé à la mesure de gaz de sols.

#### **3.2.4. Variations des concentrations en fonction des ratios**

L'absence de relation cartographique claire entre les concentrations de  $\text{CO}_2$  et les ratios isotopiques a été étudiée sur les données. Graphiquement, les ratios isotopiques  $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  sont inversement reliés aux concentrations de  $\text{CO}_2$  mais cette relation est floue (Fig. 26). Les nuages de points restent dispersés.

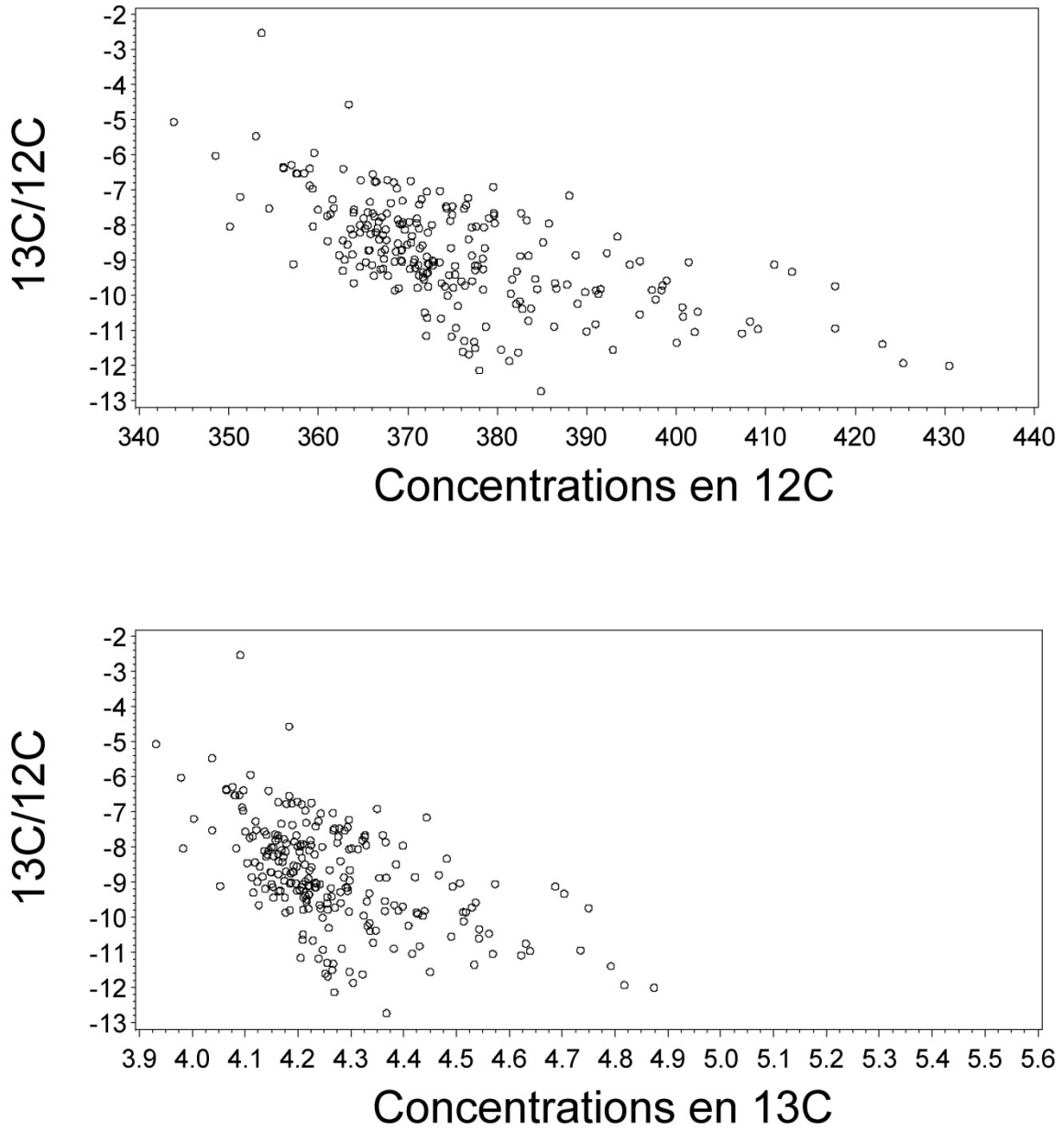
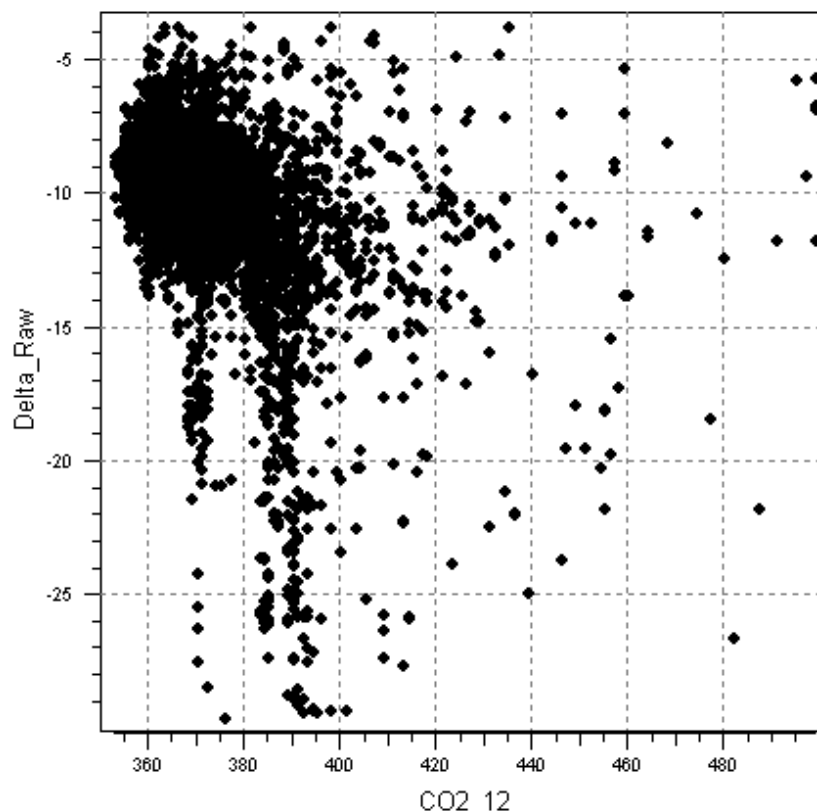


Figure 26. Relations entre les concentrations en  $^{12}\text{C}$  et  $^{13}\text{C}$  et les ratios isotopiques  $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ .



**Figure 27. Relations entre les deltas  $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  et les concentrations en  $^{12}\text{C}$ . Les 10 valeurs extrêmes en tête et en queue de distribution ont été éliminées.**

Les tests effectués en laboratoire en manipulant les concentrations en  $^{12}\text{C}$  montraient qu'il n'existait pas de relations linéaires entre les concentrations en  $^{12}\text{C}$  et le ratio isotopique  $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  du carbone (Fig. 27).

La variation des ratios  $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  en fonction de la concentration en  $\text{CO}_2$  ne proviendrait donc pas d'un biais instrumental. Ce résultat est particulièrement intéressant car les ratios isotopiques du carbone pourraient être utilisés pour déterminer l'origine du  $\text{CO}_2$  observé dans l'atmosphère au niveau du sol. Les ratios des gaz émis par les industries pourraient en particulier être comparés à ceux enregistrés dans les sols superficiels.

**Tableau 9. Statistiques descriptives des concentrations en  $^{12}\text{C}$  et des ratios isotopiques  $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  obtenus en automne 2010 et en 2011 (n=239).**

	Moyenne	variance	Premier quartile	Dernier quartile	Min	max
2010 - $^{12}\text{C}$	372	513	363	377	353	1160
2010 - $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$	-10.7	89.3	-11.2	-9.5	-150	308
2011 - $^{12}\text{C}$	375	190	366	380	343	430
2011 - $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$	-8.8	2.22	-9.7	-7.8	-12	-2

### 3.2.5. Variabilité annuelle

Le tableau ci-dessous compare le  $\text{CO}_2$  mesuré en automne 2010 et 2011 (Tab. 9).

Les statistiques calculées à partir des données collectées en 2010 montrent que les variances calculées sur l'ensemble des sites sont plus faibles. Si les moyennes calculées pour les concentrations de  $\text{CO}_2$  ( $^{12}\text{C}$ ) sont quasi identiques (372 en 2010 et 375 en 2011), les valeurs pour les ratios isotopiques diffèrent plus fortement : -10.7 en 2010 contre -8.8 en 2011.

**Tableau 10. Variabilité saisonnière des concentrations et des ratios isotopiques du CO<sub>2</sub>.**

	C12	C13	delta13C
Été (n=760)			
MIN	343	3	-15
MAX	632	7	-5
<b>MEAN</b>	<b>370</b>	<b>4</b>	<b>-10</b>
STD	14.6	0.09	1.6
Automne (n=113)			
MIN	365	4	-13.4
MAX	478	5	-10.5
<b>MEAN</b>	<b>384</b>	<b>4</b>	<b>-11.8</b>
STD	13.1	0.09	0.6
Hiver (n=47)			
MIN	371	4	-12.5
MAX	418	4	-10.5
<b>MEAN</b>	<b>390</b>	<b>4</b>	<b>-11.2</b>
STD	11.5	0	0.5

### 3.2.6. Variabilités saisonnières

Le CO<sub>2</sub> atmosphérique a été mesuré en été, en automne et en hiver pour tester l'effet de tendances ou de variabilités saisonnières dans les données (Tab. 10). Le nombre de mesures effectué en hiver est faible (47) par rapport à celles effectuées en été. Les mesures hivernales ont été prises à des fins de comparaison uniquement.

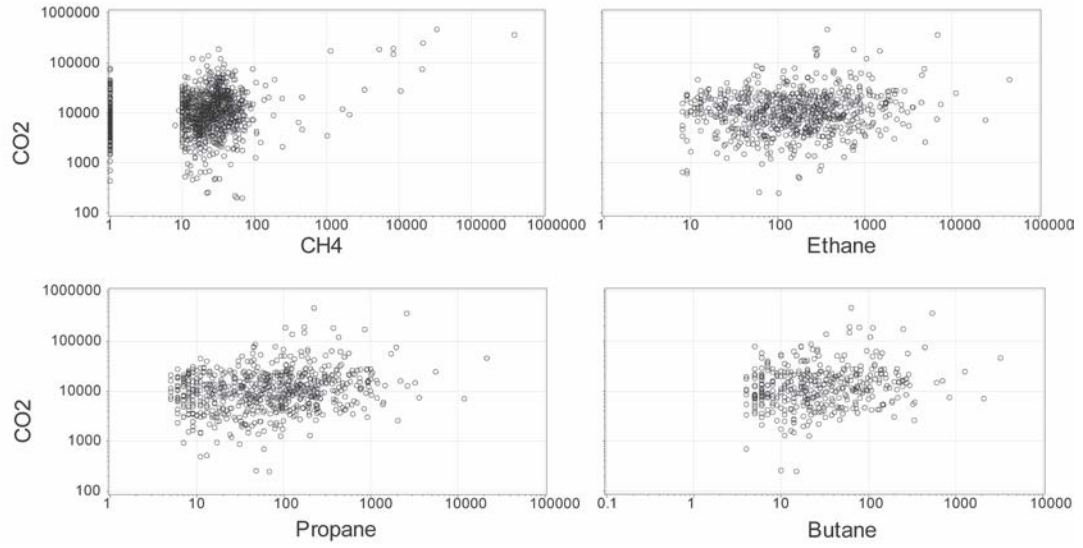
Les concentrations de CO<sub>2</sub> atmosphérique ou les ratios isotopiques au niveau du sol varient peu entre l'été, l'automne et l'hiver. Les valeurs moyennes restent proches. Par contre, elles semblent plus varier en été (STD plus forte).

Mais cet effet peut venir du nombre différent de mesures.

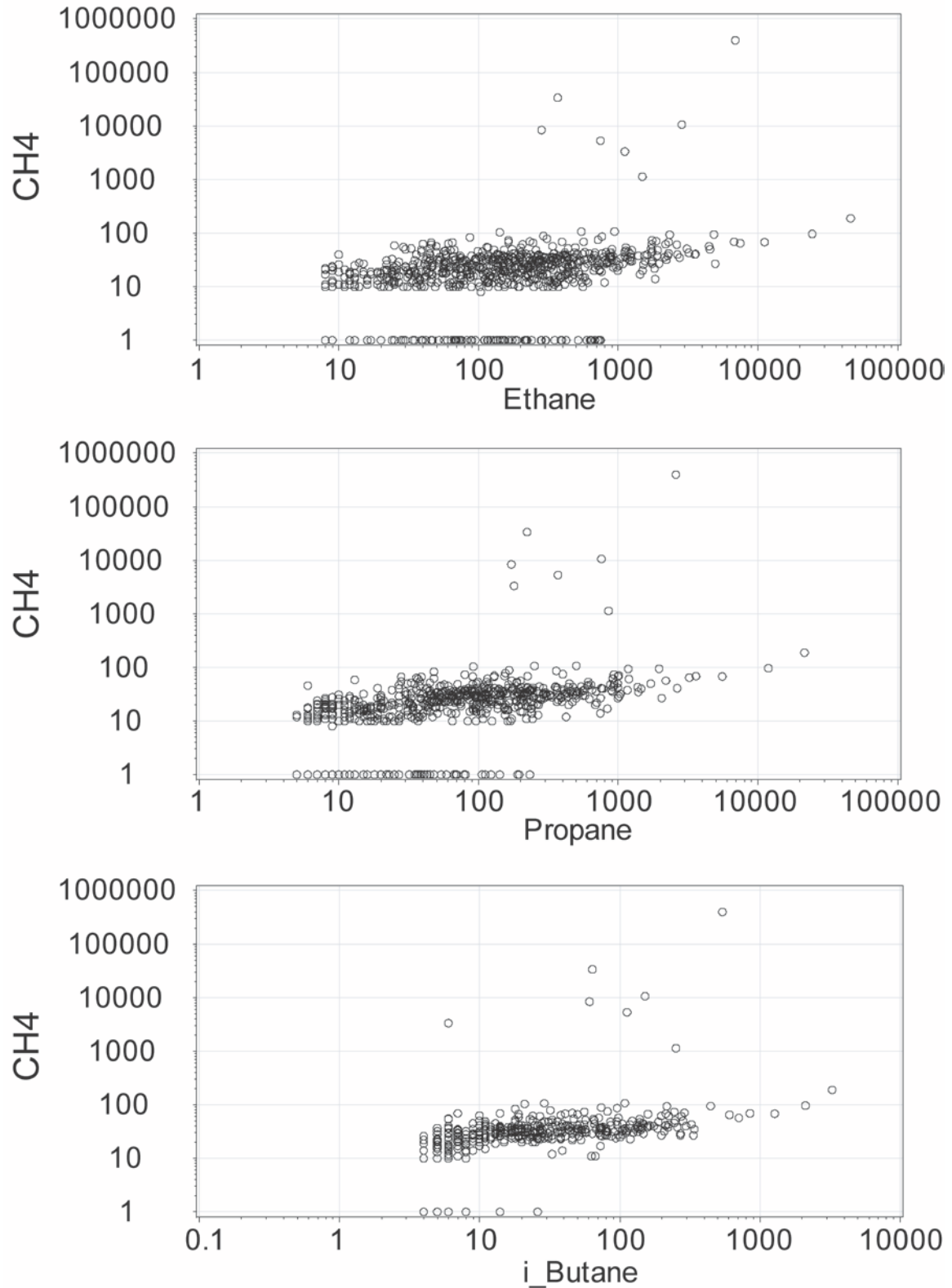
## 3.3. Gaz majeurs dans les sols

### 3.3.1. Relation entre les composés

Il semble exister de vagues relations entre les concentrations de CO<sub>2</sub> et les autres gaz majeurs (Fig. 28). Les nuages sont très dispersés et la relation serait difficilement exploitable quantitativement. On retrouve le même type de relation avec le méthane (Fig. 29).



**Figure 28. Relations entre le CO<sub>2</sub> et les autres gaz majeurs. Les échelles sont logarithmiques. Les concentrations en CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> sont en ppm, celles des hydrocarbures gazeux en ppb.**



**Figure 29. Relations entre le CH<sub>4</sub> et les autres gaz majeurs. Les échelles sont logarithmiques. Les concentrations en CH<sub>4</sub> sont en ppm, celles des hydrocarbures gazeux en ppb.**

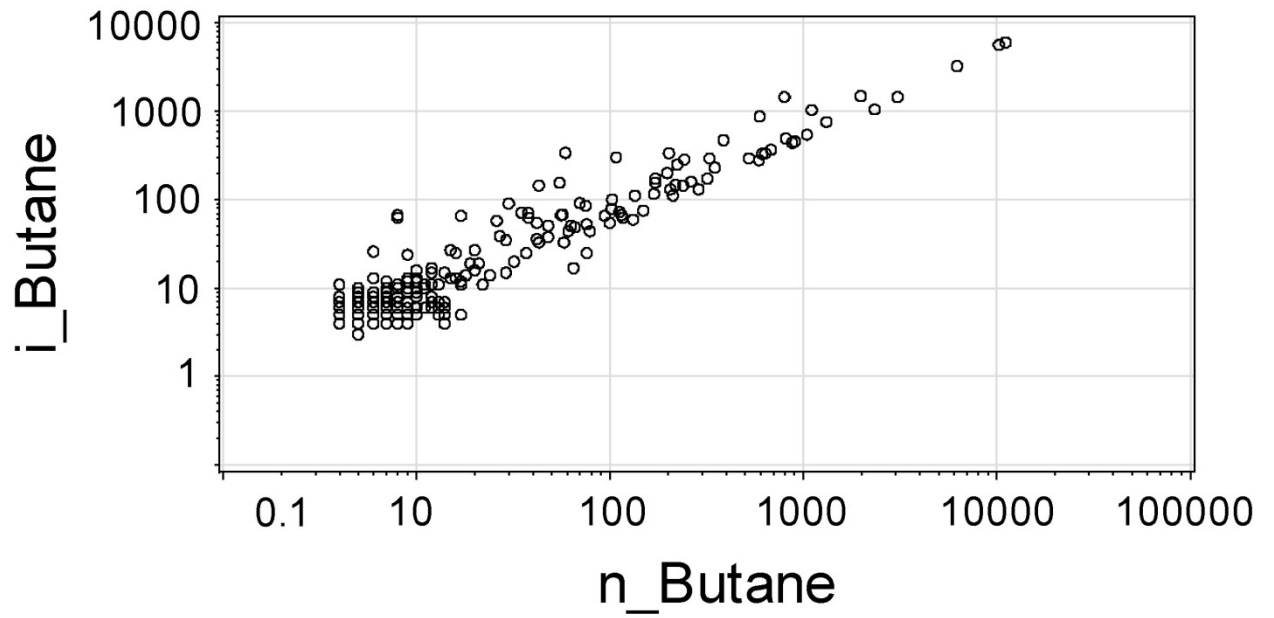
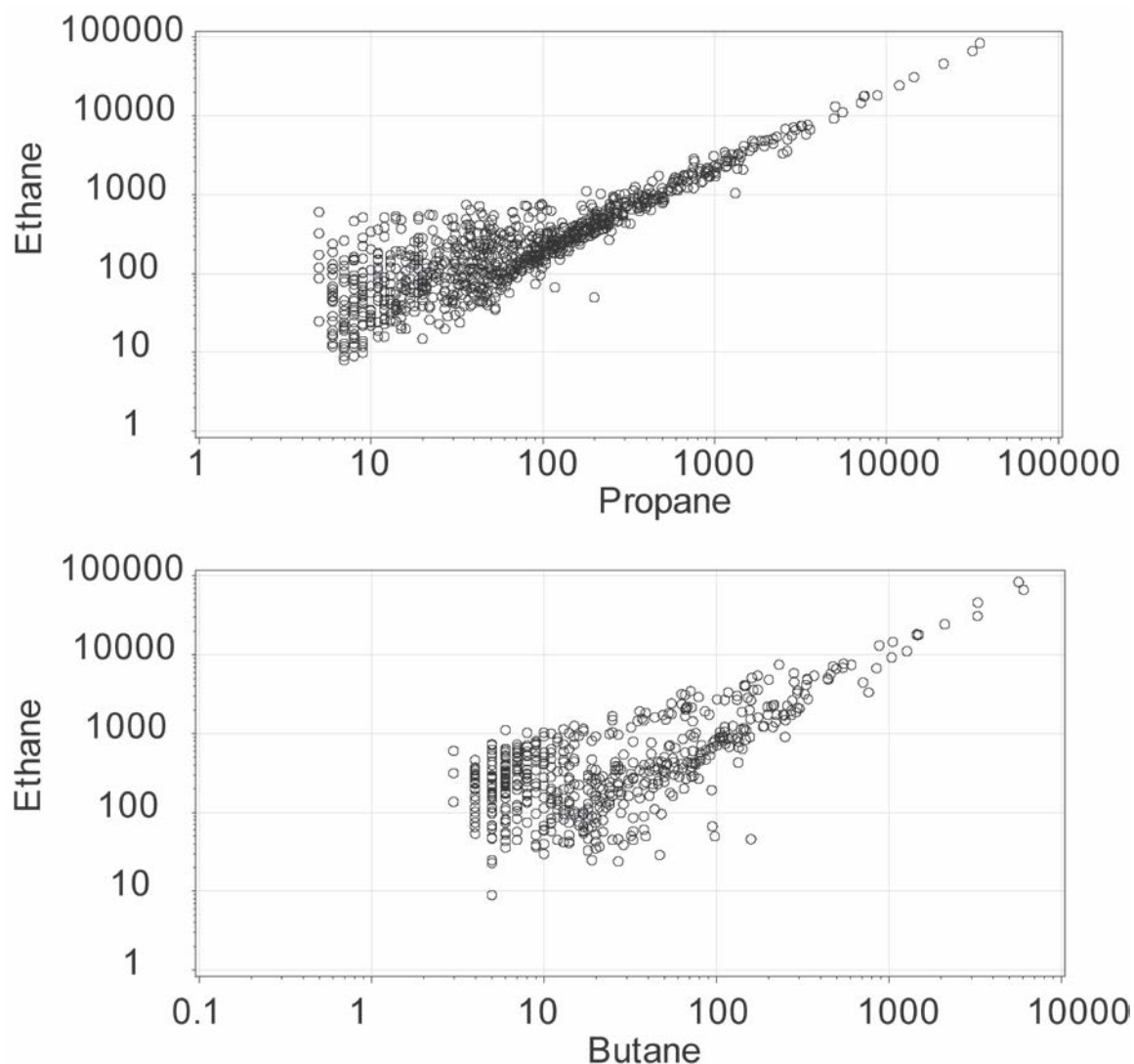


Figure 30. Relation entre le n-butane et le i-butane sur une échelle log-log.



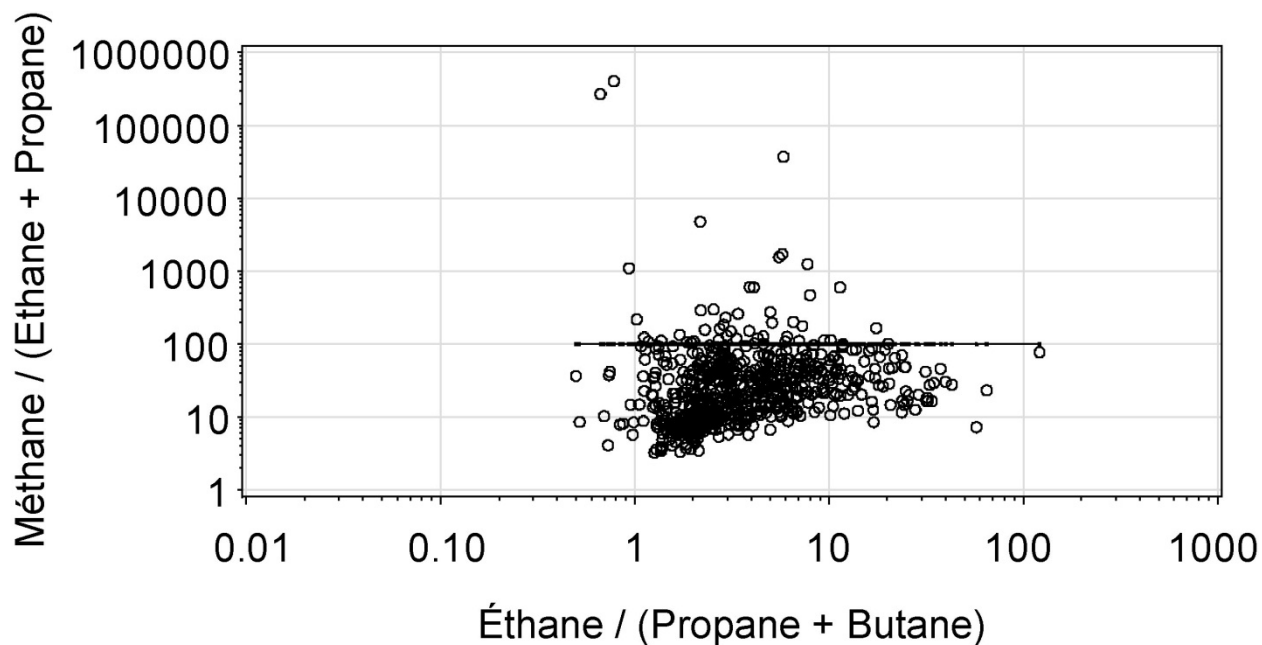
**Figure 31. Relations entre l'éthane, le propane et le i-butane. Les échelles sont logarithmiques. Les concentrations sont en ppb.**

Les concentrations en i-butane sont très bien corrélées avec celles du n-butane et l'ajout des deux isomères n'apporte pas d'information supplémentaire (Fig. 30).

Les concentrations d'éthane sont également très liées à celles du propane et du butane (Fig. 31).

Finalement, les concentrations en gaz majeurs semblent être reliées. Des sites présenteraient de fortes valeurs des différents composés et sur d'autres sites à l'inverse, les valeurs de concentrations mesurées seraient plus faibles.

Cette relation globale positive indique qu'il est possible de cartographier les anomalies des différents composés de manière conjointe. La dispersion des nuages montre que l'approche multi espèce retenue peut apporter une information complémentaire lors des cartographies.

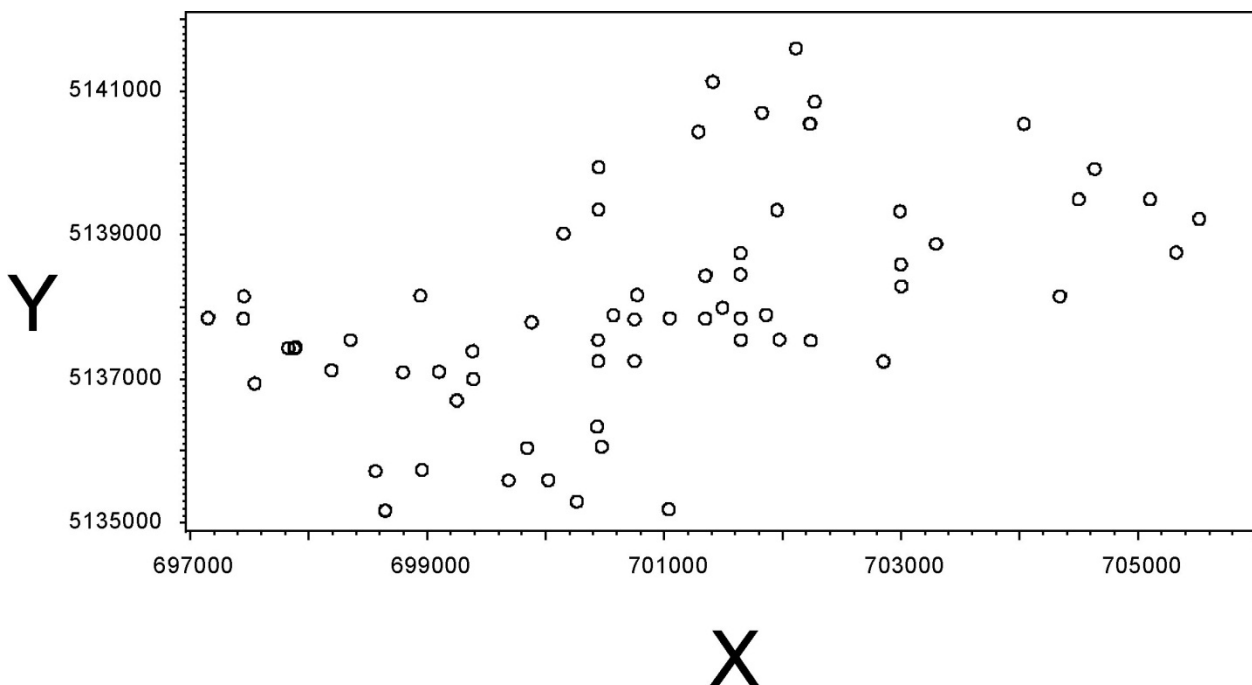


**Figure 32. Relation entre le rapport méthane/(éthane+propane) et le rapport éthane/(propane+butane).**

### 3.3.2. Origine biogénique et thermogénique du méthane

Il était possible de voir avec les ratios moléculaires que certaines fortes concentrations en  $\text{CH}_4$  observées n'étaient pas reliées aux concentrations des autres gaz (Fig. 32).

Une coupure à la valeur 100 pour le rapport méthane/(éthane+propane) a été proposée pour définir une limite à partir de laquelle les données de  $\text{CH}_4$  observées devaient être considérées comme probablement d'origine biogéniques (Schumacher et Abrams, 1996). Si on retient la même valeur pour Bécancour, on voit que les sites concernés sont dispersés sur l'ensemble de la zone d'étude (Fig. 33).



**Figure 33. Position spatiale des sites possédant un rapport méthane/(éthane+propane) supérieur à la valeur 100. Les coordonnées géographiques sont exprimées dans le système WGS84 Zone 18 nord.**

Il n'existe pas de relation claire entre la présence de ces concentrations en méthane non associé à l'éthane ou le propane et des éléments de description des sites échantillonnés comme l'humidité des sols, les taux de matière organique, la pédologie... ). En particulier, les sites sélectionnés ne correspondent pas à des zones de mauvais drainage, comme les marais, où la décomposition de la matière organique anaérobie produit de grandes quantités de méthane. Il semble donc difficile de retenir cette méthode des ratios moléculaires pour

sélectionner et éliminer des sites où les concentrations de  $\text{CH}_4$  seraient influencées fortement par une activité biogénique.

### **3.3.3. Carte des anomalies en gaz majeurs**

Les anomalies en  $\text{CO}_2$  (concentrations et ratios isotopiques), en  $\text{CH}_4$  et en hydrocarbures gazeux sont spatialisées sur les figures suivantes (Figs. 34 à 37).

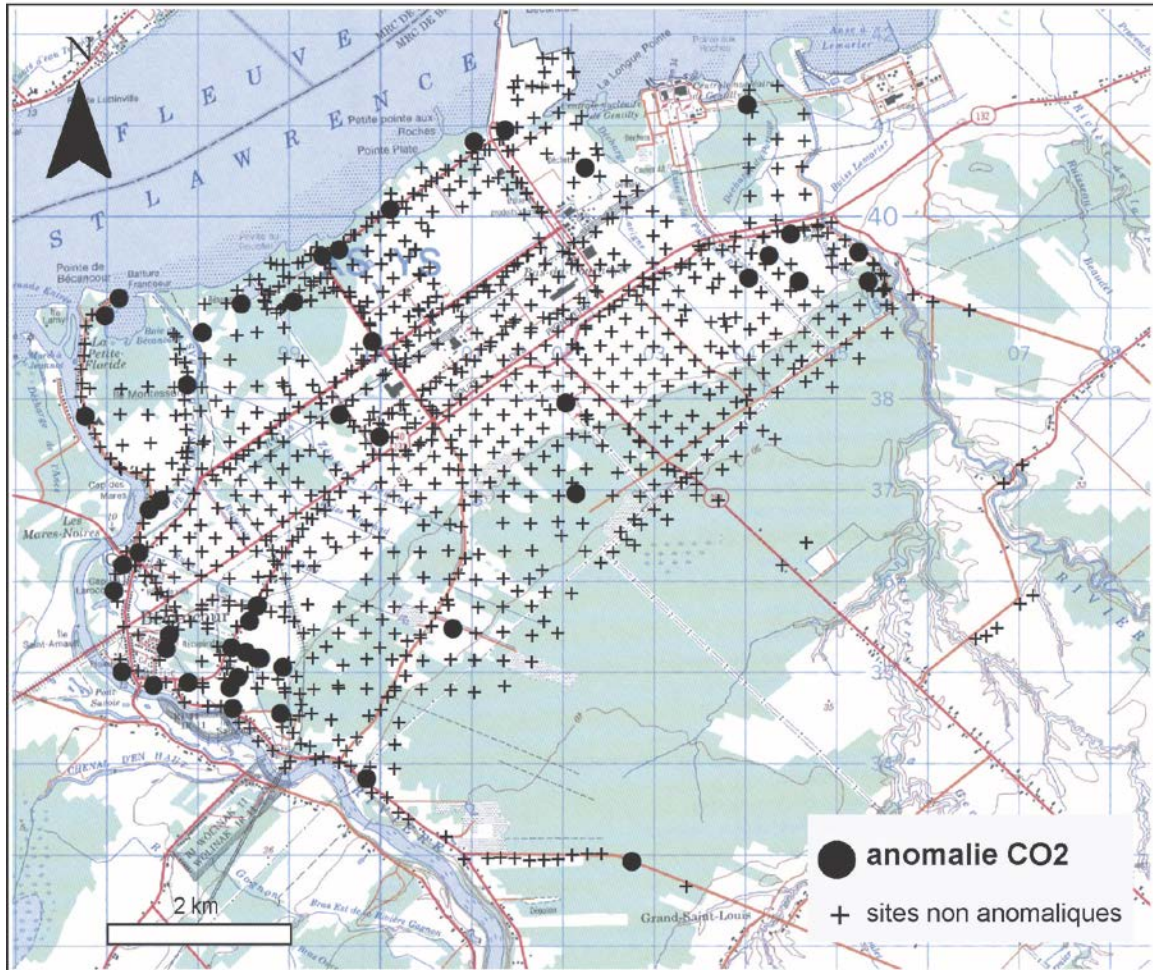


Figure 34. Carte des anomalies de concentration en CO<sub>2</sub> dans les gaz de sol. Les anomalies correspondent aux valeurs du 95<sup>ème</sup> percentile.

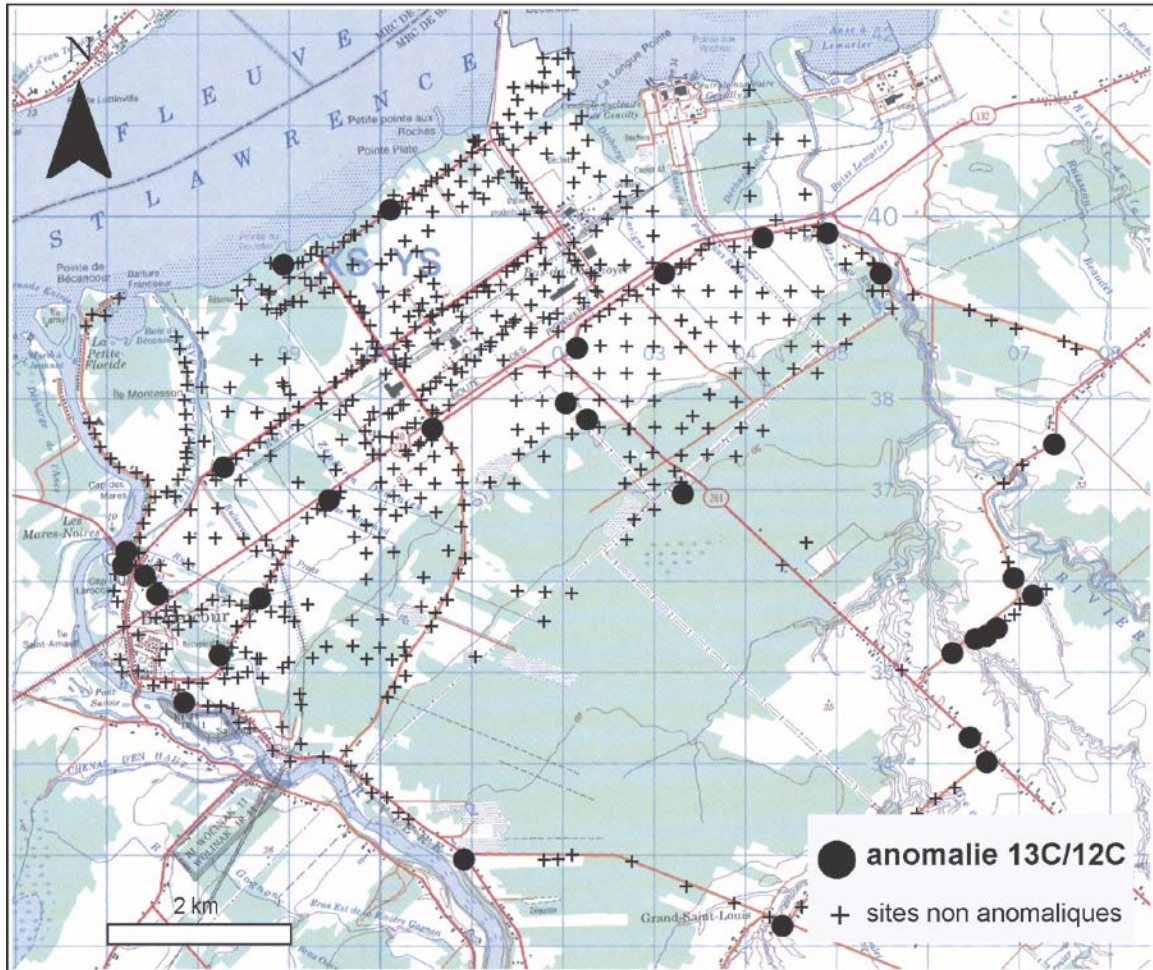


Figure 35. Carte des anomalies du ratio isotopique  $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  dans les gaz de sol. Les anomalies correspondent aux valeurs du 95<sup>ème</sup> percentile.

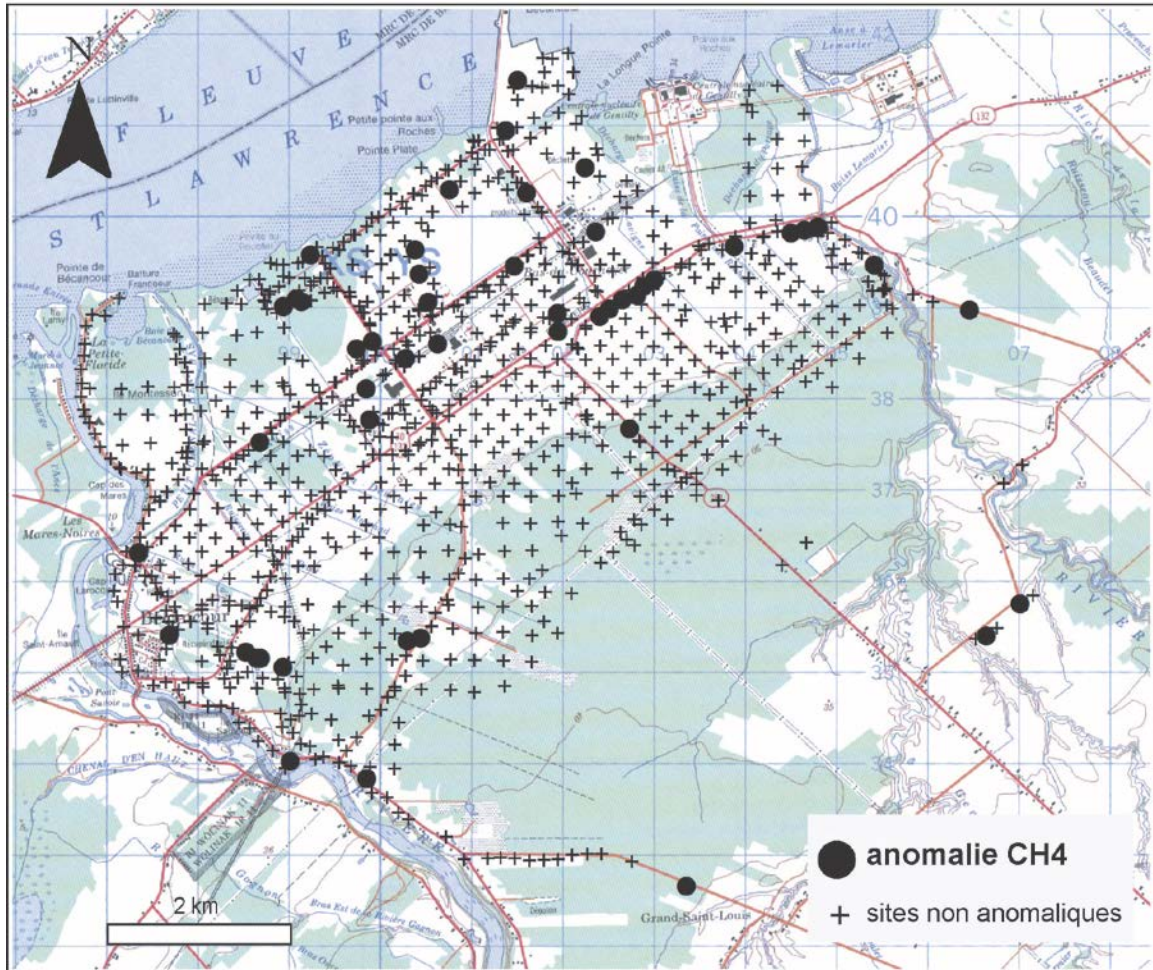
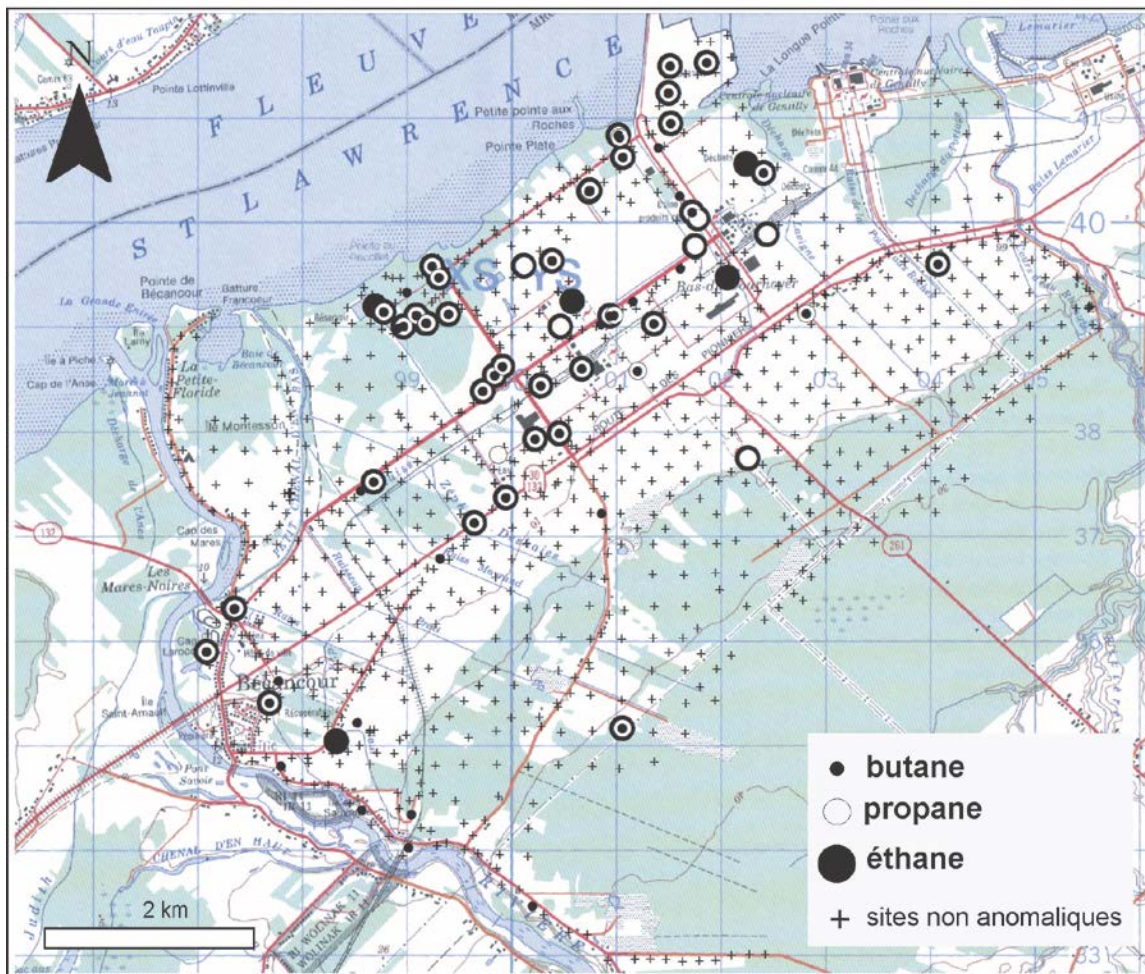


Figure 36. Carte des anomalies de concentrations en CH<sub>4</sub> dans les gaz de sol. Les anomalies correspondent aux valeurs du 95<sup>ème</sup> percentile.



**Figure 37. Carte des anomalies en hydrocarbures gazeux. Les anomalies correspondent aux valeurs du 95<sup>ème</sup> percentile. Les trois composés mesurés (éthane, propane, butane) sont représentés avec des symboles différents.**

Les anomalies en gaz majeurs dans les gaz de sol sont essentiellement rencontrées dans la zone nord et le long de la rivière Bécancour (Fig. 34). Il est tentant de rapprocher visuellement la présence d’anomalies avec d’autres entités spatiales comme la présence d’eau ou de routes. Ces hypothèses ont été testées. Les présences de ces anomalies ont été reliées à des facteurs confondants potentiels. Quelques exemples de ces analyses sont présentés en annexe : profondeur de prélèvement (annexe 1), humidité et température au moment de l’échantillonnage (annexe 2), puits de forage (annexe 3) et routes (annexe 4). D’autres facteurs ont également été étudiés : données concernant les sols (textures,

dépôts, physicochimie), conduites de gaz souterraines. Les résultats obtenus ne sont pas présentés dans ce rapport pour ne pas surcharger ce document. Finalement, aucune des analyses effectuées ne montre que les variables confondantes étudiées pourraient déterminer les patrons spatiaux obtenus.

Par conséquent, il est probable que les anomalies détectées en surface, dans les gaz de sol, correspondent à des remontés de gaz. L’origine et la profondeur de ces gaz restent toutefois inconnues. Les relations spatiales avec la faille de Yamaska sont étudiées spécifiquement un peu plus loin.

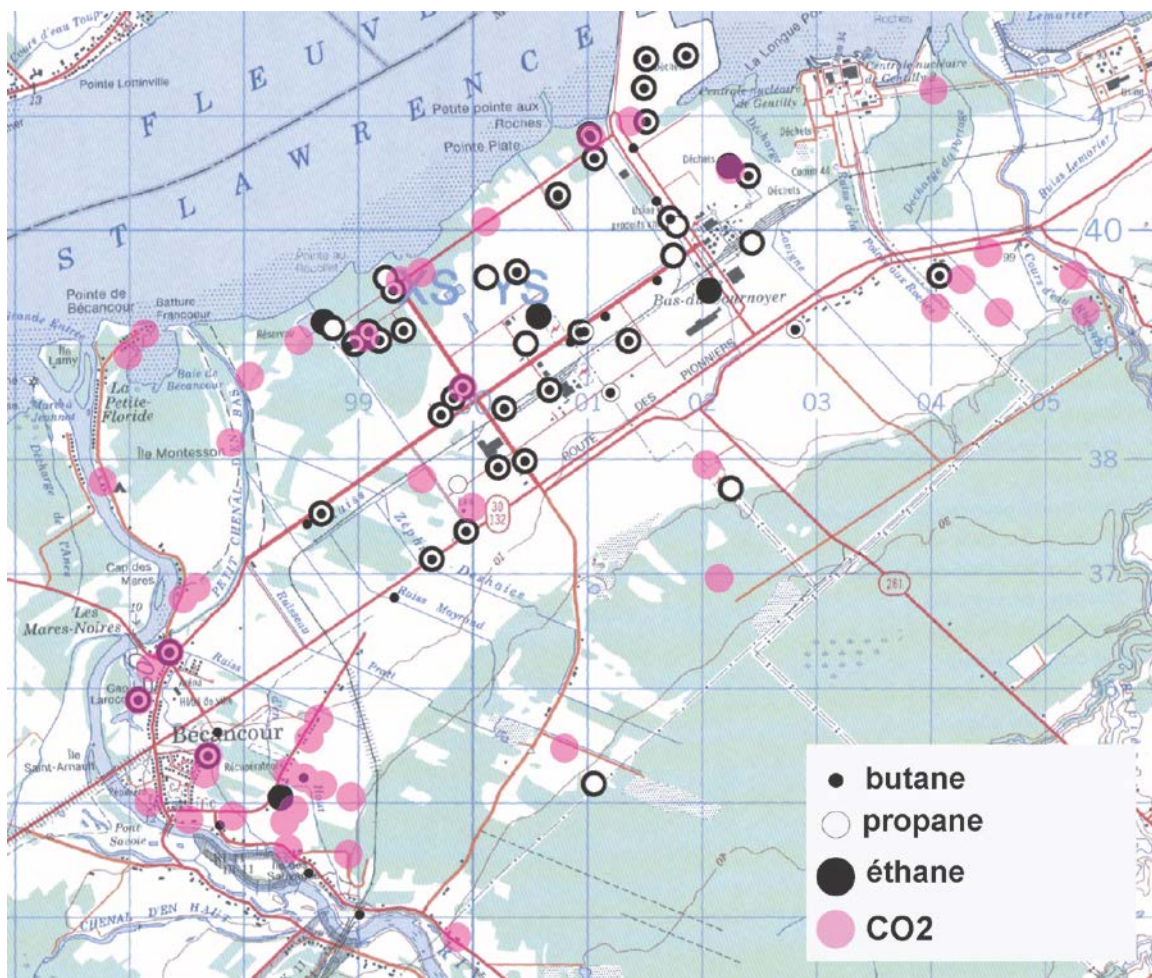


Figure 38. Relations entre les anomalies en hydrocarbures et les concentrations en CO<sub>2</sub> dans les gaz de sols.

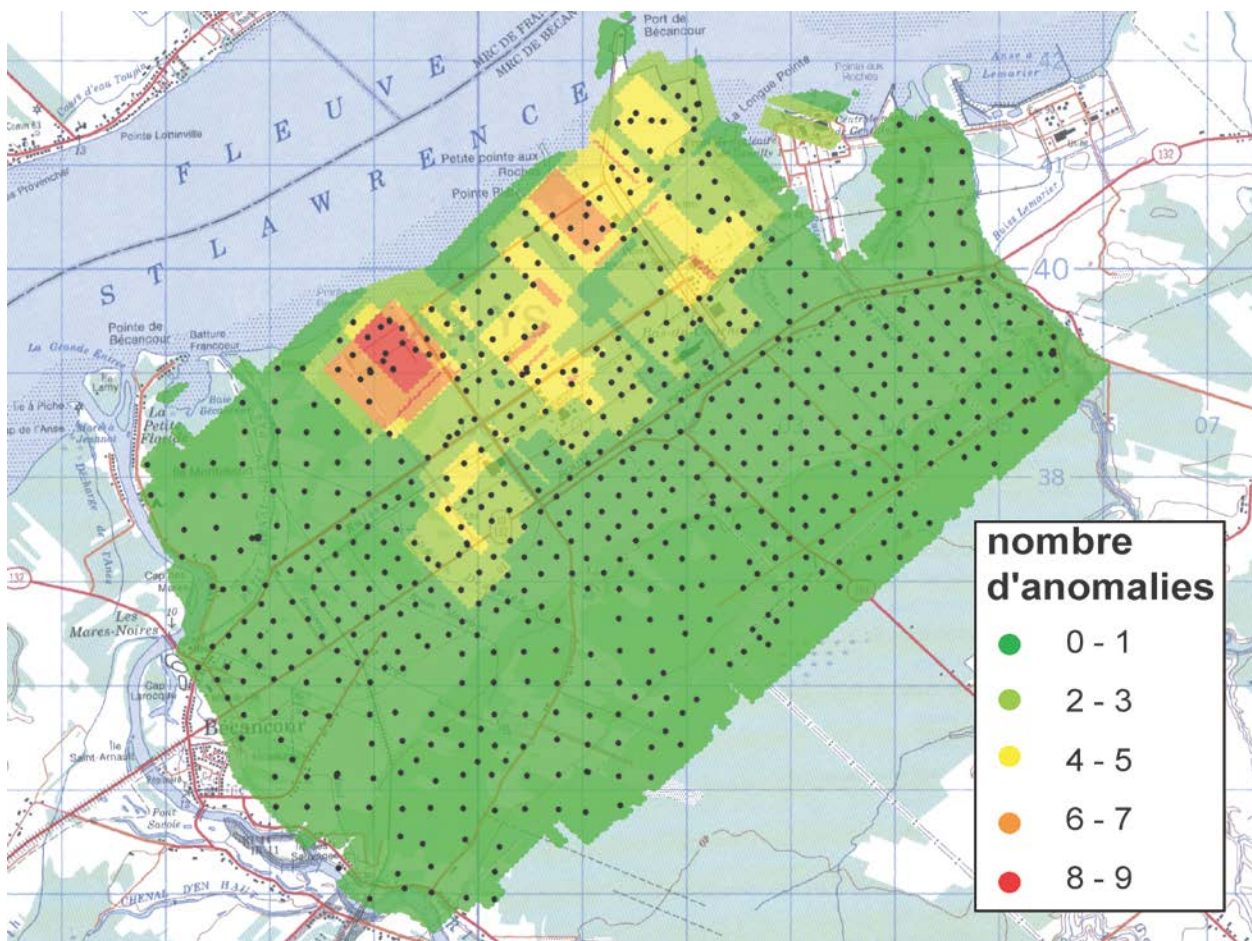
### 3.3.4. Relation entre les anomalies en hydrocarbures et en CO<sub>2</sub>

Les relations vagues détectées entre les concentrations de CO<sub>2</sub> et les hydrocarbures gazeux semblent se confirmer spatialement (Fig. 38). Même si les superpositions ne sont pas parfaites, les territoires où sont observées les anomalies en CO<sub>2</sub> sont aussi ceux où sont rencontrées les anomalies en hydrocarbures gazeux. Cette relation spatiale a été étudiée et mise à profit pour optimiser l'échantillonnage des hydrocarbures gazeux (cf. premier rapport).

Les anomalies en CO<sub>2</sub> et en CH<sub>4</sub> combinées avec l'information multispectrale d'une image de télédétection permettent de cibler des territoires où la probabilité d'occurrence d'anomalies en hydrocarbures gazeux est plus importante.

### 3.3.5. Cartes de densité des anomalies en hydrocarbures gazeux

Une méthode de représentation cartographique adaptée à nos données est de présenter des cartes de densité d'anomalies.

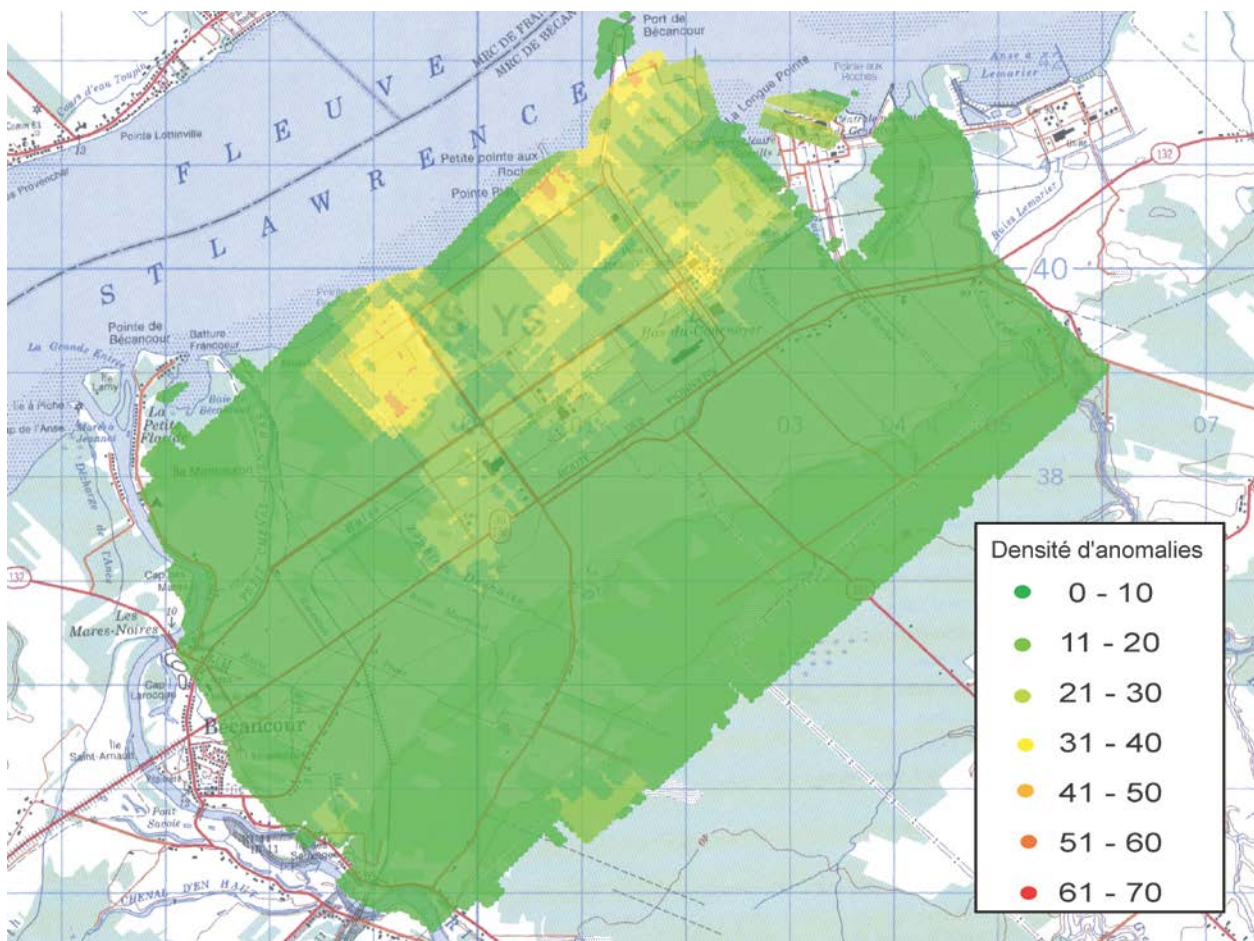


**Figure 39. Densité spatiale d’anomalies en hydrocarbures gazeux. Représentation du nombre d’anomalies détectées dans un rayon de 600 mètres de chaque point de grille. Une anomalie est présente si une concentration en éthane, propane ou butane est supérieure au 95<sup>ème</sup> percentile de sa distribution sur l’ensemble de la zone. Les points noirs représentent les sites échantillonnés.**

Les cartes de densité d’anomalies sont une représentation possible des données mesurées (Fig. 39). La densité pour chaque point d’une grille de 30 m par 30 m a été calculée comme le nombre d’anomalies en hydrocarbures gazeux observées dans un rayon de 600 m. Cette valeur choisie arbitrairement permettait d’obtenir un nombre de 16 voisins en moyenne plus ou moins 7.

Les cartes produites de cette manière présentent l’avantage de s’affranchir des fausses absences. Seules les présences d’anomalies sont considérées. Cependant elles ne sont pas exemptes de biais. Par exemple, les structures

pseudo-polygonales sont un des artefacts liés à la répartition des anomalies. D’autre part, à une échelle locale (600 mètres), les zones de plus fortes densités ne sont pas celles où le plus d’anomalies sont observées mais celles se trouvant spatialement entre des anomalies. Le biais potentiellement le plus important est celui relié à la non isotropie spatiale de la densité d’échantillonnage. Des anomalies ont le plus de chance d’être détectées dans des secteurs où la densité de sites échantillonnés est plus importante. La normalisation au nombre de voisins considérés permet de détecter cet artefact (Fig. 40).



**Figure 40. Densité d’anomalies en hydrocarbures gazeux. Représentation du nombre d’anomalies détectées divisé par le nombre de sites voisins considérés dans un rayon de 600 mètres. Ce nombre est exprimé en pourcentage. Une anomalie est présente si une concentration en éthane, propane ou butane est supérieure au 95<sup>ème</sup> percentile de sa distribution sur l’ensemble de la zone.**

Les deux cartes montrent des structures spatiales identiques. La localisation des anomalies ne semble donc pas liée à des problèmes de variabilité spatiale d’échantillonnage.

Malgré les restrictions imposées par ces représentations, les cartes de densité d’anomalies

en hydrocarbures gazeux permettent d’observer une zone plus fortement anormale correspondant au secteur de la zone industrielle.

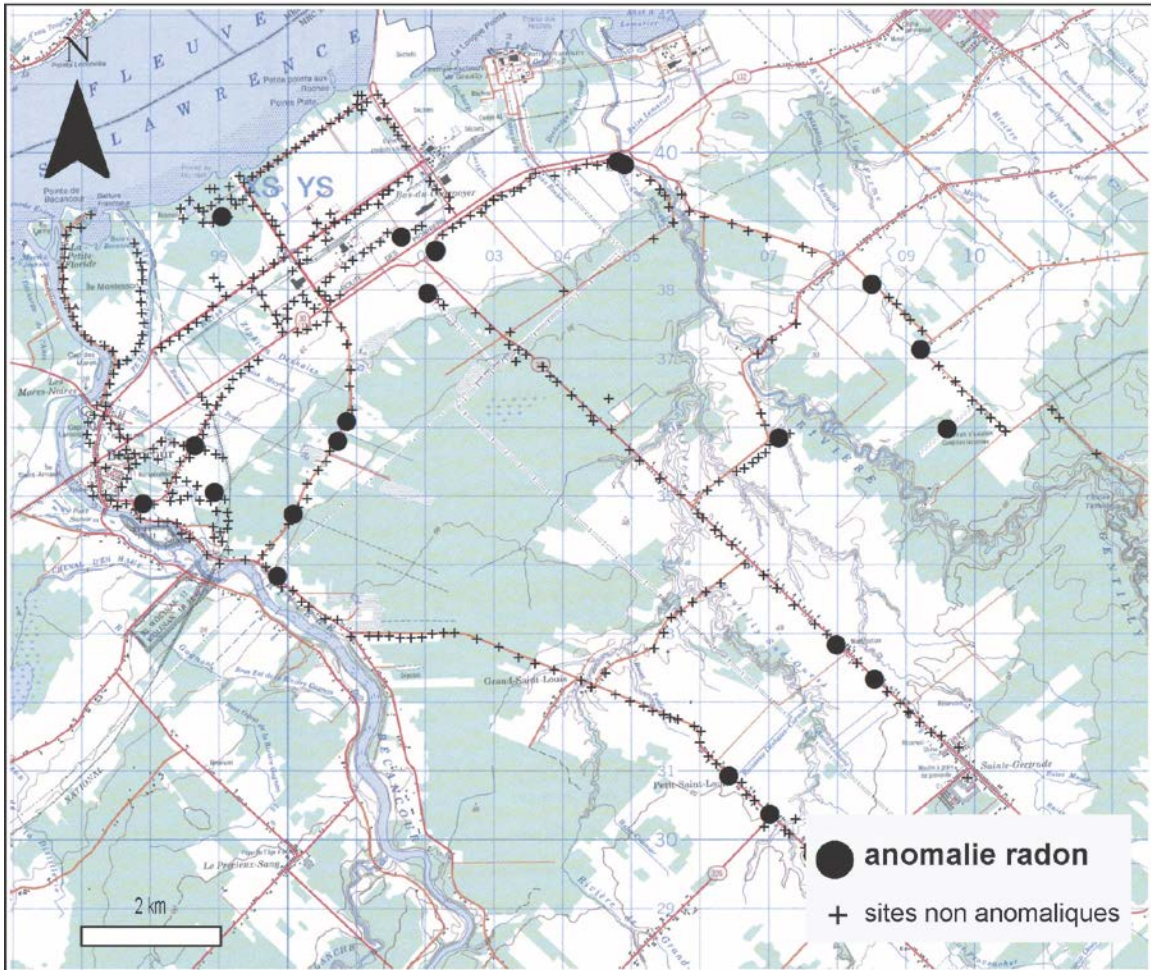


Figure 42. Carte des anomalies en radon dans les gaz de sol. Les anomalies correspondent aux valeurs du 95<sup>ème</sup> percentile, soit 15 805 Bq/m<sup>3</sup>.

### 3.4. Radon dans les sols

#### 3.4.1. Carte des anomalies de radon dans les sols

Les anomalies de radon ne sont pas réparties de manière aléatoire dans la zone d'étude. Elles sont observées préférentiellement dans deux zones orientées nord-est, sud-ouest (Fig. 42). Une zone centrale, boisée (en vert sur la carte), est en particulier exempte d'anomalies. La zone

couverte est plus importante que pour les gaz majeurs du fait de la méthode d'échantillonnage retenue. Les anomalies observées à sud-est ne peuvent donc pas être comparées à celles des autres gaz.

Les anomalies de concentration sont les valeurs supérieures ou égales à 15 800 Bq/m<sup>3</sup>. Ce seuil est bien en dessous de celui de 50 000 Bq/m<sup>3</sup> qui correspond au critère suédois pour des concentrations fortes (cf. section « valeurs de référence »).

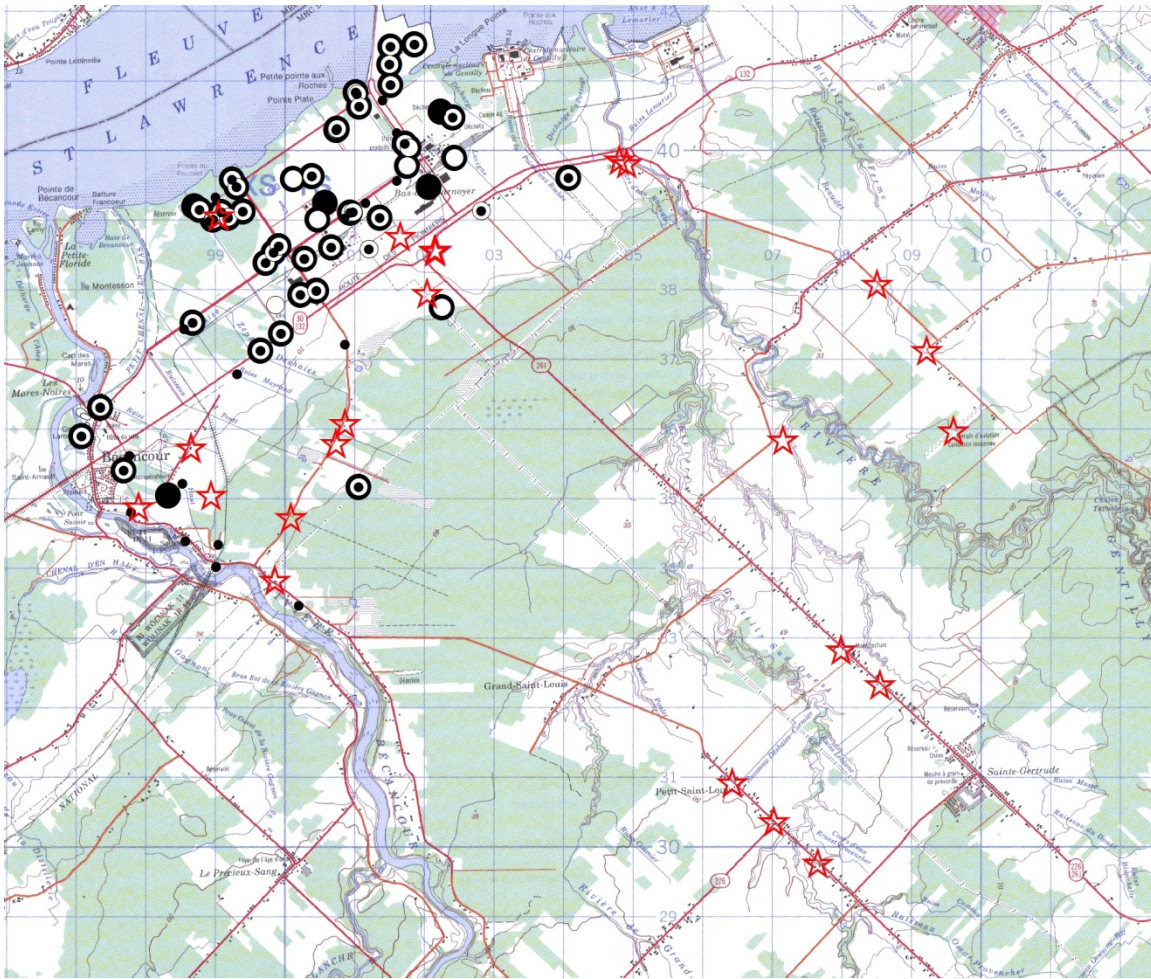


Figure 43. Superposition des anomalies en radon (étoiles rouges) et des anomalies en hydrocarbures gazeux points noirs et blancs de diamètre variable.

### 3.4.2. Relation avec les anomalies d'hydrocarbures gazeux

Les anomalies en radon ne semblent que partiellement reliées à celles des hydrocarbures gazeux (Fig. 43). Ceci suggère une origine différente pour ces gaz. Deux zones présentent des anomalies en hydrocarbures et en radon. La première est située le long du Fleuve Saint-Laurent et la seconde un peu au sud de Bécancour. Ces zones seraient intéressantes à échantillonner plus en détail.

Les anomalies en radon détectées plus à l'est ne peuvent pas être comparées aux données d'hydrocarbures. Il serait intéressant de posséder des données d'hydrocarbures gazeux dans les sols dans cette zone.

### 3.4.3. Relation avec les mesures de rayonnement gamma aéroportées

Le ministère des Ressources naturelles du Canada enregistre des mesures de rayonnement gamma en installant des capteurs sous des avions. Les mesures sont organisées en transects linéaires avec pour objectif de couvrir des niveaux régionaux. Les spectres de rayonnement gamma sont enregistrés pour trois composantes (résumant l'essentiel du rayonnement gamma total) : le potassium (K), le thorium ( $\epsilon$ Th) et l'uranium ( $\epsilon$ U). La dénomination « $\epsilon$ U» provient du fait que l'on enregistre en fait un équivalent uranium. Les comptes en gamma sont enregistrés

dans une région d'intérêt 1660-1860 keV centrée sur le pic du 214bismuth.

Le signal de rayonnement gamma est fourni par la couverture superficielle, par effet d'atténuation, les formations géologiques profondes ne contribuent pas au signal recueilli. Dans notre cas, il est intéressant de corrélérer les concentrations de radon mesurées dans les gaz de sol avec les concentrations en U dérivées du rayonnement gamma. Si le radon est produit par décomposition de l'uranium superficiel, on devrait observer une corrélation entre les deux jeux de données. L'absence de relation renforce l'hypothèse que le radon observé dans le sol provient d'une source plus profonde.

Les cartographies produites par le ministère des Ressources naturelles du Canada sont difficilement exploitables à un niveau local comme celui de notre zone d'étude. Par contre,

les données non-interpolées (les mesures en transects) peuvent être rapprochées des mesures de radon. Les données utilisées sont les mesures d'éU corrigées pour différents biais. Elles fournissent des concentrations en U au niveau du sol en ppm.

Les mesures d'U et de Rn proches géographiquement, c'est-à-dire localisées à moins de 100 m de distance, ont été regroupées dans une matrice. Cette distance maximale est un compromis permettant d'obtenir un nombre d'enregistrement suffisant et de conserver les relations potentielles entre les deux variables. Cette distance est aussi la portée du semivariogramme calculé sur l'éU (Fig. 44). C'est-à-dire la limite de distance entre une paire de points à partir de laquelle on n'observe plus de relation spatiale (ressemblance en fonction de la proximité).

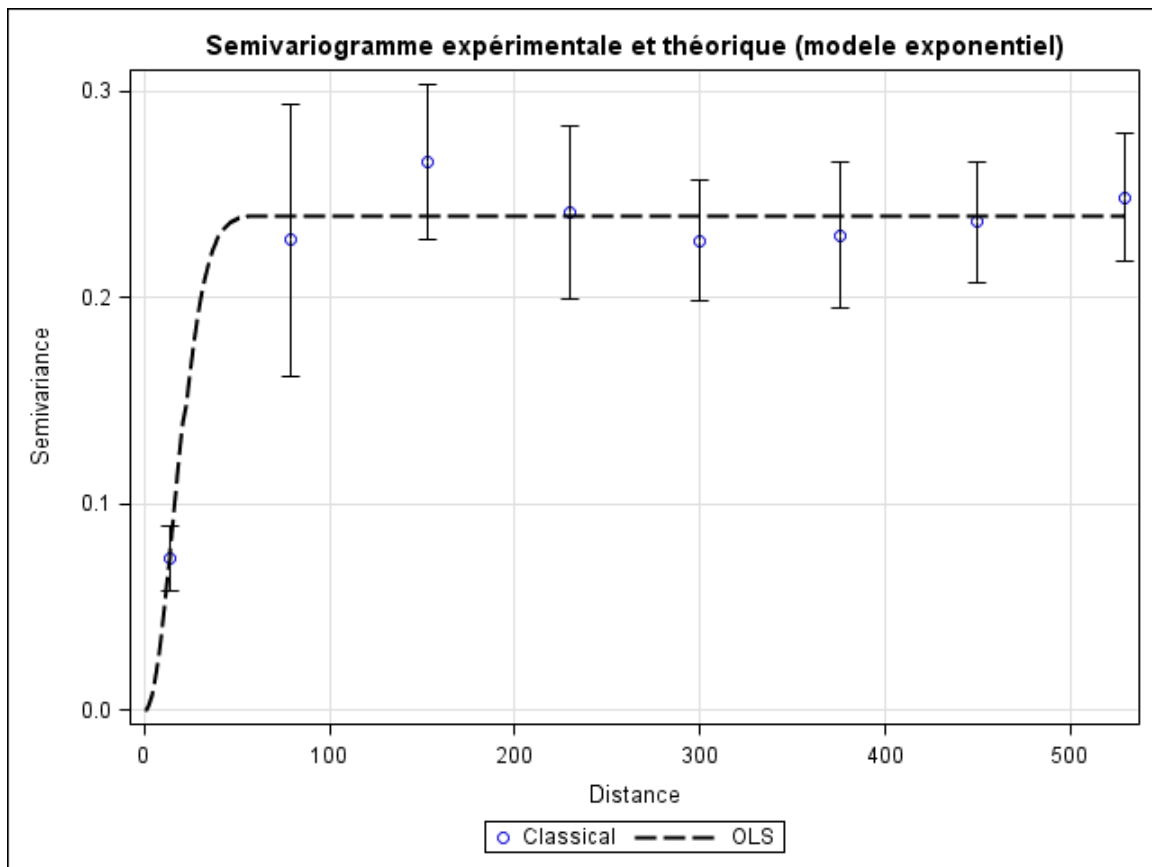


Figure 44. Semivariogramme de l'éU.

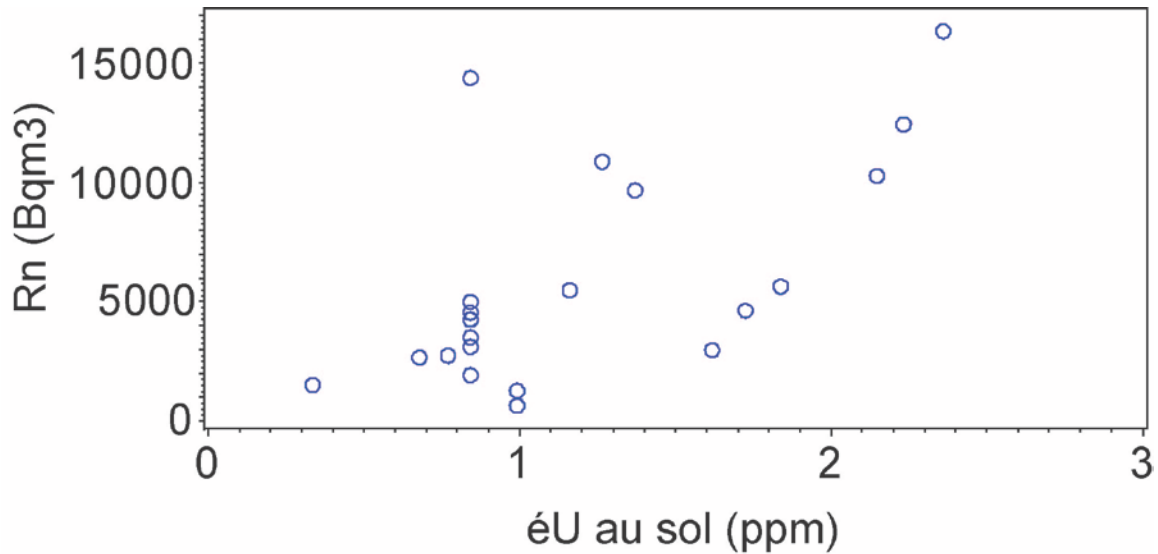


Figure 45. Relation entre le radon (Rn) mesuré dans les sols et un équivalent uranium (éU) obtenu par levé aéroporté de rayonnement gamma (Ressources Naturelles Canada). L'éU est obtenu par correction des comptes en gamma pour la région d'intérêt 1660-1860 keV.

Il semble exister une relation entre le Rn et l'éU (Fig. 45).

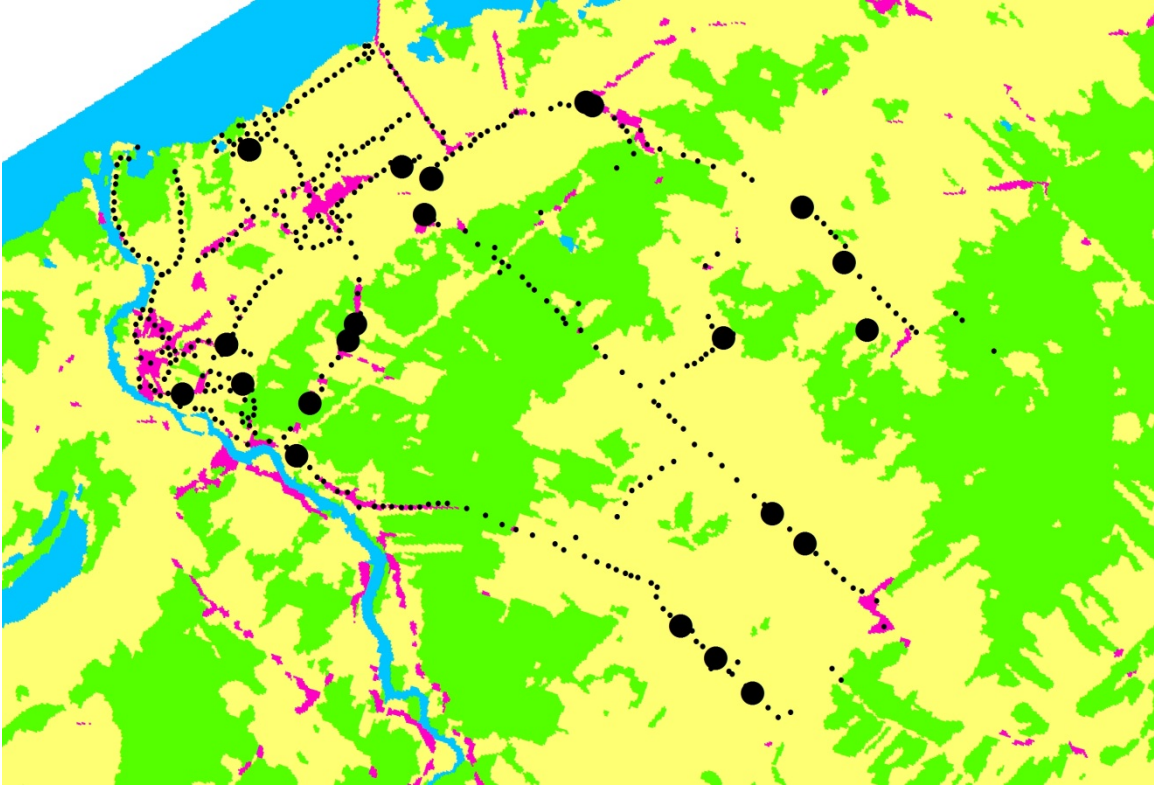
L'existence d'une relation est confirmée par l'analyse statistique (régression linéaire :  $R^2=0.4$ ;  $F= 13$ ;  $P < 0.05$ ). Cependant, avec un nombre de points de comparaison peu important ( $n=22$ ), ce résultat seul reste sujet à caution. D'ailleurs lorsqu'on retient les mesures situées 20 m plus loin (distance maximale de 120 m) la relation n'est plus significative ( $R = 0.09$ ;  $p\text{-value} = 0.13$ ).

Si on accepte l'existence d'une relation entre le radon et l'éU, le radon détecté dans les gaz de

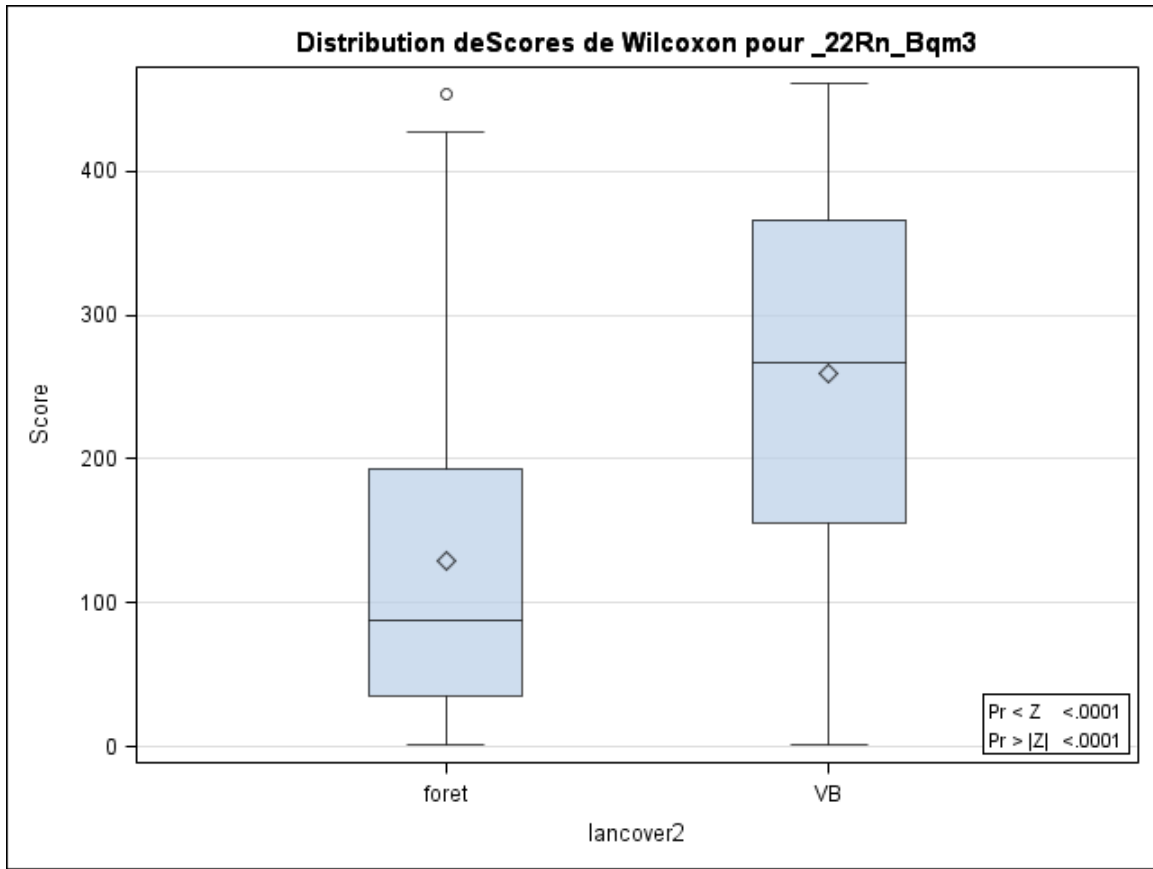
sols pourrait provenir d'un enrichissement en uranium superficiel plutôt que de remontées de gaz profonds.

#### 3.4.4. Relation avec l'occupation du sol

Un modèle d'occupation du sol a été établi pour notre zone d'étude et pour une zone plus étendue (Paucar *et al.*, 2013). Visuellement, il semble exister une relation entre l'occupation du sol et la présence d'anomalies en radon dans les sols (Fig. 46)



**Figure 46.** Relation entre les anomalies en radon (gros points noirs) et l'occupation du sol. Les petits points noirs représentent les sites échantillonnés pour le radon mais où aucune anomalie n'a été détectée.



**Figure 47. Test de la différence des concentrations en radon dans les gaz de sol (Rn\_Bqm3) en fonction de l'occupation du sol (forêt versus végétation basse agricole et non agricole). Test non paramétrique de Kruskal-Wallis.**

Les tests statistiques confirment que les concentrations en radon sont significativement plus faibles pour les territoires couverts de forêt (Fig. 47).

Ceci correspond bien au fait que les anomalies en radon ne sont pas rencontrées dans les zones forestières.

Une relation existe également entre l'occupation du sol et l'équivalent uranium au niveau du sol (éU) obtenu par détection aéroporté des rayons gamma (Fig. 48).

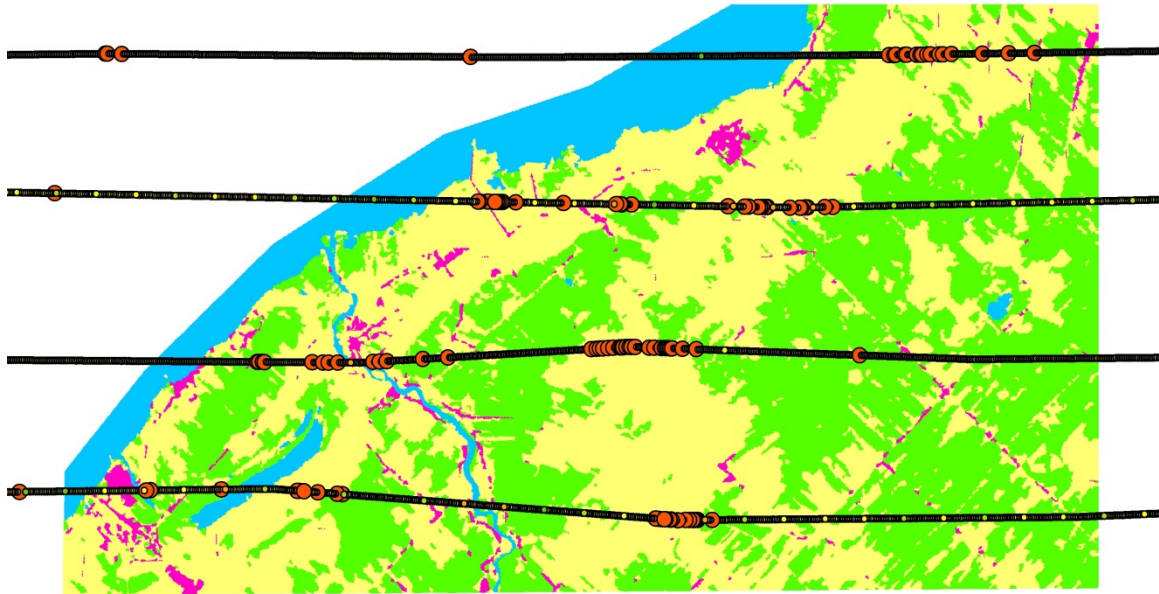
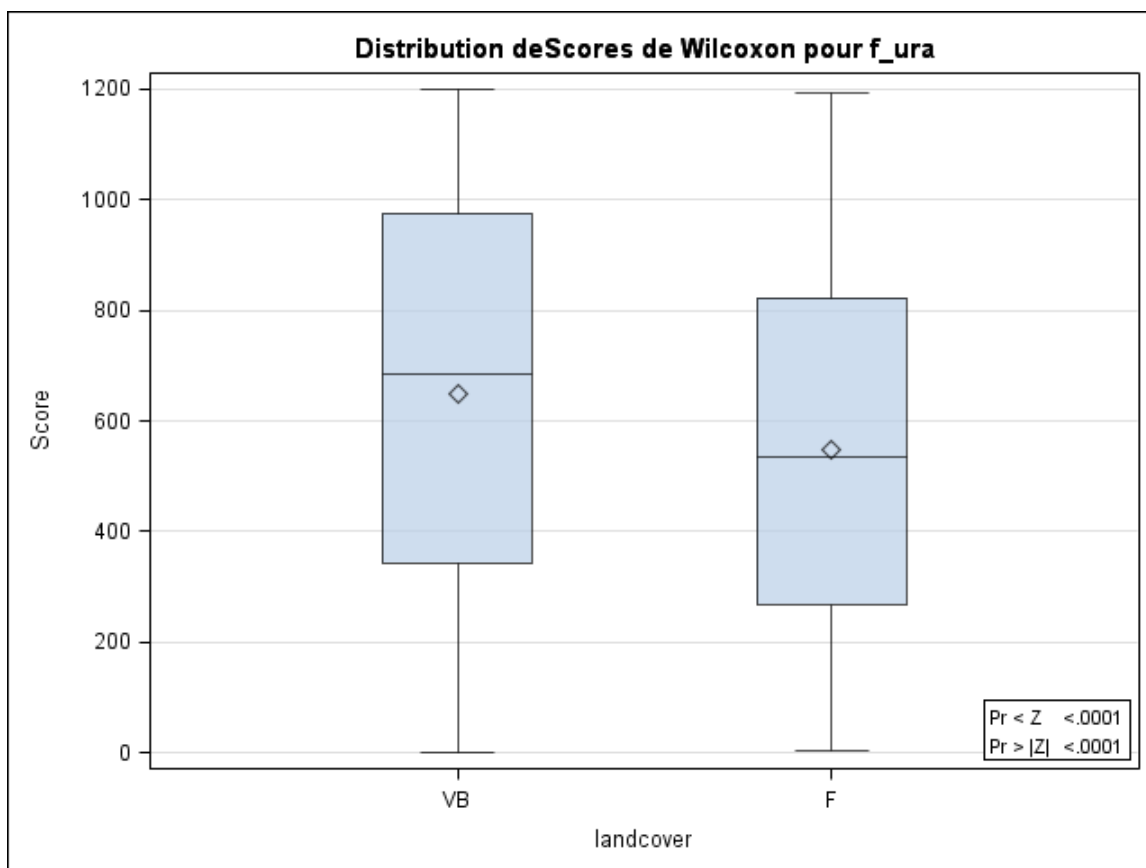


Figure 48. Relation entre les concentrations d'uranium au niveau du sol (éU) obtenues par spectrométrie gamma et les concentrations en radon mesurées dans les gaz de sol. Le fond de carte représente l'occupation du sol (vert = forêts, jaune = végétations basses et zones agricoles, violet = zones urbaines et routes, bleu = eau). Les lignes de points sont les mesures de rayonnement gamma. Les points orange sont les valeurs anormales de éU (95<sup>ème</sup> percentile).



**Figure 49. Test de la différence des concentrations en uranium au niveau du sol corrigées ( $f_{ura}$ ) en fonction de l'occupation du sol (forêt versus végétation basse agricole et non agricole). Test non paramétrique de Kruskal-Wallis.**

La relation a été étudiée pour une zone plus étendue que pour notre zone d'étude. Cette relation visuelle est confirmée par les tests statistiques (Fig. 49).

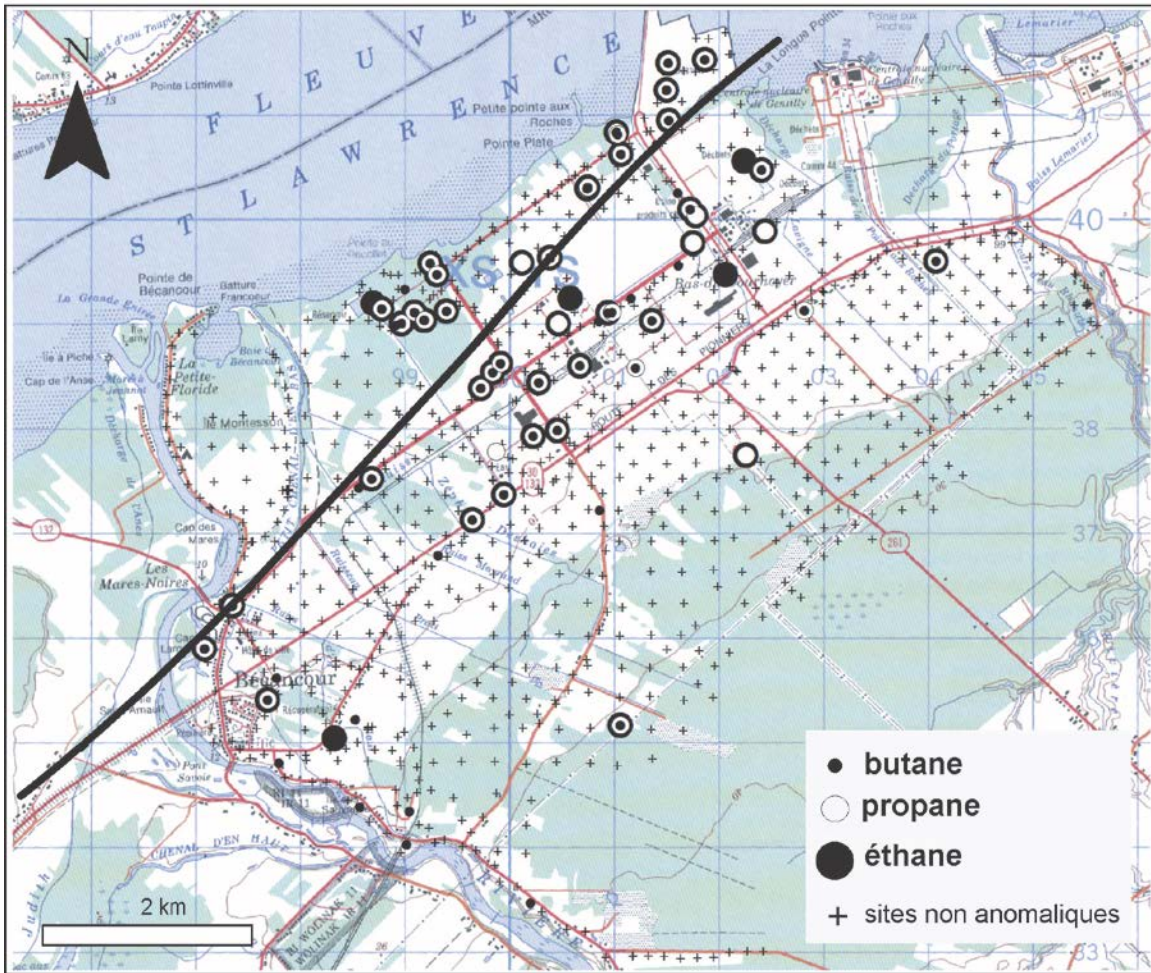
Comme pour les données de radon mesurées dans les sols, les fortes valeurs d'ÉU sont rencontrées principalement dans les territoires couverts de végétation basse et les zones agricoles (en jaune sur la carte).

Le rayonnement gamma capté provient des 30 premiers centimètres du sol (les couches plus profondes, par atténuation, ne contribuent pas au rayonnement capté). Le fait qu'il existe une relation indirecte entre l'ÉU et le radon penche pour une origine superficielle du radon. L'analyse directe des concentrations en U dans les échantillons de sol pourrait permettre de supporter cette hypothèse. Comme montré dans l'étude pédologique (Pauca *et al.*, 2013), les

zones boisées sont couvertes de dépôts sableux d'origine marine et lacustre déposés par la mer de Champlain. Ces différences d'origine peuvent générer des concentrations en U différentes dans les sols à l'origine des différences de concentrations en radon mesurées.

### 3.5. Relation entre les anomalies et la faille de Yamaska

La présence de la faille de Yamaska dans la zone d'étude était à la base d'interrogations concernant la libération de gaz profonds. Les failles et les fractures naturelles pourraient être des voies préférentielles de remontées du  $CO_2$  et des gaz associés en cas de fuite des réservoirs de stockage de  $CO_2$ . Les anomalies détectées ont donc été superposées à la projection en surface de la faille (Fig. 50).



**Figure 50. Carte des anomalies en hydrocarbures gazeux et de la projection en surface de la faille de Yamaska. Les anomalies correspondent aux valeurs du 95<sup>ème</sup> percentile. La faille est représentée avec une ligne noire.**

Visuellement, il existe une bonne superposition entre les anomalies d'hydrocarbures gazeux et la faille de Yamaska. L'alignement dans l'axe NE-SO semble particulièrement frappant.

Une manière différente de présenter ces résultats est de les superposer aux coupes x-z fournies par

le modèle géologique 3D. La relation entre les anomalies et la géologie a été étudiée sur un transect perpendiculaire à la direction de la faille (Fig. 51).

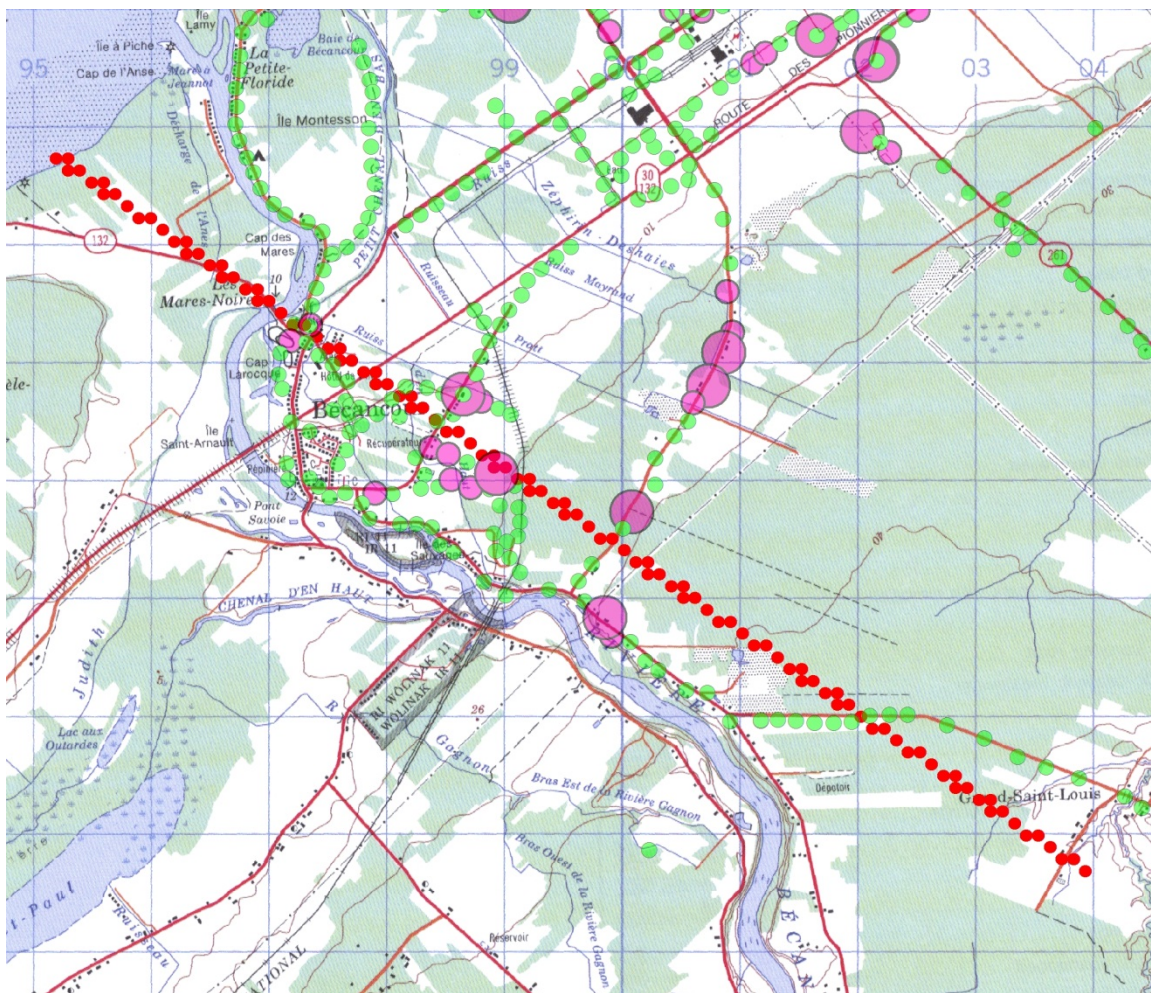


Figure 51. Transect sud (point rouge). Les présences et absences d'anomalies en radon sont représentées par des points violets et verts.

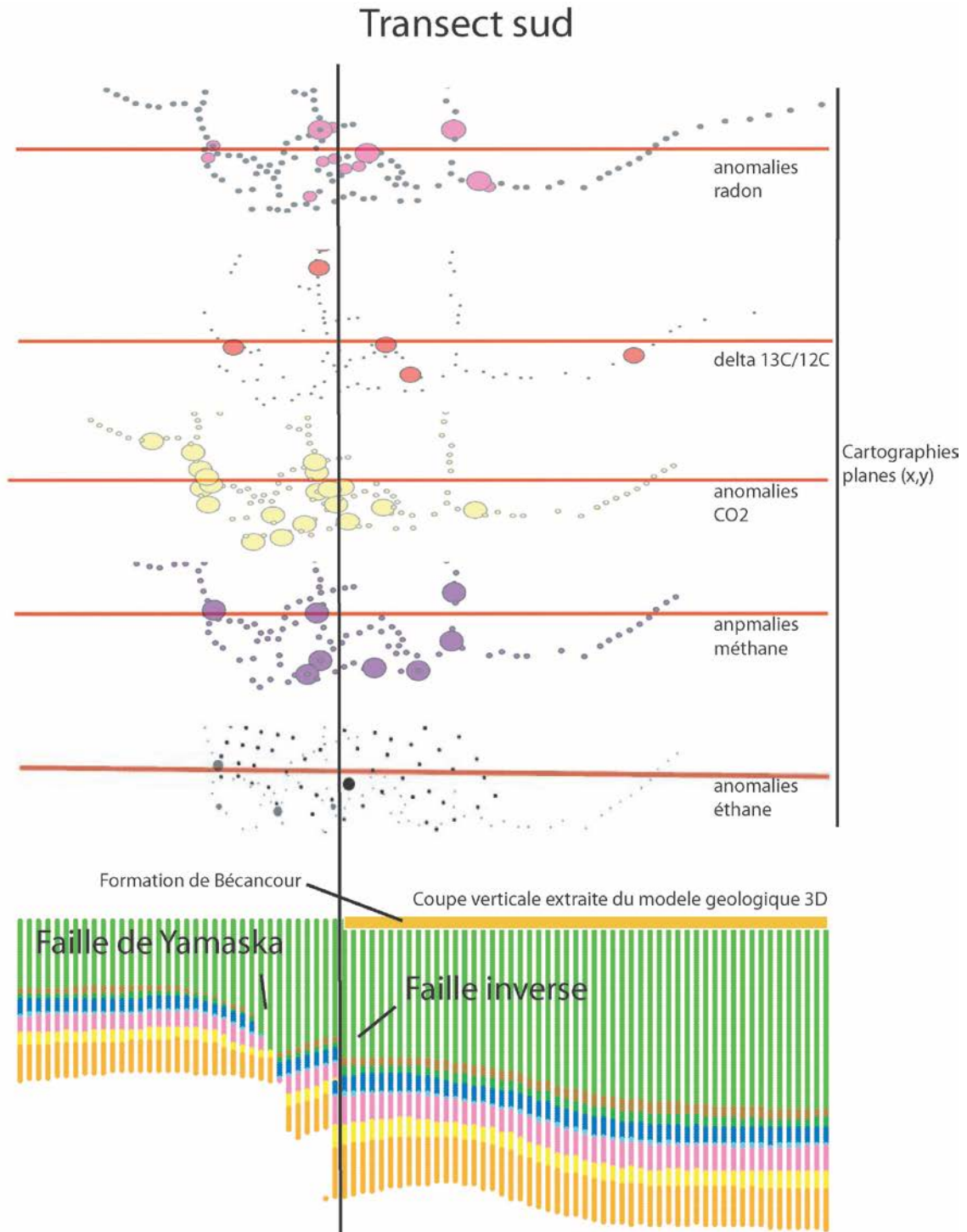


Figure 52. Superposition des anomalies observées dans les gaz de sol pour différents composés et la géologie. Les unités géologiques sont représentées avec des couleurs différentes. Le Lorraine est

**représenté en vert clair. Un trait noir localise une discontinuité géologique, une faille inverse conjuguée à la faille de Yamaska qui est située plus à gauche.**

Les anomalies dans les différents composés semblent reliées spatialement avec la faille de Yamaska et la faille inverse conjuguée (Fig. 52). Les superpositions ne sont pas directes ce qui pourrait s'expliquer par le fait que la faille n'est pas affleurante et que par conséquent, les gaz doivent migrer dans le Lorraine pour atteindre la surface, peut être le long de fractures associées. A l'inverse, les gaz observés ne proviennent pas nécessairement de sources profondes situées sous les roches de couverture (Lorraine et Utica) mais peuvent provenir de poches de gaz plus superficielles. Les facteurs confondants testés ne suffisent pas à expliquer cette spatialité des anomalies.

Il est certain que la position du transect peut influencer cette interprétation. Le choix de sa position a été déterminé par la densité et la robustesse de l'information disponible. Un second transect, situé plus au nord, a été réalisé.

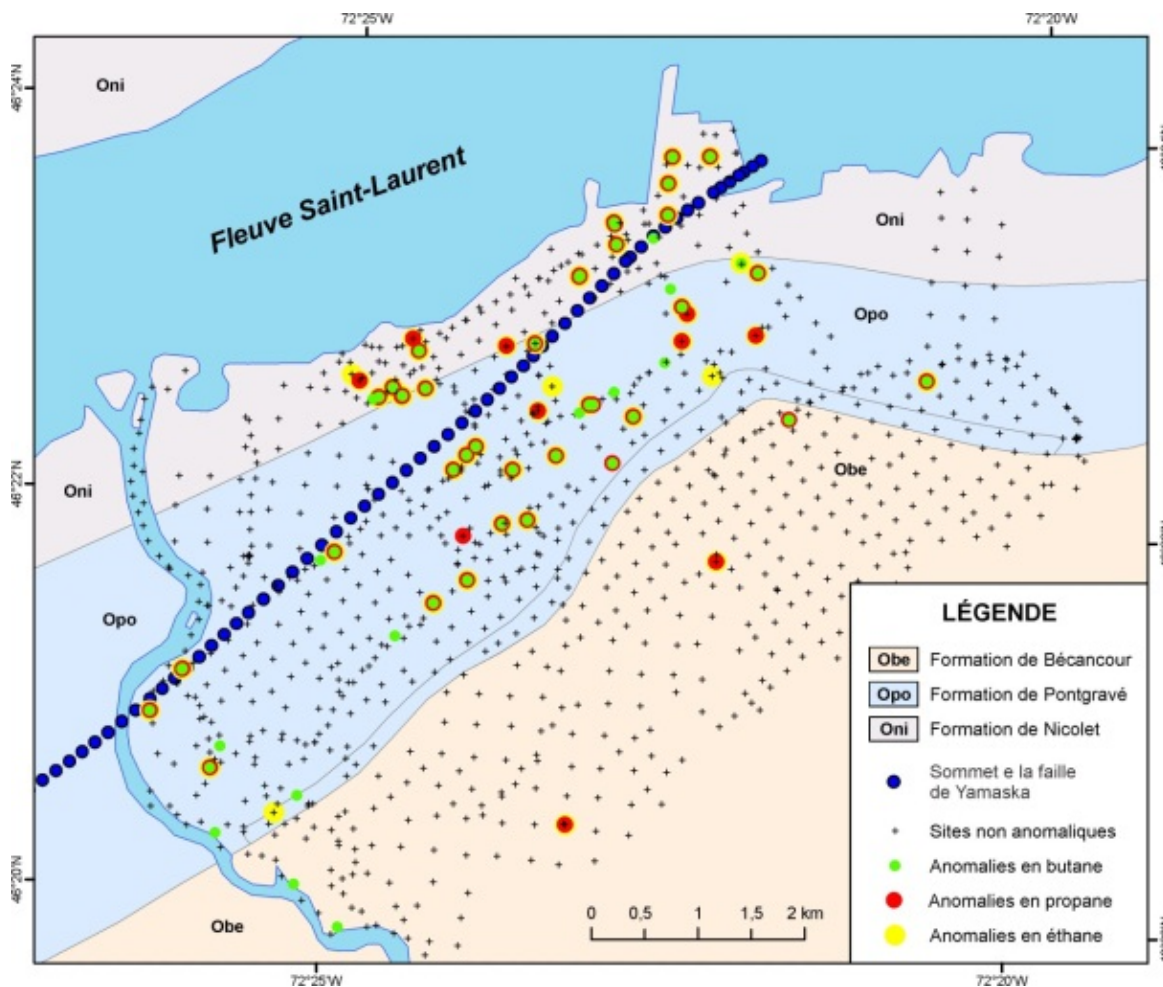
Les résultats obtenus sont équivalents sauf pour les anomalies en radon qui paraissent plus éloignées de la faille de Yamaska.

Ces relations entre les anomalies en gaz de sol et la faille sont discutées plus largement dans la section suivante (section discussion).

### **3.6. Relations entre les anomalies en hydrocarbures gazeux et le Groupe de Lorraine**

#### **3.6.1. Carte des anomalies versus géologie**

La figure 53 ci-dessous projette les valeurs anomaliques des hydrocarbures gazeux sur la carte géologique montrant les contacts des Formations de Bécancour, de Pontgravé et de Nicolet .



**Figure 53. Anomalies en hydrocarbures gazeux et formations géologiques (source: F.-A. Comeau et E. Konstantinovskaya).**

Visuellement, les anomalies en hydrocarbures gazeux semblent être localisées dans la zone nord, à l'intérieur d'enveloppes correspondant aux Formations de Pontgravé et de Nicolet. La source des anomalies détectées pourrait donc être ces formations riches en matière organique. Les gaz observés en surface n'auraient donc pas une origine profonde (situé en dessous des roches de couverture) mais plutôt une origine superficielle (Fig. 4, section 2.3 Éléments de géologie).

### 3.6.2. Tests des relations

Des tests statistiques ont été effectués pour vérifier si les concentrations ou la présence d'anomalies en méthane, éthane, propane et butane pouvaient être reliées à la géologie. L'hypothèse testée est que les concentrations observées sont plus fortes ou que les anomalies

sont plus abondantes dans les territoires où on trouve les formations du Groupe de Lorraine (Formations de Nicolet et Pontgravé). Pour réaliser ces tests, chaque site a été classifié comme appartenant au Groupe de Lorraine ou à la Formation de Bécancour. Cette classification a été réalisée à partir d'une information géologique ancienne (Clark, 1964; Clark et Globensky, 1976). Cependant, des levés géologiques récents ont confirmé la validité de ces travaux dans notre zone.

Les résultats des tests non-paramétriques de Wilcoxon montrent que les scores sont significativement différents pour les sites superposés aux formations du Groupe de Lorraine (Fig. 54; test bilatéral,  $P > \text{abs}(Z) < 0.001$ ).

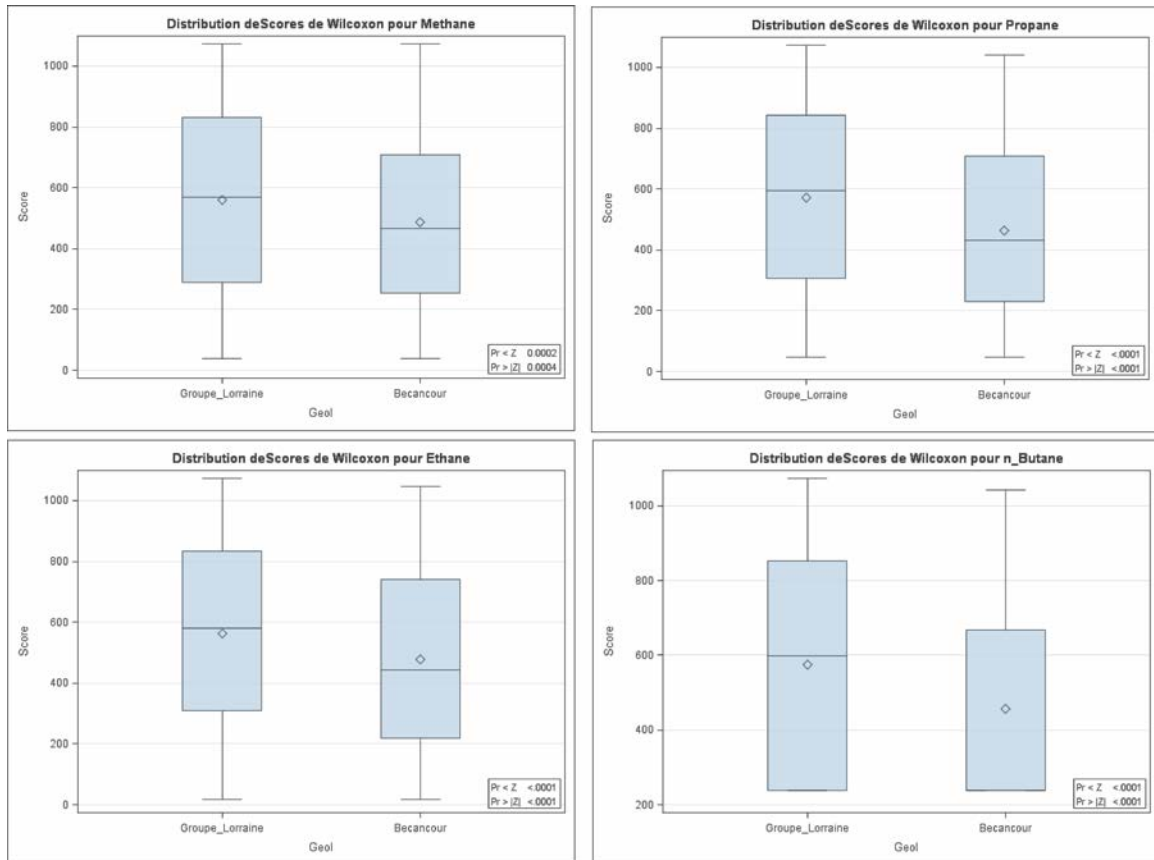


Figure 54. Test de la différence entre les distributions de concentrations des sites en fonction des formations géologiques sous-jacentes.

Les concentrations sont plus fortes pour les sites situés au-dessus des formations appartenant au Groupe de Lorraine. De la même façon les

anomalies sont rencontrées préférentiellement au-dessus du Groupe de Lorraine (Tab. 11).

	Méthane	Éthane	Propane	Butane
<b>Lorraine</b>	<b>6.52</b>	<b>6.79</b>	<b>6.52</b>	<b>6.11</b>
<b>Bécancour</b>	<b>1.48</b>	<b>0.89</b>	<b>1.19</b>	<b>1.78</b>
<b>Khi-2</b>	12.4	17.1	14.2	9.58
<b>P-value</b>	0.0004	<.0001	0.0002	0.0002

Tableau 11. Fréquence des anomalies versus géologie. Les chiffres inscrits en gras dans le tableau sont les pourcentages d'anomalies (valeurs du 95<sup>ème</sup> percentile) par rapport au nombre total de sites de chaque catégorie de formation géologique.

Les tests de Ki-2 sont tous significatifs ( $P < 0.001$ ).

Les tests statistiques effectués confirment les interprétations cartographiques.

## 4. Discussion

### 4.1. Généralités

Le principe de précaution, généralement accepté, impose d'envisager et d'évaluer les risques associés à une libération de gaz (West *et al.*, 2005). Une attitude immobiliste serait d'envisager, face aux risques, de geler toute opération de mise en valeur des territoires. Une alternative plus constructive est de procéder à des suivis environnementaux rigoureux permettant de gérer les éventuels problèmes. Ce rapport montre que la collecte d'informations avant le début de toute opération industrielle (dans notre cas, l'injection de CO<sub>2</sub>) est un préalable indispensable. Il permet de comprendre quelles sont les valeurs initiales de différentes variables, de cibler des zones sensibles à surveiller de manière prioritaire et d'affiner les suivis futurs.

Dans cette étude, les données de concentration des différents gaz majeurs ont fourni une information concordante. Les plus fortes concentrations (anomalies) pour les hydrocarbures gazeux, pour le CO<sub>2</sub> et le CH<sub>4</sub> et pour les ratios isotopiques du CO<sub>2</sub> se rencontrent préférentiellement dans le secteur nord de la zone d'étude. Ces anomalies semblent organisées en structures spatiales linéaires d'orientation NE-SO et se superposent à la faille de Yamaska présente en sous-surface. Elles sont concordantes spatialement bien que non colocalisées. Les anomalies en Rn sont localisées plus au sud et ne semblent pas spatialement corrélées aux anomalies observées pour les autres gaz.

L'approche développée sur le site pilote de Bécancour est transférable aux territoires québécois où des activités de SGC seraient envisagées. Elle est également facilement transférable à la surveillance environnementale des activités d'exploitation des ressources gazières. La méthodologie pourrait être en particulier transférée spécifiquement à la problématique de la surveillance des territoires faisant l'objet d'exploitations gazières faisant intervenir ou non des techniques de fracturation hydraulique.

### 4.2. Effets confondants

L'influence d'effets confondants peut toujours être avancée pour expliquer la présence d'anomalies. Des analyses ont été conduites pour vérifier l'effet de facteurs divers sur les données

de concentrations ou de ratios isotopiques. Les variables construites à partir de la description des sites, de l'étude pédologique et de l'étude de la physicochimie des sols (Paucar *et al.*, 2013) ont été testées. L'influence de la présence d'entités géographiques (puits d'exploration, routes) a également été testée. Quelques-unes de ces analyses sont présentées en annexes (influence de la profondeur d'échantillonnage, de l'humidité, de la température des sols, des puits de forage). Beaucoup d'autres facteurs testés ne sont pas présentés pour ne pas surcharger le document.

La température et l'humidité des sols au moment des prélèvements semblent influencer les concentrations de CO<sub>2</sub>. La profondeur a un effet sur l'ensemble des gaz. Les autres facteurs testés n'expliquent pas ou n'influencent pas la présence des anomalies en gaz.

La profondeur des prélèvements des gaz dans les sols a été fixée à 50 cm pour tous les sites. Cette profondeur peut sembler relativement faible mais elle permet de pouvoir être respectée pour l'ensemble des sites et en particulier, ceux où la roche est proche de la surface. De plus, l'étude de variabilité en fonction de la profondeur sur un même site montre que passé 50 cm, les mesures sont relativement constantes.

L'effet de la température et de l'humidité des sols sur les concentrations en gaz suggère que pour des suivis ultérieurs, ces paramètres doivent être mesurés systématiquement, notamment lorsque des variations fines de concentrations sont recherchées. Dans notre cas, le dispositif d'échantillonnage en quinconce a permis de s'affranchir en partie de la variabilité des conditions des sols. Les sites proches n'ont pas été échantillonnés à la même période et donc pas dans les mêmes conditions climatiques. L'extraction d'anomalies rend également les données plus robustes à ces variations. Les relations de présence-absence d'anomalies en fonction des conditions d'humidité et de température des sols ne sont pas significatives (analyses de régressions logistiques).

Finalement, les données n'ont pas été corrigées pour l'effet de facteurs confondants.

### 4.3. Intérêt des valeurs de référence obtenues

Lorsqu'il s'agit de SGC, la surveillance environnementale minimale semble être de mesurer les concentrations et les flux de CO<sub>2</sub> en

surface. Cependant, les mesures de CO<sub>2</sub> atmosphériques peuvent être influencées par le transport atmosphérique. Les turbulences atmosphériques mélangent les masses d'air et peuvent réduire les hautes concentrations des sources ou déplacer géographiquement les signaux (Leuning *et al.*, 2008). Les routes constituent d'ailleurs des corridors favorisant le mélange des masses d'air. Les gaz de sols fournissent donc une information complémentaire de grand intérêt car ils ne sont pas sujets à ces phénomènes de transport et de mélange.

Au début de cette étude, une hypothèse envisagée en l'absence de « fuites » documentées, était qu'on ne verrait aucun rehaussement local des concentrations en gaz. Les mesures seraient uniformes sur l'ensemble du territoire, ou sans organisation spatiale avec par exemple de fortes concentrations réparties de manière aléatoire sur le territoire. Il n'en est rien. Les échantillonnages de gaz de sol montrent que « naturellement », sans intervention humaine, de plus fortes concentrations peuvent être enregistrées localement en surface.

Le radon dans les sols atteint pour certains sites des niveaux de concentration plus importants mais qui sont nettement en dessous de la limite qui justifierait une intervention selon les critères suédois pour les gaz de sol (cf. résultats). L'effet cancérigène du radon peut être observé pour une exposition résidentielle à un niveau de 200 Bq/m<sup>3</sup>, ce qui correspond à une dose équivalente comprise entre 25 mSv et 75 mSv par an (625 à 1 875 mSv en 25 ans). Par ailleurs, un effet n'est pas exclu pour les expositions inférieures à 150 Bq.m<sup>3</sup> (Monchaux et Morlier, 2002; Darby *et al.*, 2005; Inoue *et al.*, 2006; Teitelbaum *et al.*, 2006). Cependant, ces valeurs sont des concentrations dans l'air et non dans les gaz de sols. Les données rapportées dans cette étude concernent au contraire des gaz de sol, naturellement plus riches que l'air atmosphérique.

Comme souligné dans la section méthode, le Rn est transporté vers la surface par advection et par migration d'autres gaz. Les dégazages profonds sont quantitativement non-négligeables, non seulement dans les zones volcaniques mais aussi par libérations des gaz piégés dans les formations géologiques (Mörner et Etiope, 2002). Dans les conditions naturelles, la migration de CO<sub>2</sub> et d'azote favorise les libérations de Rn en surface (Allard *et al.*, 1998). Ces dégazages sont

naturellement observés dans des contextes de volcans actifs et de sources thermales. Dans le cas des projets de SGC, si des flux massifs de CO<sub>2</sub> étaient libérés, une hypothèse est que les concentrations de Rn dans les sols pourraient augmenter également. Si les anomalies en Rn observées dans cette étude avaient été mesurées après injection de CO<sub>2</sub>, elles auraient pu être interprétées comme la conséquence des opérations de SCG. Ces valeurs de référence avant injection, sont donc particulièrement importantes. Elles permettront de vérifier dans le futur, pendant et après injection, qu'on ne note aucune augmentation des concentrations en Rn (et des autres gaz) dans les sols.

Ces considérations viennent prendre place dans le débat concernant l'acceptation sociale des projets (Moutenet *et al.*, 2012). Il est admis par certains auteurs que le principe de précaution impose d'envisager et d'évaluer les risques associés à une libération de gaz (West *et al.*, 2005). Pour en juger la comparaison avec des valeurs initiales robustes est indispensable. La grande sensibilité des populations par rapport à tout ce qui concerne les travaux se rapportant au « sous-sol » (exploration, exploitation des ressources) montre que l'approche retenue dans le cadre de la chaire de séquestration géologique du CO<sub>2</sub> de Québec devrait être généralisée et appliquée avant toute intervention, et notamment en ce qui concerne l'exploration gazière. Le fait de mesurer des données adaptées avant le début de toute activité permet de rassurer les acteurs locaux sur le sérieux des partenaires industriels et de leur considération pour les questions environnementales. Les mesures préliminaires et les suivis protègent les populations mais aussi les industriels car elles permettent d'éviter de fausses relations de cause à effet entre des observations réalisées sur le terrain (par exemple des teneurs en radon ou en méthane dans les sols) et l'activité industrielle. En cas de problème avéré, les suivis rigoureux permettent d'orienter les débats vers des sorties de crises rationnelles. En l'absence de données, les doutes et rumeurs se développent rapidement.

#### **4.4. Complémentarité des différents gaz**

Une observation qui peut surprendre à première vue est que les anomalies pour les différents gaz ne sont pas colocalisés. Les fortes concentrations en hydrocarbures gazeux ne se rencontrent pas sur les mêmes sites que les anomalies en CO<sub>2</sub>. Ceci peut provenir du fait que dans les sols, sous l'effet de phénomènes biologiques, on assiste à

une dégradation des chaînes carbonées (Arkadaskiy *et al.*, 2003). Le produit final des transformations peut être le CO<sub>2</sub>. Ce phénomène semble être observé dans notre zone d'étude. Les fortes concentrations en hydrocarbures gazeux sont observées sur les mêmes territoires, mais sur des sites différents.

Les anomalies d'hydrocarbures gazeux et de CO<sub>2</sub> sont donc des mesures complémentaires. La méthode présentée dans le premier rapport concernant l'utilisation des données de concentration de CO<sub>2</sub> pour prédire les territoires susceptibles de contenir des sites anomaux pour les hydrocarbures gazeux est donc justifiée (Pauca *et al.*, 2013).

Il est important aussi de rappeler que les concentrations sont des mesures relatives. Elles décrivent quelle est la proportion d'un gaz par rapport à un volume total. Si sur un site de fortes quantités de CO<sub>2</sub> sont présentes dans les gaz de sol, la proportion relative des autres espèces sera diminuée.

Il ressort de ces considérations que l'approche multi-espèces mise en place dans le cadre de ce projet est indispensable (Michel-le-Pierres *et al.*, 2010). En particulier, les différentes anomalies observées ne sont pas redondantes mais complémentaires.

Cette complémentarité peut être exploitée pour optimiser les échantillonnages et donc réduire leurs coûts. Les concentrations en hydrocarbures gazeux étaient nos variables principales. Elles ont permis de définir avec robustesse des zones de remontées de gaz géogéniques car ces gaz ne proviennent pas de processus biologiques localisés dans les sols. Au contraire, les concentrations de CO<sub>2</sub> et le CH<sub>4</sub> sont influencées potentiellement par les processus biologiques de respiration et de décomposition. On pourrait alors être tenté d'éliminer ces données. Pourtant, le premier rapport (Pauca *et al.*, 2013) montre que ce sont de bons indicateurs des zones anomaux en hydrocarbures et permettent donc d'optimiser les levés de gaz. Ces gaz pourraient donc être tout à la fois biogéniques et thermogéniques (Gole, 1985). Ceci est d'autant plus intéressant que les données de CO<sub>2</sub> et de CH<sub>4</sub> sont faciles à obtenir. Le CO<sub>2</sub> collecté dans notre étude en surface des sols (10 cm) fournit un jeu de données qui se rapprochent de celui qui pourrait être obtenu avec un levé aéroporté. En effet, des données de CH<sub>4</sub> peuvent être acquises aujourd'hui rapidement en hélicoptère sur l'ensemble d'un territoire avec des instruments

comme les systèmes de détection au laser fabriqués par Boreal Laser ([www.boreal-laser.com](http://www.boreal-laser.com)). Les sociétés gazières et pétrolières utilisent d'ailleurs cette technologie pour surveiller leurs gazoducs et vérifier l'absence de fuites. Le gaz analysé dans ces applications est le CH<sub>4</sub> mais cette technologie pourrait sans doute être appliquée à l'analyse du CO<sub>2</sub>.

#### 4.5. Relation avec la faille de Yamaska

Dans cette étude, les plus fortes concentrations (anomalies) pour les hydrocarbures gazeux, pour le CO<sub>2</sub> et le CH<sub>4</sub> et pour les ratios isotopiques du CO<sub>2</sub> se rencontrent préférentiellement dans le secteur nord de la zone d'étude. Ces anomalies semblent organisées en structures spatiales linéaires d'orientation NE-SO et se superposent à la faille de Yamaska.

Une première interprétation de ces résultats consisterait à avancer que la faille de Yamaska permet la migration en surface de gaz profonds. Un grand nombre de travaux montre que les failles et les fractures sont des couloirs de migration des géogaz vers la surface (ex. Achanta *et al.*, 2012; Damen *et al.*, 2006; Shipton *et al.*, 2005). Par conséquent les gaz de sols ont souvent été utilisés comme traceurs de la présence de failles (ex. Michel-Le Pierres *et al.*, 2010).

En ce qui concerne plus spécifiquement les activités de SGC, l'analyse d'analogues naturels a mis en évidence que le CO<sub>2</sub> accumulé en profondeur migrait vers la surface le long des failles, des fractures ou des puits de forages (compilation de travaux: Lewicki *et al.*, 2007; Rich *et al.*, 1995 pour les puits). Ces libérations pourraient même, selon certaines simulations effectuées, conduire à des « éruptions pneumatiques » en surface (Pruess, 2008). La présence des failles et des fractures a donc été jugée comme un élément de vulnérabilité pour la rétention du CO<sub>2</sub> dans les formations géologiques cibles (cf. introduction, IPCC, 2007). Par conséquent, les recommandations pour la mise en place des projets de SGC intègrent l'identification et l'étude des failles sur les territoires (cf. section « méthode »).

Même si la faille de Yamaska n'est pas affleurante, des réseaux de fractures superficielles pourraient permettre une continuité avec la surface. Par conséquent, même si aucune relation de cause à effet n'est démontrée, il existe

une relation spatiale entre la faille et les valeurs anomaliques en gaz.

#### **4.6. Relation avec les Formations de Pontgravé et de Nicolet**

Les anomalies en hydrocarbures gazeux se rencontrent plus particulièrement dans des zones où sont observées les Formations de Pontgravé et de Nicolet. Les hydrocarbures gazeux observés en concentrations anomaliques en surface pourraient provenir de ces formations riches en matière organique. Cette hypothèse aurait pour avantage d'expliquer tout à la fois la présence de plus fortes concentrations dans notre zone ainsi que de ne pas remettre en question l'imperméabilité potentielle des roches de couverture.

Avec les données disponibles, il est difficile de conclure quant à l'origine des gaz observés. Les Formations de Nicolet et de Pontgravé et la faille de Yamaska sont localisées sensiblement dans la même zone.

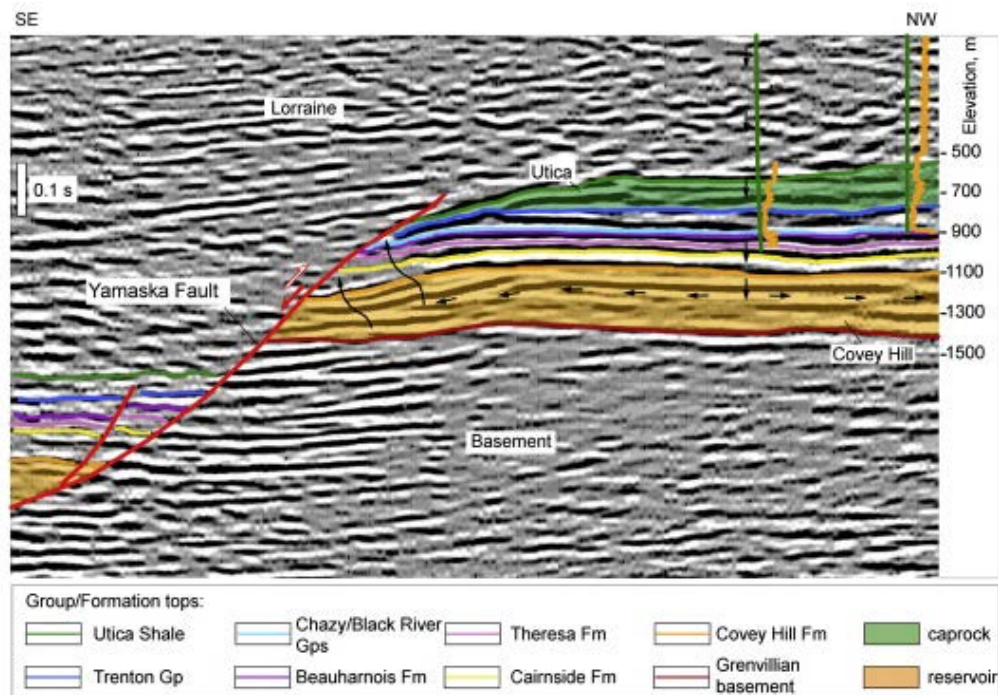
#### **4.7. Étanchéité des roches de couverture**

Une hypothèse qui expliquerait la relation spatiale entre les anomalies en gaz et la faille de Yamaska est que la faille de Yamaska permettrait la migration naturelle des gaz d'origine profonde vers la surface. Cependant, les analyses structurales des données sismiques des Basses-Terres du Saint-Laurent indiquent que les failles normales comme la faille de Yamaska n'étaient plus actives au moment du dépôt des roches de la Formation de Nicolet (Séjourné *et al.*, 2003; Konstantinovskaya *et al.*, 2010) et que ces failles ne se propagent pas vers la surface. Un point important à considérer est que l'observation d'anomalies en gaz ne traduit pas leur origine. En particulier, les gaz mesurés en surface ne proviennent pas nécessairement de la faille de Yamaska ou de roches localisées sous

les roches de couverture (Utica et Lorraine). Des poches de gaz peuvent par exemple être localisées dans des formations plus superficielles. La présence de ces poches de gaz peu profondes a été observée lors des travaux de forage. Le Ministère des Ressources naturelles et de la Faune a réalisé à l'automne 2010 des mesures sur 29 sites de forages. Les résultats de l'étude ont montré que les gaz observés en surface provenaient des poches de gaz emprisonnés dans la roche près de la surface et percées par le forage (Ministère des Ressources naturelles et de la Faune, DQ28.1, 2010; DQ35.1, 2011).

Il en va de même pour le radon (Rn) qui peut provenir d'un enrichissement en uranium ou radium de formations géologiques superficielles ou de nappes phréatiques. Même si des concentrations fortes sont mesurées dans les sols, les quantités de gaz libérées peuvent aussi être faibles. Dans ce cas, les risques de fuites seraient a priori moins importants. Pour trancher, il serait nécessaire d'identifier l'origine des gaz observés dans les sols et de mesurer les flux libérés. L'association entre les remontées de gaz profonds et la présence de discontinuités dans les couvertures géologiques doit être confirmée.

Les flux de gaz évacués en surface bien que couramment observés sont généralement faibles hormis dans certains contextes naturels de volcanismes ou de failles actives (Leuning *et al.*, 2008). Les modifications introduites par l'homme peuvent cependant conduire à des dégazages en surface. Il a été montré de manière expérimentale dans le cas extrême d'explosions nucléaires souterraines, que des gaz rares pouvaient migrer le long des failles et des fractures et se retrouver en surface (Carrigan *et al.*, 1996). Plus proche de nos préoccupations, le risque de libération de gaz superficiel due à l'injection de CO<sub>2</sub> a été envisagé (Fig. 55, Konstantinovskaya *et al.*, 2012).



**Figure 55. Migration potentielle des gaz injectés. Les lignes vertes verticales indiquent les puits, les lignes noires indiquent des migrations potentielles de CO<sub>2</sub> dans le réservoir pendant et après l'injection en relation avec la faille de Yamaska (source : E. Konstantinovskaya).**

Les études menées pour le site de Bécancour par l'équipe de la chaire de recherche sur la séquestration géologique du CO<sub>2</sub> de Québec ont conclu que ce risque était négligeable en grande partie à cause de la qualité de la roche couverture des roches silicoclastiques à grain fin du Lorraine et de leur faible perméabilité (Konstantinovskaya *et al.*, 2012). Le scénario d'injection envisagé vise d'ailleurs à maintenir une pression en dessous du seuil qui pourrait provoquer la fracturation de la roche (Tran Ngoc *et al.*, 2012).

La présence de faille ou de fractures sur un territoire n'implique donc pas forcément que le CO<sub>2</sub> injecté serait libéré massivement vers la surface (Bretan *et al.*, 2011). Cependant, la présence documentée de failles sur les territoires concernés impose de contrôler l'intégrité des roches de couverture. Des vérifications doivent être effectuées pendant et après l'injection de CO<sub>2</sub> (Shukla *et al.*, 2010). Comme noté par Jimenez et Chalaturnyk (2002), il est nécessaire de comprendre comment évolue au cours du temps l'intégrité hydraulique des réservoirs de stockage.

## 5. Recommandations

### 5.1. Identifier l'origine des gaz

Les travaux réalisés dans le cadre de la chaire montrent que naturellement et avant tous travaux de SGC, de fortes concentrations en CO<sub>2</sub>, en méthane, en hydrocarbures et en radon peuvent être observées dans la région d'étude. Même s'il peut paraître tentant de relier ces émissions en surface à une migration de gaz profonds reliée à la faille de Yamaska, des hypothèses opposées peuvent être avancées (comme la présence de poches de gaz superficielles). Pour avancer dans l'interprétation des données recueillies, il est maintenant nécessaire d'identifier l'origine des gaz observés dans les sols.

La répartition spatiale des ratios <sup>13</sup>C/<sup>12</sup>C ainsi que la relation inverse observée entre les ratios <sup>13</sup>C/<sup>12</sup>C et les concentrations de CO<sub>2</sub> laissent supposer qu'il serait possible d'utiliser cet outil pour identifier les sources du CO<sub>2</sub> mesuré dans l'atmosphère au niveau du sol. Ce qui serait particulièrement intéressant pour vérifier l'absence de fuite du CO<sub>2</sub> injecté. Les résultats

obtenus concernant l'échantillonnage des gaz dans les sols et les mesures de CO<sub>2</sub> atmosphériques semblent concorder. Ils tendent à identifier le secteur de la zone industrielle comme une zone de libération de gaz profonds. Ces gaz possèdent habituellement des ratios <sup>13</sup>C/<sup>12</sup>C plus faibles que ceux observés dans l'atmosphère, ce qui pourrait expliquer une diminution des valeurs dans ce secteur. Pour vérifier cette hypothèse, il est proposé d'analyser la distribution des valeurs des ratios dans les gaz de sol. Les résultats obtenus sont donc encourageants mais de nombreux travaux restent à effectuer. En particulier, les valeurs obtenues n'ont pas été validées par la mesure des ratios sur des gaz de référence de ratios connus. Pour aller plus loin, l'étude des ratios <sup>13</sup>C/<sup>12</sup>C des différentes sources de la région de Bécancour (industries émettrices, gaz de sols naturels, zones de libération de gaz profonds) serait particulièrement intéressante à réaliser. Des données ont été recueillies (CO<sub>2</sub> dans les sols) mais n'ont pas encore été analysées faute de temps.

Des analyses isotopiques devraient être envisagées pour le méthane mais aussi pour les hydrocarbures gazeux dont l'origine est géogénique. L'éthane semblerait un bon candidat car les concentrations anormales mesurées atteignent des niveaux suffisants pour permettre les analyses. Du fait de la forte variabilité des valeurs observées sur un même site, il serait nécessaire de vérifier le niveau de concentration d'éthane dans l'échantillon avant d'envisager des analyses de ratios <sup>13</sup>C/<sup>12</sup>C. L'interprétation des résultats serait facilitée du fait que des données ont été enregistrées dans les puits d'exploration pétrolière et gazière de la région par nos partenaires industriels (Junex). Ces méthodes sont utilisées en exploration gazière et en environnement pour caractériser les sources (Clayton, 1991; Rich *et al.*, 1995; Baldassare et Laughrey, 1997; Rowe et Muehlenbachs, 1999; Fusetti *et al.*, 2009). Un point important néanmoins est de s'assurer que des phénomènes de fractionnement isotopique en surface ne viennent modifier les ratios (Kinnaman *et al.*, 2007).

Le contenu en U du substrat rocheux et du sol, la structure de la roche, la distance aux failles et la perméabilité et l'humidité des sols sont les variables courantes entrées dans les modèles pour prédire la présence de radon en surface (Lelsch *et al.*, 2010). Cependant, des mécanismes alternatifs à la remontée de gaz profonds peuvent

expliquer l'observation de fortes concentrations de Rn dans les gaz des sols. Dans certains cas, le Rn observé en surface peut provenir de la décomposition de l'U contenu dans les sols eux-mêmes. Le radium et l'U (parents du radon) peuvent être accumulés dans les argiles et autres sédiments par des mécanismes naturels (Girault *et al.*, 2010). L'U peut être adsorbé sur les oxyhydroxydes et sur les minéraux argileux par des mécanismes de lessivage en surface et accumulation dans des horizons plus profonds (Buccianti *et al.*, 2009). Des formations géologiques peuvent aussi accumuler de l'U par circulation de fluides hydrothermaux (Pereira *et al.*, 2010). Les accumulations observées dans les sols peuvent aussi avoir des origines anthropiques : aérosols en provenance des mines d'U, dépôts de déchets contenant des radionucléides, fertilisants... (Takeda *et al.*, 2006; Borylo *et al.*, 2012; Neves *et al.*, 2012).

Dans cette étude, les formations de Nicolet et de Pontgravé et la faille de Yamaska sont localisées sensiblement dans la même zone. Par conséquent, il est difficile de distinguer leur influence respective sur la distribution des anomalies en hydrocarbures gazeux. Un échantillonnage complémentaire devrait être envisagé dans une zone géographique située plus au sud non influencée par la présence de la faille. Il s'agirait de tester si les anomalies en hydrocarbures gazeux sont associées aux formations de Nicolet et de Pontgravé.

## 5.2. Mesurer les flux

L'émission de gaz en surface existe naturellement. La présence ou l'absence de fortes concentrations est un paramètre nécessaire à mesurer mais non suffisant. Les flux émis seraient un paramètre important à considérer.

## 5.3. Organiser des suivis des gaz de sol pendant et après injection

Indépendamment de ces interprétations, les mesures obtenues ont permis d'établir des valeurs de référence qui permettront de juger de l'impact ou du non-impact environnemental des activités de SGC pendant et après injection. Ceci suppose des campagnes de mesures ultérieures. Les résultats obtenus dans le cadre de la chaire permettent de dresser un premier portrait quant à l'organisation de ces suivis.

Un point important à souligner est que la forte variabilité dans le temps des concentrations

observées impose dans le futur des suivis sur plusieurs sites et/ou des mesures répétées sur chaque site. Il s'agira de comparer les distributions de valeurs observées avec celles enregistrées précédemment pour envisager d'éventuelles modifications. Le nombre important de sites prospectés permet d'obtenir une distribution robuste des concentrations naturelles des gaz de sol dans la région. La non-reproductibilité des mesures (cf. section méthode), ne permet pas en particulier d'apprécier des changements avec un petit nombre de mesures seulement.

Dans le cadre de notre projet, un effort important a été consenti en termes d'échantillonnage. Mais des pistes d'optimisations ont été proposées. Le recours à d'autres outils comme l'imagerie satellitaire ou des mesures aéroportées (Paucar *et al.*, 2013) permettrait de restreindre les territoires prospectés. Le nombre de gaz mesurés pourrait se limiter à quelques traceurs.

De la même façon, il n'est pas forcément souhaitable de procéder par la suite à un échantillonnage extensif de la zone d'échantillonnage. Les rehaussements de concentration de gaz de sol, enregistrés deux années consécutives, ont permis d'identifier des zones sensibles. Les suivis devraient se concentrer sur ces territoires. Des stations permanentes pourraient être installées et des mesures répétées pourraient être effectuées. Cette approche est largement utilisée pour définir un réseau de surveillance environnementale par les agences gouvernementales et les entreprises.

Les concentrations sont des données importantes, mais les flux et les ratios isotopiques sont également des données essentielles pour préciser les quantités émises ainsi que l'origine des gaz.

Dans la région, le MDDEFP et l'Alcan possède déjà des stations de mesures permanentes des émissions atmosphériques, des enregistreurs en continu des concentrations et ratio isotopiques du CO<sub>2</sub> (et du méthane) pourraient y être ajoutés. Quelques stations de mesures permanentes des gaz de sol installés sur les sites sensibles pourraient venir compléter utilement ces mesures.

## 6. Remerciements

L'équipe de recherche tient à remercier les personnels de l'INRS et en particulier MM Sébastien Duval et Stéfane Prémont pour leur collaboration durant les phases de travaux au

laboratoire. Mme Anna Smirnoff a alimenté notre réflexion quant à l'instrumentation utilisée. Mme Martine Savard nous a gracieusement permis d'utiliser son laboratoire et ses équipements. Sur le terrain, de nombreux opérateurs ont contribué à collecter les données présentées. Nous voulons aussi remercier Félix-Antoine Comeau et Elena Konstantinovskaya pour les discussions sur la géologie du site de Bécancour. Ce projet a été financé par le MDDEFP dans le cadre de la chaire de recherche sur la séquestration géologique du CO<sub>2</sub> dirigée par le Pr. Michel Malo.



## 7. Références

- Achanta, D. S., R. Balch, et R. Grigg. 2012. Simulation of Leakage Scenarios for CO<sub>2</sub> Storage at Gordon Creek, Utah. in Carbon Management Technology Conference.
- Adams, J. 1989. Postglacial faulting in eastern Canada: nature, origin and seismic hazard implications. *Tectonophysics* 163:323-331.
- Allard, P., G. Hammouya, et F. Parello. 1998. Diffuse magmatic soil degassing at Soufriere of Guadeloupe, Antilles. *Comptes Rendus De L'Académie Des Sciences Série II, Fascicule A-Sciences De La Terre Et Des Planètes* 327:315-318.
- Annunziatellis, A., Beaubien, S.E., Bigi, S., Ciotoli, G., Coltella, M., Lombardi, S., 2008. Gas migration along fault systems and through the vadose zone in the Latera caldera (central Italy): Implications for CO<sub>2</sub> geological storage. *International Journal of Greenhouse Gas Control* 2, 353-372.
- Annunziatellis, A., Ciotoli, G., Lombardi, S., Nolasco, F., 2003. Short- and long-term gas hazard: the release of toxic gases in the Alban Hills volcanic area (central Italy). *J. Geoch. Explor.* 77, 93-108.
- Arkadaskiy, S., K. Muehlenbachs, C. Mendoza, et B. Szatkowski. 2003. Seasonal Effects on the Carbon Stable Isotope Compositions of Natural gas Subjected to Microbial Oxidation in Soils Near Leaking oil Wells in Western Canada. Page 0360 in AGU Fall Meeting Abstracts.
- Baldassare, F. et C. Laughrey. 1997. Identifying the sources of stray methane by using geochemical and isotopic fingerprinting. *Environmental Geosciences* 4:85-94.
- Béland Otis, C., 2009. Géochimie des gaz rares des saumures et gaz naturel du réservoir de Bécancour, Québec, Canada. Mémoire de Maîtrise de l'université du Québec à Montréal.
- Borylo, A., Skwarzec, B., Olszewski, G., 2012. The radiochemical contamination (Po-210 and U-238) of zone around phosphogypsum waste heap in Wislinka (northern Poland). *J. Environ. Sci. Health Part A-Toxic/Hazard. Subst. Environ. Eng.* 47, 675-687.
- Bretan, P., Yielding, G., Mathiassen, O.M., Thorsnes, T., 2011. Fault-seal analysis for CO<sub>2</sub> storage; an example from the Troll area, Norwegian continental shelf. *Petroleum Geoscience* 17(2), 181-192.
- Buccianti, A., Apollaro, C., Bloise, A., De Rosa, R., Falcone, G., Scarciglia, F., Tallarico, A., Vecchio, G., 2009. Natural radioactivity levels (K, Th, U and Rn) in the Cecita Lake area (Sila Massif, Calabria, Southern Italy): An attempt to discover correlations with soil features on a statistical base. *Geoderma* 152, 145-156.
- Buermann, W., Saatchi, S., Smith, T.B., Zutta, B.R., Chaves, J.A., Milà, B., Graham, C.H., 2008. Predicting species distributions across the Amazonian and Andean regions using remote sensing data. *Journal of Biogeography* pas encore publié.
- Carrigan, C. R., R. A. Heinle, G. B. Hudson, J. J. Nitao, et J. J. Zucca. 1996. Trace gas emissions on geological faults as indicators of underground nuclear testing. *Nature* 382:528-531.
- Castonguay, S., Dietrich, J., Lavoie, D. et Laliberté, JY. (2010) Structure and petroleum plays of the St. Lawrence Platform and Appalachians in southern Quebec: insights from interpretation of MRNQ seismic reflection data. *Bulletin of Canadian Petroleum Geology*, 58 (3), 219-234. doi:10.2113/gscpgbull.58.3.219
- Chadwick, A., Arts, R., Bernstone, C., May, F., Thibeau, S., Zweigel, P., 2008. Best practice for the storage of CO<sub>2</sub> in saline aquifers - observations and guidelines from the SACS and CO<sub>2</sub>STORE projects. Nottingham, UK, British Geological Survey, 267pp.
- Chadwick, R.A., Noy, D., Arts, R., Eiken, O., 2009. Latest time-lapse seismic data from Sleipner yield new insights into CO<sub>2</sub> plume development. *Energy Procedia* 1, 2103-2110.
- Clark, T.H., 1964. Rapport géologique - Région de Yamaska-Aston. Ministère des richesses naturelles - Direction générale des mines, Québec. RG-102. 208 pages.
- Clark, T.H. et Globensky, Y., 1976. Rapport géologique - Région de Bécancour. Ministère des richesses naturelles - Direction générale des mines, Québec. RG-165. 66 pages.
- Clayton, C. 1991. Carbon isotope fractionation during natural gas generation from kerogen. *Marine and Petroleum Geology* 8:232-240.

- Ciotoli, G., Etioppe, G., Guerra, M., Lombardi, S., 1999. The detection of concealed faults in the Ofanto Basin using the correlation between soil-gas fracture surveys. *Tectonophysics* 301, 321-332.
- Ciotoli, G., Lombardi, S., Morandi, S., Zarlenga, F., 2004. A multidisciplinary, statistical approach to study the relationships between helium leakage and neotectonic activity in a gas province: The Vasto basin, Abruzzo-Molise (central Italy). *The American Association of Petroleum Geologists Bulletin* 88, 355–372.
- Damen, K., A. Faaij, et W. Turkenburg. 2006. Health, Safety and Environmental Risks of Underground Co2 Storage – Overview of Mechanisms and Current Knowledge. *Climatic Change* 74:289-318.
- Darby, S., D. Hill, A. Auvinen, J. M. Barros-Dios, H. I. n. Baysson, F. Bochicchio, H. Deo, R. Falk, F. Forastiere, et M. Hakama. 2005. Radon in homes and risk of lung cancer: collaborative analysis of individual data from 13 European case-control studies. *Bmj* 330:223.
- Devine, S.B., Sears, H.W., 1977. Soil hydrocarbon geochemistry, a potential petroleum exploration tool in the Cooper Basin, Australia. *J. Geoch. Explor.* 8, 397-414.
- Elith, J., Graham, C.H., Anderson, R.P., Dudi'k, M., Ferrier, S., Guisan, A., Hijmans, R.J., Huettmann, F., Leathwick, J.R., Lehmann, A., Li, J., Lohmann, L.G., Loiselle, B.A., Manion, G., Moritz, C., Nakamura, M., Nakazawa, Y., Overton, J.M., Peterson, A.T., Phillips, S.J., Richardson, K.S., Scachetti-Pereira, R., Schapire, R.E., Soberon, J., Williams, S., Wisz, M.S., Zimmermann, N.E., 2006. Novel methods improve prediction of species' distributions from occurrence data. *Ecography* 29, 129-151.
- Etioppe, G., Martinelli, G., 2002. Migration of carrier and trace gases in the geosphere: an overview. *Physics of The Earth and Planetary Interiors* 129, 185-204.
- Forbes, S. M., Verma, P., Curry, T. E., Friedmann, S. J., Wade, S. M., 2008. Guidelines for carbon dioxide capture, transport and storage. World Resources Institute.
- Fusetti, L., F. o. Behar, et F. o. Lorant. 2009. Method for determining the compositional origin of a gas emitted from a thermal breakdown of carbonaceous matter. EP Patent 1,988,393.
- Gainon, F., Goldscheider, N., Surbeck, H., 2007. Conceptual model for the origin of high radon levels in spring waters - the example of the St. Placidus spring, Grisons, Swiss Alps. *Swiss Journal of Geoscience* 100, 251-262.
- Gascoyne, M., Barber, J.H., 1992. The mobility of U, RA and RN in a granitic batholith on the Canadian shield. *Radiochimica Acta* 58-9, 281-284.
- Gebert, J., Rachor, I., Grongroft, A., Pfeiffer, E.-M., 2010. Temporal variability of soil gas composition in landfill covers. *Waste Management* 31, 935-945.
- Girault, F., Gajurel, A.P., Perrier, F., Upreti, B.N., Richon, P., 2010. Radon emanation of heterogeneous basin deposits in Kathmandu Valley, Nepal. *Journal of Asian Earth Sciences* 40, 595-610.
- Globensky, Y., 1987. Géologie des Basses-Terres du Saint-Laurent. Ministère de l'Énergie et des Ressources du Québec. MM 85-02. 63 pages.
- Gole, M. J. B., Butt, C.R.M., 1985. Biogenic-Thermogenic Near-Surface Gas Anomaly Over Gingin and Bootine Gas Fields, Western Australia. *AAPG Bulletin* 69.
- Guerra, M., Lombardi, S., 2001. Soil-gas method for tracing neotectonic faults in clay basins: the Pisticci field (Southern Italy). *Tectonophysics* 339, 511-522.
- Holys, S., Toth, J., 1996. Flow of formation waters: likely cause of poor definition of soil gas anomalies over oil fields in east-central Alberta. In: Abrams, D.S.a.M.A. (Ed.). *Hydrocarbon migration and its near-surface expression*, pp. 255-277.
- Huijts, N.M.A., Midden, C.J.H., Meijnders, A.L., 2007. Social acceptance of carbon dioxide storage. *Energy Policy* 35, 2780-2789.
- Ielsch, G., M. E. Cushing, P. Combes, et M. Cuney. 2010. Mapping of the geogenic radon potential in France to improve radon risk management: methodology and first application to region Bourgogne. *Journal of Environmental Radioactivity* 101:813-820.
- Inoue, K.-i., H. Takano, R. Yanagisawa, S.

- Hirano, M. Sakurai, A. Shimada, et T. Yoshikawa. 2006. Effects of airway exposure to nanoparticles on lung inflammation induced by bacterial endotoxin in mice. *Environmental Health Perspectives* 114:1325.
- IPCC, 2007. *Climate Change 2007: Synthesis Report*. Intergovernmental Panel on Climate Change, Geneva, Switzerland.
- Kinnaman, F. S., D. L. Valentine, et S. C. Tyler. 2007. Carbon and hydrogen isotope fractionation associated with the aerobic microbial oxidation of methane, ethane, propane and butane. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 71:271-283.
- Koike, K., Yoshinaga, T., Asaue, H. 2009. Radon concentrations in soil gas, considering radioactive equilibrium conditions with application to estimating fault-zone geometry. *Environmental Geology* 56:1533-1549.
- Konstantinovskaya, E., Claprood, M., Duchesnes, M., Giroux, B., Malo, M., Lefebvre, R., 2010. Le potentiel de stockage géologique du CO<sub>2</sub> expérimental dans les aquifères salins de Bécancour: Partie 1 – Analyse des diagraphies et des profils sismiques. Rapport INRSCO2-2010-V2.1. Institut national de la recherche scientifique, Québec, R-1150, 59 p.
- Konstantinovskaya, E., Malo, M., Claprood, M., Tran-Ngoc, T., Gloaguen, E., Lefebvre, R., 2012. Structural, petrophysical and geomechanical characterization of the Bécancour CO<sub>2</sub> storage pilot site (Quebec, Canada). Page 9486 in EGU General Assembly Conference Abstracts.
- Konstantinovskaya, E., M. Malo, et D. A. Castillo. 2012. Present-day stress analysis of the St. Lawrence Lowlands sedimentary basin (Canada) and implications for caprock integrity during CO<sub>2</sub> injection operations. *Tectonophysics* 518-521:119-137.
- Jimenez, J. et R. Chalaturnyk. 2002. Integrity of bounding seals for geological storage of greenhouse gases. in SPE/ISRM Rock Mechanics Conference.
- Jones, D.G., Lister, T.R., Smith, D.J., West, J.M., Coombs, P., Gadalia, A., Brach, M., Annunziatellis, A., Lombardi, S., 2011. In Salah gas CO<sub>2</sub> storage JIP: Surface gas and biological monitoring. *Energy Procedia* 4, 3566-3573.
- Jones, M. C., Marron, J. S., et Sheather, S. J. (1996), "A Brief Survey of Bandwidth Selection for Density Estimation," *Journal of the American Statistical Association*, 91, 401–407.
- Jones, V.T., Pirkle, R.J., 2007. Application of exploration geochemical methodology to CO<sub>2</sub> monitoring.
- Kinnaman, F.S., Valentine, D.L., Tyler, S.C., 2007. Carbon and hydrogen isotope fractionation associated with the aerobic microbial oxidation of methane, ethane, propane and butane. *Geochim. Cosmochim. Ac.* 71, 271-283.
- Klusman, R.W., 2011. Comparison of surface and near-surface geochemical methods for detection of gas microseepage from carbon dioxide sequestration. *International Journal of Greenhouse Gas Control* 5, 1369-1392.
- Koike, K., Yoshinaga, T., Asaue, H., 2009. Radon concentrations in soil gas, considering radioactive equilibrium conditions with application to estimating fault-zone geometry. *Environ. Geol.* 56, 1533-1549.
- Lamothe, D., 2009. Cartes géochimiques ModelBuilder et cibles anormales de l'environnement secondaire pour le Québec. Ministère des ressources naturelles et de la faune, GM 64290.
- Leuning, R., D. Etheridge, A. Luhar, et B. Dunse. 2008. Atmospheric monitoring and verification technologies for CO<sub>2</sub> geosequestration. *International Journal of Greenhouse Gas Control* 2:401-414.
- Lewicki, J., J. Birkholzer, et C.-F. Tsang. 2007. Natural and industrial analogues for leakage of CO<sub>2</sub> from storage reservoirs: identification of features, events, and processes and lessons learned. *Environmental Geology* 52:457-467.
- Leuning, R., Etheridge, D., Luhar, A., Dunse, B., 2008. Atmospheric monitoring and verification technologies for CO<sub>2</sub> geosequestration. *International Journal of Greenhouse Gas Control* 2, 401-414.
- Lelsch, G., Cushing, M.E., Combes, P., Cuney, M., 2010. Mapping of the geogenic radon potential in France to improve radon risk management: methodology and first application to region Bourgogne. *Journal of Environmental Radioactivity* 101, 813-820.
- Matson, P.A., Vitousek, P.M., Schimel, D.S.,

- 1989 Regional extrapolation of trace gas flux based on soils and ecosystems. In: Andreae, M.O., Schimel, D.S. (Eds.). Exchange of trace gases between terrestrial ecosystems and the atmosphere, pp. 97-108.
- Michel-le-Pierres, K., Gal, F., Brach, M., Guignat, S., 2010. Radon, helium and CO<sub>2</sub> measurements in soils overlying a former exploited oilfield, Pechelbronn district, Bas-Rhin, France. *Journal of Environmental Radioactivity* 101, 835-846.
- Ministère des Ressources naturelles et de la Faune (2010), Réponses aux questions 1 à 5 du document DQ28. 7, Rapport DQ28.1 décembre, Développement durable de l'industrie des gaz de schiste au Québec.
- Ministère des Ressources naturelles et de la Faune (2011), Réponses aux questions du document DQ35, Rapport DQ35.1 13 janvier, Développement durable de l'industrie des gaz de schiste au Québec.
- Monchaux, G. et J.-P. Morlier. 2002. Influence of exposure rate on radon-induced lung cancer in rats. *Journal of Radiological Protection* 22:A81.
- Mörner, N.-A. et G. Etiope, 2002. Carbon degassing from the lithosphere. *Global and Planetary Change* 33:185-203.
- Moutenet, J.-P., Bédard, K. et Malo, M. 2012. Public awareness and opinion on CCS in the Province of Québec, Canada, *Greenhouse Gases: Science and Technology*, vol. 2, p. 126-135, DOI:10.1002/ghg.1278.
- National Energy Technology Laboratory, 2009. Monitoring, Verification, and Accounting of CO<sub>2</sub> Stored in Deep Geologic Formations. DOE/NETL 311/081508. [http://www.netl.doe.gov/technologies/carbon\\_seq/refshelf/MVA\\_Document.pdf](http://www.netl.doe.gov/technologies/carbon_seq/refshelf/MVA_Document.pdf).
- Neves, M.O., Figueiredo, V.R., Abreu, M.M., 2012. Transfer of U, Al and Mn in the water-soil-plant (*Solanum tuberosum* L.) system near a former uranium mining area (Cunha Baixa, Portugal) and implications to human health. *Sci. Total Environ.* 416, 156-163.
- Ngoc, T. D. T., R. Lefebvre, M. Malo, et C. Doughty. 2012. Feasibility of CO<sub>2</sub> injection in the deep saline aquifers of the Bécancour region, Québec (Canada). Proceedings, Tough Symposium 2012 Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, California, September 17-19.
- Nichols, J. D. 1992. Capture-Recapture Models. Using marked animals to study populations dynamics. *BioScience* 42:94-102.
- Office National de l'Énergie (2009), L'ABC du Gaz de Schiste au Canada, Note d'Information sur l'Énergie.
- Paucar, H., Aznar, J.-C., Malo, M., 2013. Caractérisation des territoires de la région de Bécancour. Établissement d'un modèle d'occupation du sol et optimisation de l'échantillonnage des hydrocarbures gazeux dans les sols grâce aux images de télédétection. Rapport INRSCO2-2013-V2.15. Institut national de la recherche scientifique, Québec, R-1431, 69 p.
- Peano, G., Vigna, B., Villavecchia, E., Agnesod, G., 2011. Radon exchange dynamics in a karst system investigated by radon continuous measurements in water: first results. *Radiat. Prot. Dosim.* 145, 173-177.
- Pereira, A., Godinho, M.M., Neves, L., 2010. On the influence of faulting on small-scale soil-gas radon variability: a case study in the Iberian Uranium Province. *Journal of Environmental Radioactivity* 101, 875-882.
- Phillips, S.J., Anderson, R.P., Schapired, R.E., 2006. Maximum entropy modeling of species geographic distributions. *Ecological Modelling* 190, 231-259.
- Pineda, E., Lobo, J.M., 2009. Assessing the accuracy of species distribution models to predict amphibian species richness patterns. *J. Anim. Ecol.* 78, 182-190.
- Preston, C., Whittaker, S., Rostron, B., Chalaturnyk, R., White, D., Hawkes, C., Johnson, J.W., Wilkinson, A., Sacuta, N., 2009. IEA GHG Weyburn-Midale CO<sub>2</sub> monitoring and storage project-moving forward with the Final Phase. *Energy Procedia* 1, 1743-1750.
- Pruess, K. 2008. On CO<sub>2</sub> fluid flow and heat transfer behavior in the subsurface, following leakage from a geologic storage reservoir. *Environmental Geology* 54:1677-1686.
- Quattrocchi, F., Galli, G., Gasparini, A., Magno, L., Pizzino, L., Sciarra, Voltattorni, N., 2011. Very slightly anomalous leakage of CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub> and radon along the main activated faults of the strong L'Aquila earthquake (Magnitude 6.3, Italy). Implications for risk

- assessment monitoring tools & public acceptance of CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> underground storage. *Energy Procedia* 4, 4067-4075.
- Rich, K., K. Muehlenbachs, K. Uehrich, et G. Greenwood. 1995. Carbon isotope characterization of migrating gas in the heavy oil fields of Alberta, Canada. in *SPE International Heavy Oil Symposium*.
- Rodosta, T.D., Litynski, J.T., Plasynski, S.I., Hickman, S., Frailey, S., Myer, L., 2011. US Department of energy's site screening, site selection, and initial characterization for storage of CO<sub>2</sub> in deep geological formations. *Energy Procedia*, 4, 4664-4671.
- Rowe, D. et K. Muehlenbachs. 1999. Isotopic fingerprints of shallow gases in the Western Canadian sedimentary basin: tools for remediation of leaking heavy oil wells. *Organic Geochemistry* 30:861-871.
- Rower, I.U., Geck, C., Gebert, J., Pfeiffer, E.-M., 2010. Spatial variability of soil gas concentration and methane oxidation capacity in landfill covers. *Waste Management* 31, 926-934.
- Roy, L.-A., Brodeur, J., Lavigne, J., Lefebvre, L.F., 2004. Institut national de santé publique de Québec, Direction de santé publique de Montréal, <http://www.inspq.qc.ca>.
- Séjourné, S., Dietrich, J., Malo, M., 2003. Seismic characterization of the structural front of southern Québec Appalachians. *Bulletin of Canadian Petroleum Geology*, 51, 29-44.
- Shipton, Z.K., Evans, J.P., Dockrill B., Heath J., Williams A., Kirchner D. et Kolesar P.T. 2005. Natural leaking CO<sub>2</sub>-charged systems as analogs for failed geologic storage reservoirs. In: Thomas D. (Ed). *Carbon Dioxide Capture for Storage in Deep Geologic Formations -Results from the CO<sub>2</sub> Capture Project*, Volume 2. Elsevier Science. 699-712.
- Schütze, C., Vienken, T., Werban, U., Dietrich, P., Finizola, A., Leven, C., 2012. Joint application of geophysical methods and Direct Push-soil gas surveys for the improved delineation of buried fault zones. *Journal of Applied Geophysics*.
- Sharma, S., Cook, P., Robinson, S., Anderson, C., 2007. Regulatory challenges and managing public perception in planning a geological storage pilot project in Australia. *International Journal of Greenhouse Gas Control* 1, 247-252.
- Simone, A., Mackie, E., Jenvey, N., 2009. CO<sub>2</sub> geological storage field development- Application of baseline, monitoring and verification technology. *Energy Procedia* 1, 2219-2226.
- Song, C., 2006. Global challenges and strategies for control, conversion and utilization of CO<sub>2</sub> for sustainable development involving energy, catalysis, adsorption and chemical processing. *Catalysis Today* 115, 2-32.
- Shukla, R., P. Ranjith, A. Haque, Choi, X., 2010. A review of studies on CO<sub>2</sub> sequestration and caprock integrity. *Fuel* 89:2651-2664.
- Takeda, A., Tsukada, H., Takaku, Y., Hisamatsu, S., Nanzyo, M., 2006. Accumulation of uranium derived from long-term fertilizer applications in a cultivated Andisol. *Sci. Total Environ.* 367, 924-931.
- Teitelbaum, S.L., Gammon, M.D., Britton, J.A., 2006. Reported residential pesticide use and breast cancer risk on Long Island New York. *American Journal of Epidemiology*, 165, 643-65.
- Vice, D.H., Halleck, P.M., 1999. The effects of soil environment on the ability of surface geochemical surveys to detect underlying hydrocarbon traps. *J. Geoch. Explor.* 66, 457-468.
- Voltattorni, N., Sciarra, A., Caramanna, G., Cinti, D., Pizzino, L., Quattrocchi, F., 2009. Gas geochemistry of natural analogues for the studies of geological CO<sub>2</sub> sequestration. *Appl. Geochem.* 24, 1339-1346.
- Washington, J.W., Rose, A.W., 1992. Temporal Variability of Radon Concentration in the Interstitial Gas of Soils in Pennsylvania. *Journal of Geophysical Research* 97, 9145-9159.
- West, J. M., J. Pearce, M. Bentham, et P. Maul. 2005. Issue profile: environmental issues and the geological storage of CO<sub>2</sub>. *European Environment* 15:250-259.
- Xuejing, X., 1992. Local and regional surface geochemical exploration for oil and gas. *J. Geoch. Explor.* 43, 25-42.
- Zaniewski, A. E., A. Lehmann, et J. M. Overton. 2002. Predicting species spatial distributions

using presence-only data: a case study of  
native New Zealand ferns. Ecological

Modelling 157:261-280.

## Annexe 1: Effet de la profondeur sur les gaz de sol

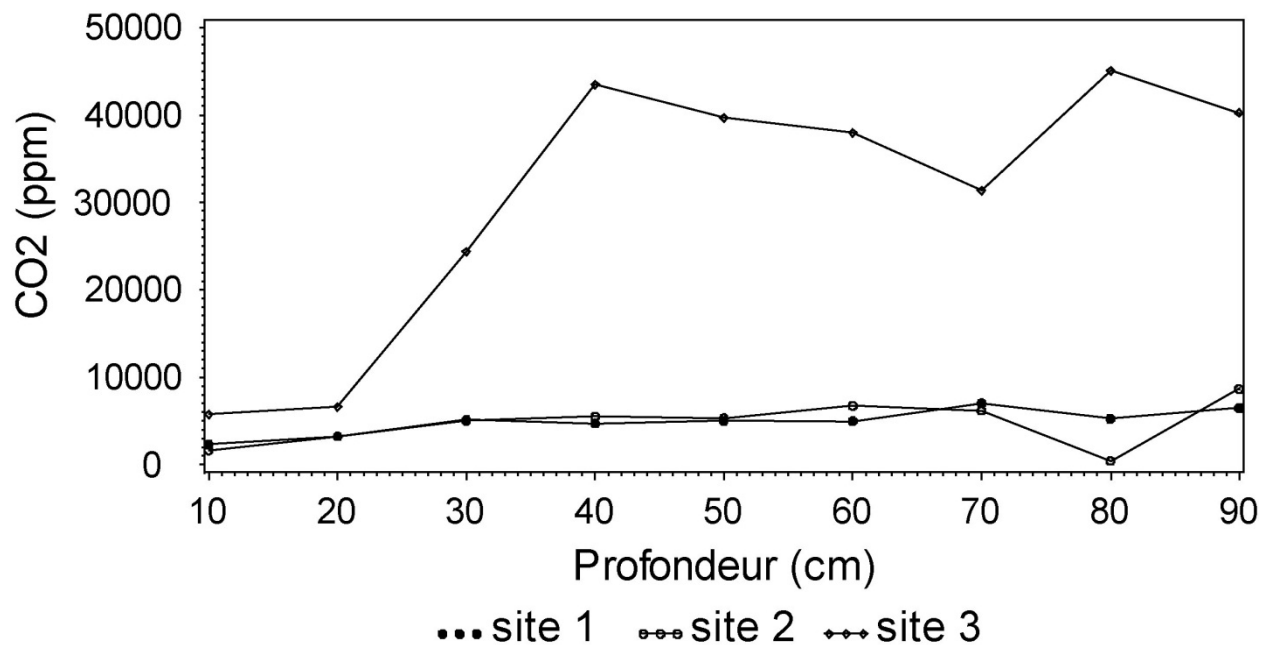


Figure 1. Variations des concentrations en CO<sub>2</sub> (en ppm) en fonction de la profondeur sur trois sites.

Des échantillons ont été collectés sur trois sites à différentes profondeurs et les concentrations en CO<sub>2</sub> ont été mesurées (Fig. 1). Sur deux sites, on n'enregistre aucune tendance nette. Sur le troisième site, plus riche, les concentrations en CO<sub>2</sub> augmentent drastiquement lorsque l'on passe de 20 à 40 cm et restent stables par la suite. Sur les trois sites, les concentrations en CH<sub>4</sub> étaient en dessous de la limite de détection et il n'est pas possible d'analyser cette variable.

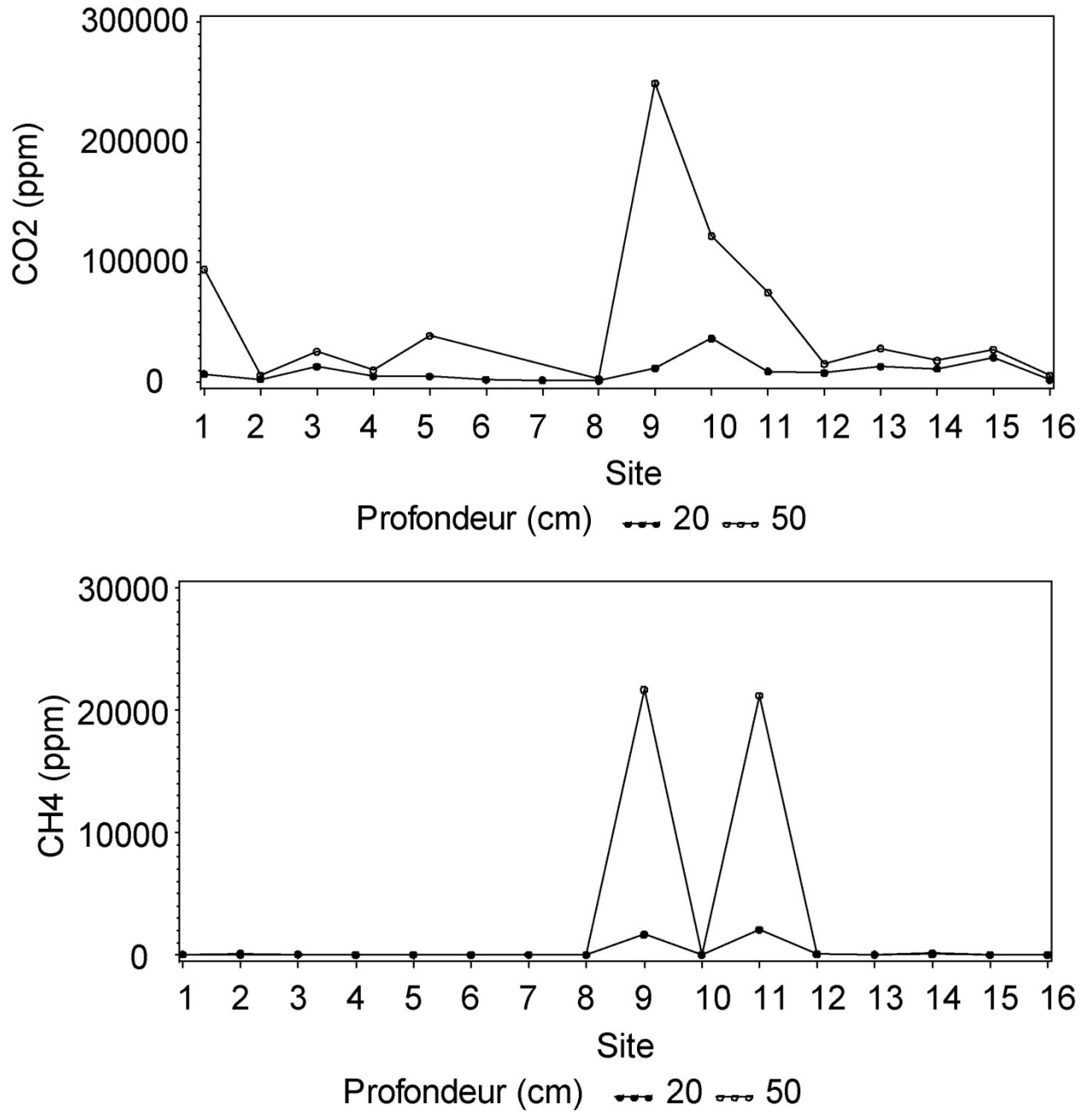


Figure 2. Concentrations en CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> à 20 et 50 cm mesurées sur 16 sites.

Sur 16 sites, les concentrations ont été mesurées à 2 profondeurs, 20 et 50 cm (Fig. 2). On retrouve les mêmes résultats que pour les trois sites précédents. Les concentrations augmentent lorsque l'on passe de 20 à 50 cm. Lorsqu'une présence de CH<sub>4</sub> est observée dans les sols, ce phénomène est bien marqué comme pour le CO<sub>2</sub>.

Les résultats obtenus montrent que la profondeur d'échantillonnage a une influence importante sur les résultats obtenus. Cependant, il semble visible également que passé une certaine profondeur (50cm), les concentrations ne changent plus.

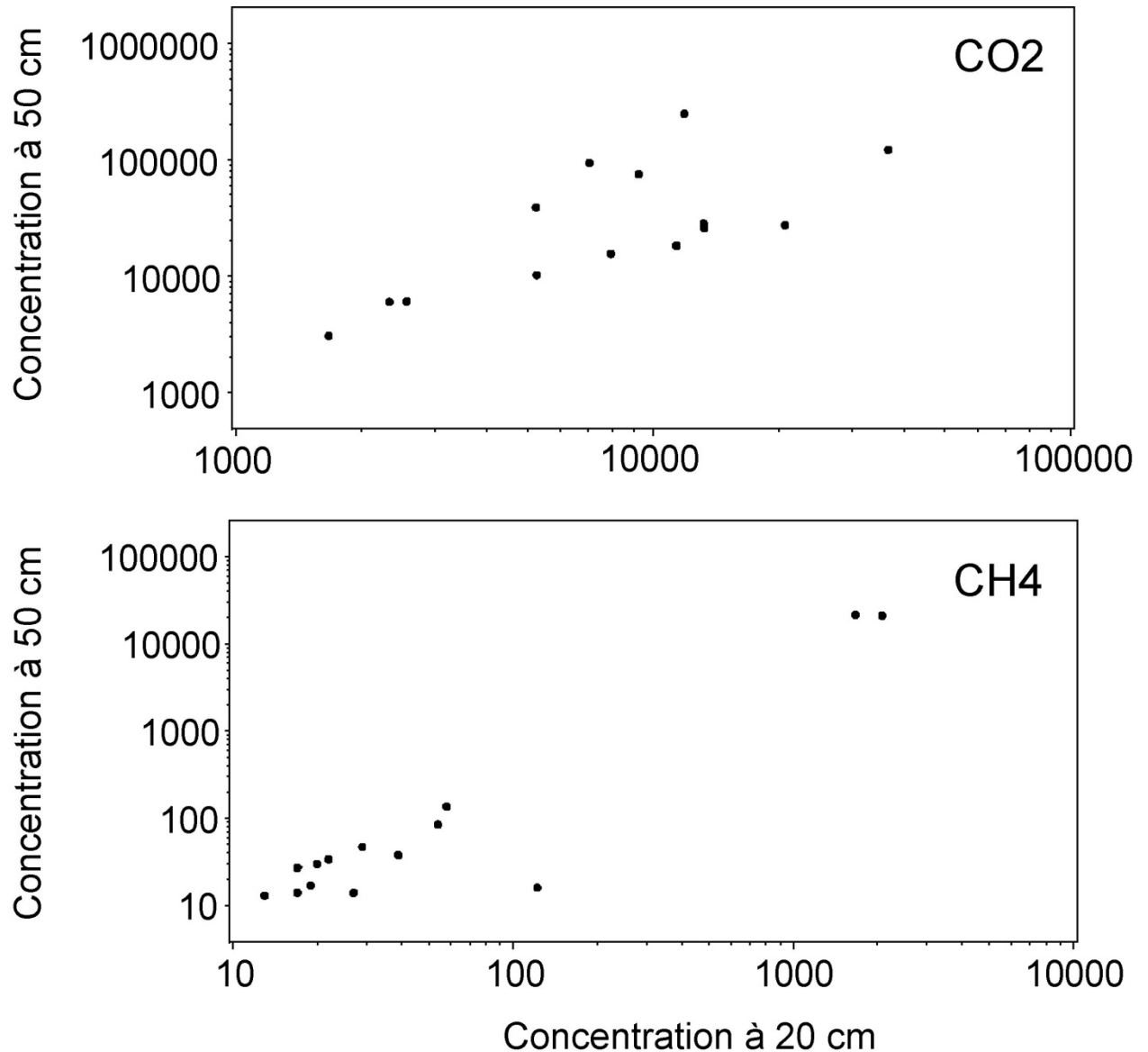


Figure 3. Relations entre les concentrations mesurées à 20 et à 50 cm.

Il est à noter également, que même si les concentrations en surface sont moins importantes, elles restent reliées à celles mesurées plus profondément (Fig. 3). Les variations entre les sites peuvent donc être étudiées à partir des concentrations mesurées à 20 cm. Elles traduisent les variations des niveaux de concentrations entre les sites. Par contre, de futures comparaisons

basées sur les valeurs enregistrées devront considérer la profondeur à laquelle ont été récoltés les échantillons.

La même influence a été observée pour les mesures des concentrations en hydrocarbures gazeux (Fig. 4). L'influence de la profondeur montre qu'il est nécessaire de standardiser les prélèvements et de fixer une profondeur stricte de prélèvement et de la respecter au cours de l'échantillonnage.

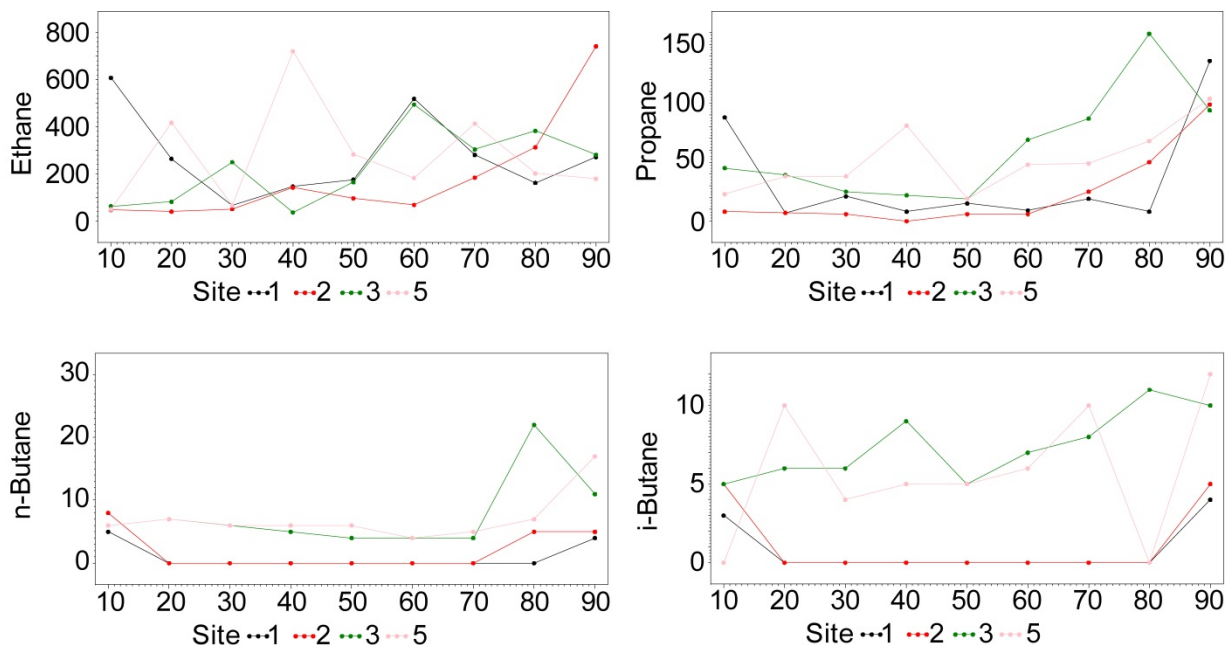


Figure 4. Variations des concentrations en éthane, propane et butane en fonction de la profondeur d'échantillonnage sur 5 sites.

## Annexe 2: Effet de l'humidité et de la température sur les concentrations en gaz

### Ensemble de la zone d'étude

Les mesures utilisées ont été obtenues sur un site témoin et sur l'ensemble de la zone d'étude. L'analyse sur un site témoin permet de s'affranchir des variabilités intersites qui peuvent potentiellement influencer les valeurs de concentrations en gaz de sol.

Le calcul des statistiques descriptives classiques pour la température et l'humidité, permet de saisir la variabilité de ces variables au cours de l'échantillonnage sur l'ensemble des sites (Tab. 1).

Tableau 1. Statistiques descriptives pour l'humidité et la température

	Moyenne	Ecart type	Min	Max	P95
Ensemble des sites					
Humidité	27.7	10.8	0	56.6	43.9
Température	18.9	5.1	8.3	29.9	27.5
Site témoin					
Humidité	23.8	5.5	12.6	34.4	32.7
Température	20.6	4.1	10.8	27	26.4

Sur l'ensemble des sites visités, les variations enregistrées sont relativement importantes. Les sols sont parfois secs (0 % d'humidité) et parfois saturés d'eau (taux d'humidité allant jusqu'à 56.6 %). Les températures enregistrées varient du simple au triple avec des valeurs minimales froides pour une saison estivale (8 °C) ou au contraire très chaudes (maximum de 30 °C). Ces fortes variabilités sont aussi observées sur le site témoin mais avec une magnitude moins forte. S'ajoutent aux variations climatiques naturelles un effet de site. Les fortes températures par exemple, sont plus facilement observées sur des sites dénudés que sous un couvert forestier dense. Les sols sableux vont se drainer plus vite que les sols argileux, et seront plus vite secs en l'absence d'épisodes pluvieux.

Au vu de ces résultats, il apparaît important de comprendre comment les variabilités naturelles de ces deux variables influencent les valeurs enregistrées pour les concentrations en gaz de sols.

### Site témoin

Les figures suivantes (Figs. 1 à 4) présentent les relations entre les concentrations en gaz, la température et l'humidité.

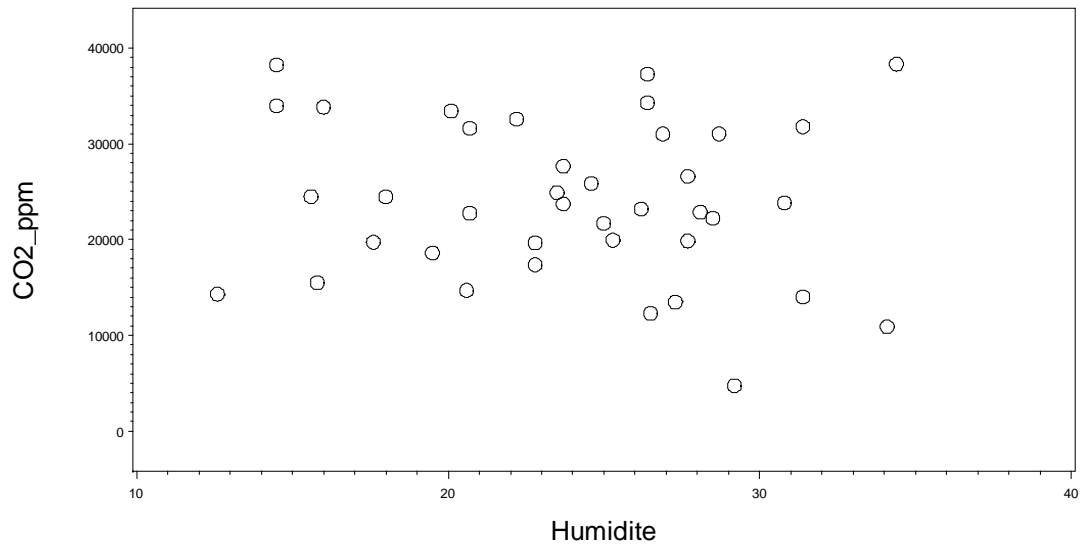


Figure 1. Relations entre les concentrations en CO<sub>2</sub> et l'humidité. Site témoin.

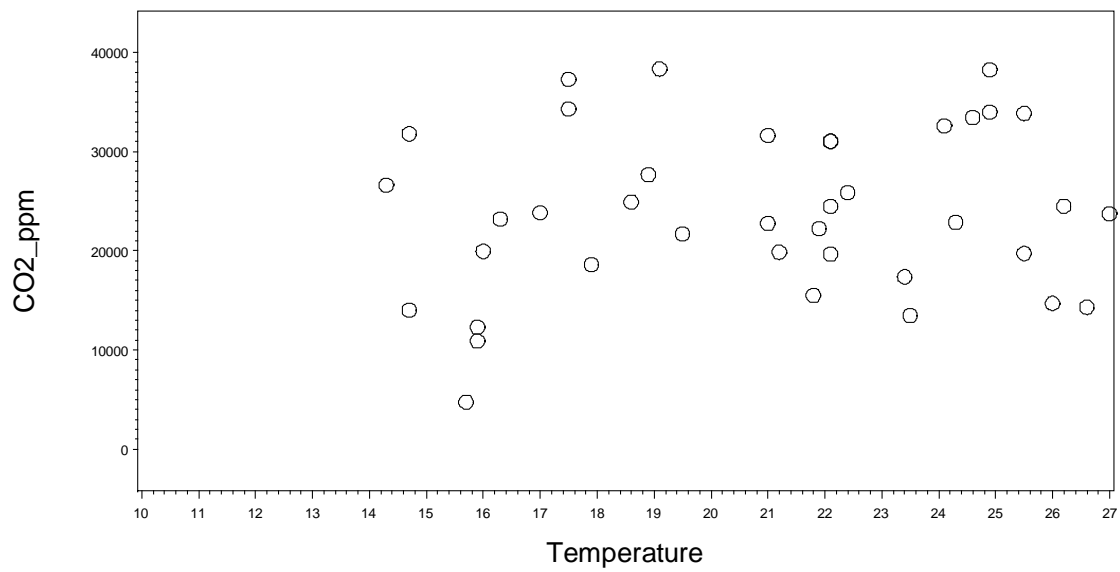


Figure 2. Relations entre les concentrations en CO<sub>2</sub> et la température. Site témoin.

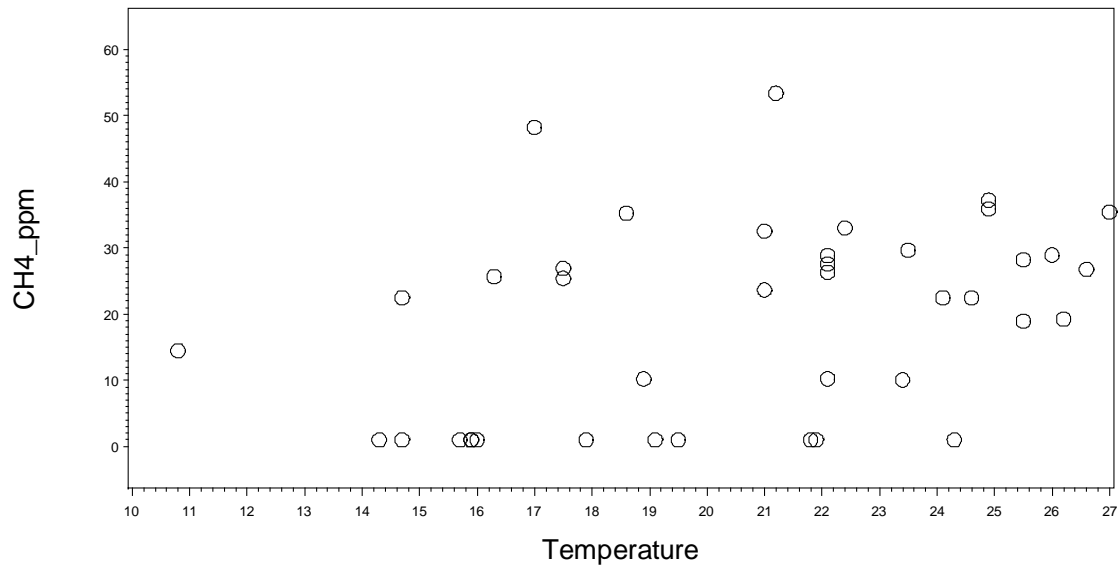


Figure 3. Relations entre les concentrations en méthane et la température. Site témoin.

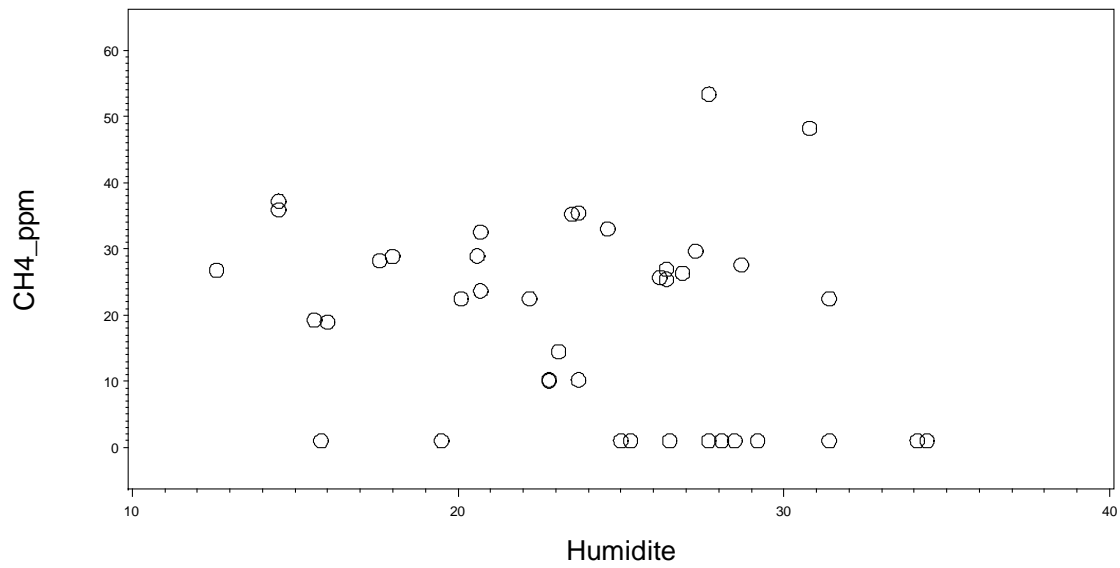


Figure 4. Relations entre les concentrations en méthane et l'humidité. Site témoin.

Les concentrations en CO<sub>2</sub> et le CH<sub>4</sub> ne semblent pas directement reliées aux variations de température et d'humidité observées sur le site témoin. L'interaction entre les deux variables

température et humidité ne montre pas plus d'association avec les concentrations en CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> (Figs. 5 et 6).

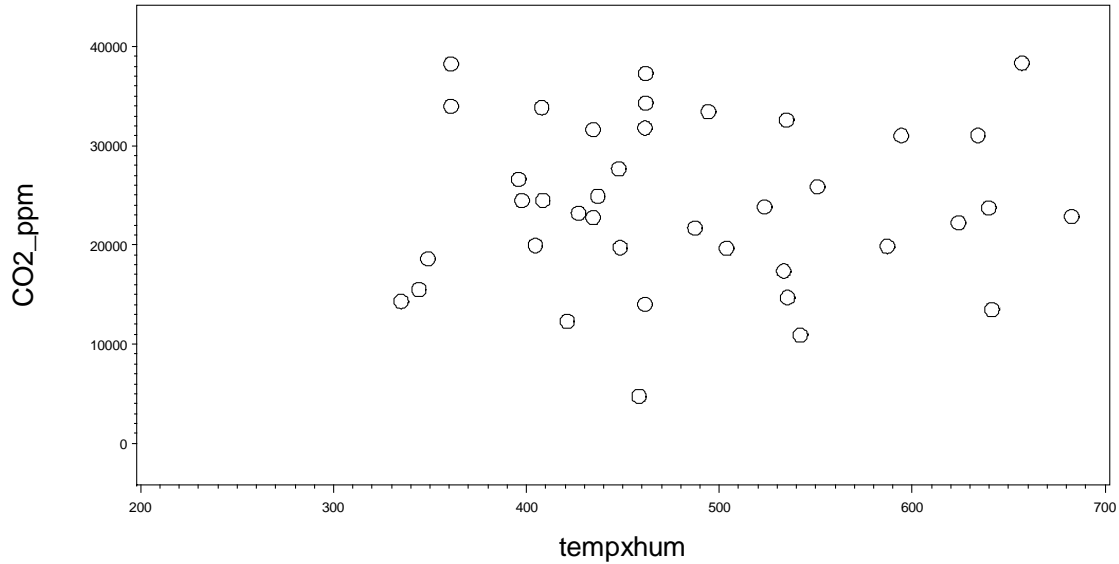


Figure 5. Relation entre les concentrations en CO<sub>2</sub> et l'interaction entre la température et l'humidité. Site témoin.

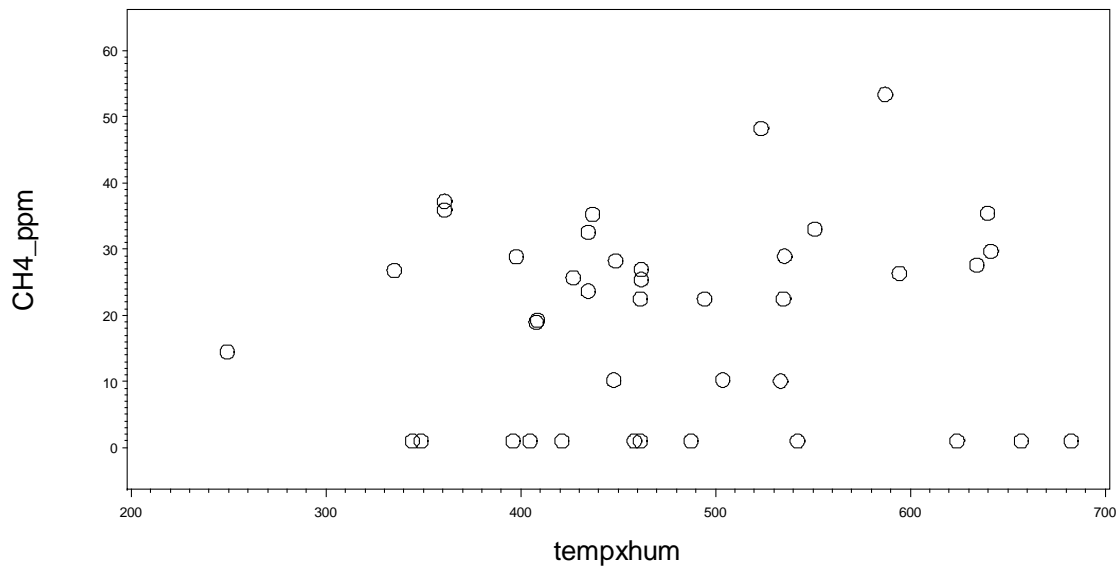


Figure 6. Relation entre les concentrations de CH<sub>4</sub> et l'interaction entre l'effet de la température et de l'humidité. Site témoin.

## Ensemble des sites

Les relations entre les facteurs environnementaux et les concentrations peuvent aussi être observées sur l'ensemble des sites (Figs. 7 à 10).

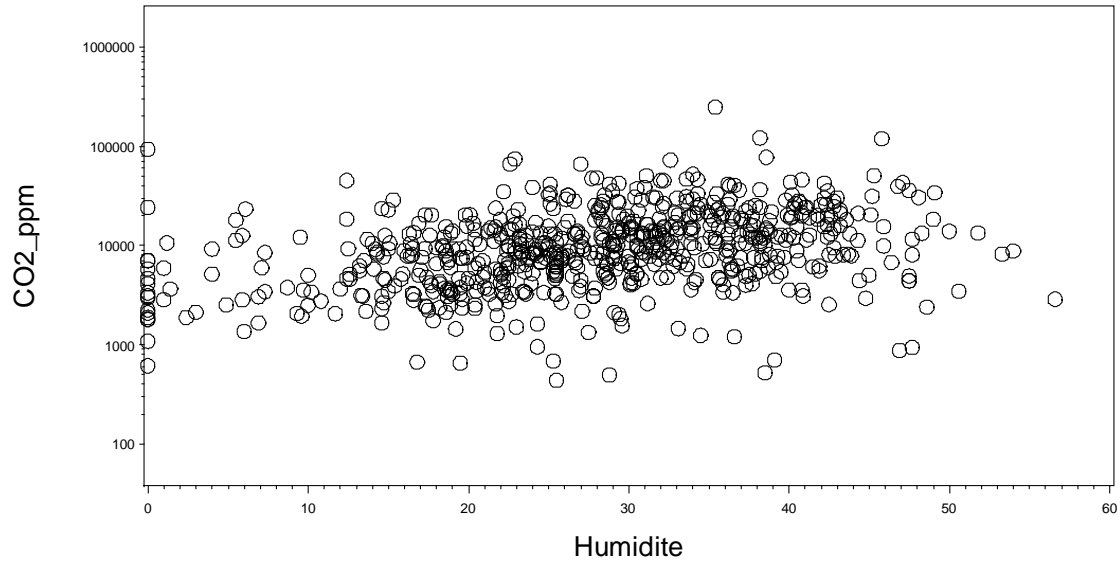


Figure 7. Relation entre les concentrations de CO<sub>2</sub> et l'humidité. Ensemble des sites. L'échelle utilisée pour les ordonnées est logarithmique de base 10.

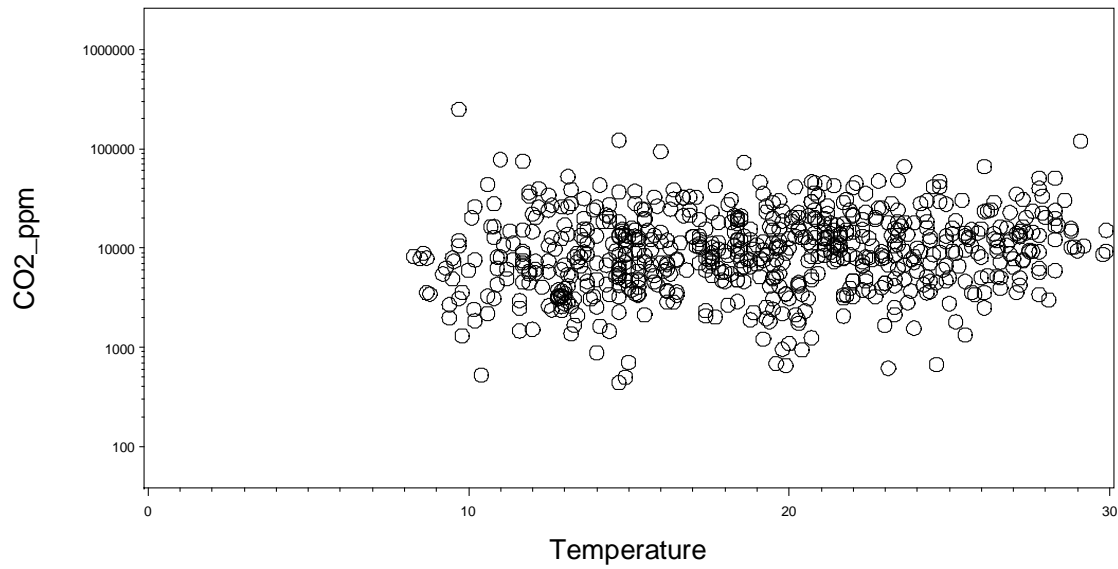


Figure 8. Relation entre les concentrations de CO<sub>2</sub> et la température. Ensemble des sites. L'échelle utilisée pour les ordonnées est logarithmique de base 10.

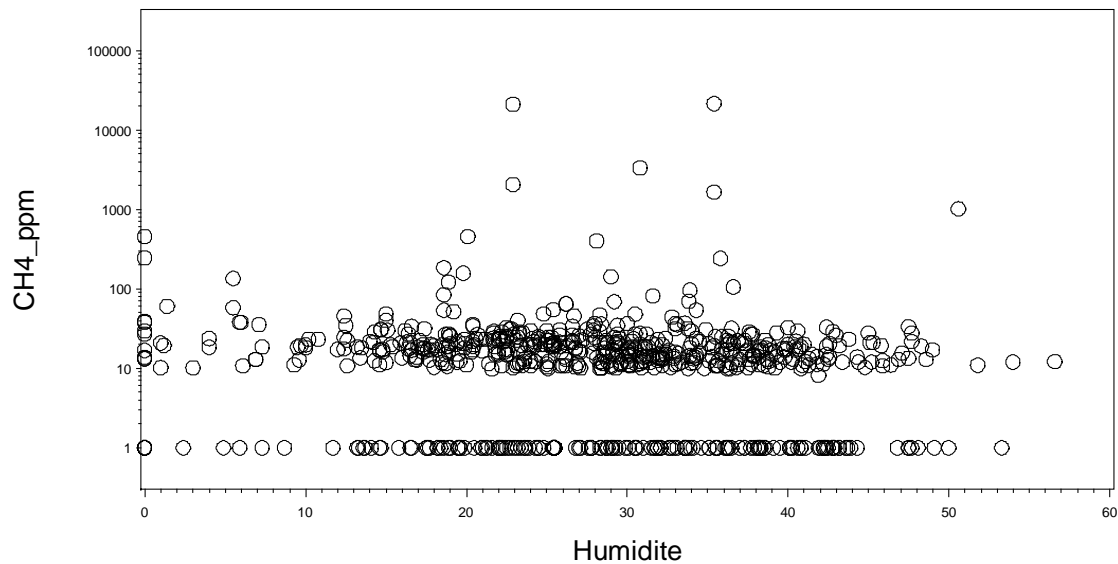


Figure 9. Relation entre les concentrations de CH<sub>4</sub> et l'humidité. Ensemble des sites. L'échelle utilisée pour les ordonnées est logarithmique de base 10. Les sites avec des concentrations en CH<sub>4</sub> égales à 1 correspondent aux concentrations en CH<sub>4</sub> inférieures à la limite de détection du chromatographe utilisé.

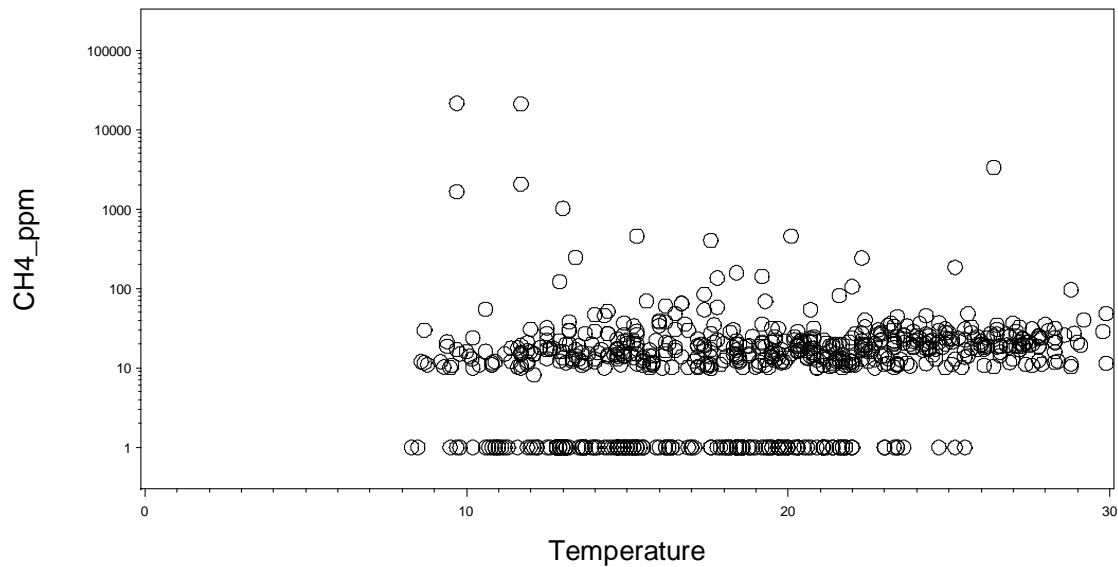


Figure 10. Relations entre les concentrations en CH<sub>4</sub> et la température. Ensemble des sites. L'échelle utilisée pour les ordonnées est logarithmique de base 10. Les sites avec des concentrations en CH<sub>4</sub> égales à 1 correspondent aux concentrations en CH<sub>4</sub> inférieures à la limite de détection du chromatographe utilisé.

Les concentrations en CO<sub>2</sub> dans les gaz de sol sont reliées positivement à l'humidité et la température. Ces relations perceptibles sur les graphiques sont confirmées par des analyses statistiques de régression effectuées sur les logarithmes népériens des concentrations (humidité : F = 133, P < 0.001 ; température : F=52, P < 0.001). La transformation en logarithme permet de normaliser les relations.

Pour le CH<sub>4</sub>, les figures semblent montrer qu'il n'existe aucune association avec la température et l'humidité. Les analyses statistiques de régression ne montrent pas l'existence de relations globales significatives.

La présence d'anomalies en CO<sub>2</sub> dans les gaz de sols doit donc être relativisée. Il est nécessaire de considérer la possibilité d'un effet de la température et de l'humidité.

## Annexe 3 : Influence de la présence de puits d'exploration

### Généralités

La région de Bécancour fait l'objet d'une exploration pour le gaz naturel. Il est intéressant de comparer la position des anomalies observées à celles des puits d'exploration (Fig. 1).

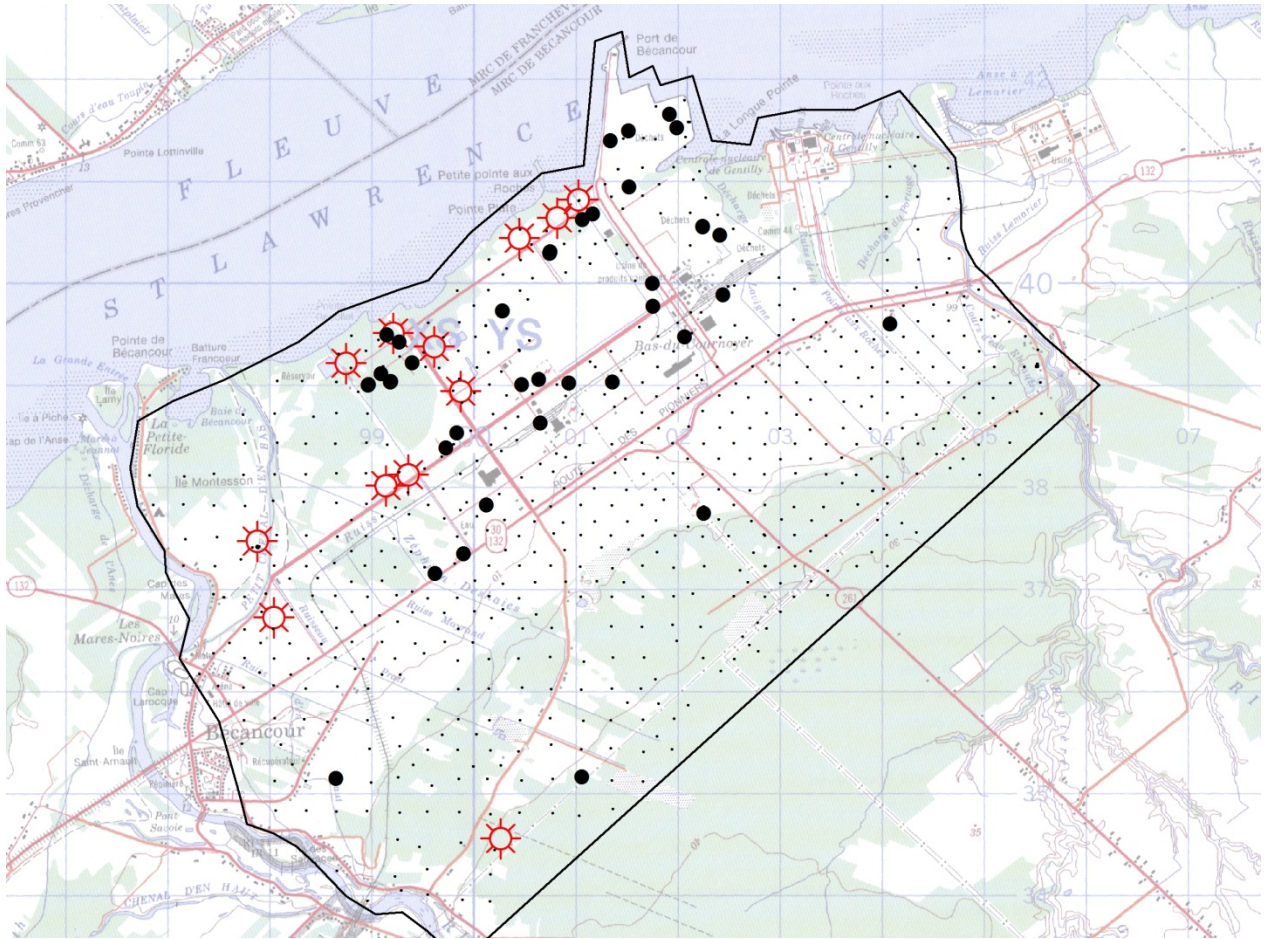


Figure 1. Carte des puits d'exploration et des anomalies en hydrocarbures gazeux. Les anomalies sont représentées avec des points noirs et les puits avec des astérisques rouges.

Les puits d'exploration et les anomalies sont pour l'essentiel concentrés dans le même secteur géographique, c'est-à-dire le nord de la carte. Leur alignement général semble également être le même. Cependant cette relation spatiale ne traduit pas de relation de cause à effet. Pour aller plus loin avec les données disponibles, une analyse spécifique a été conduite.

## Données analysées

La zone d'étude contient 13 puits de forages. Les sites d'échantillonnage de CH<sub>4</sub> dans les sols (profondeur = 50 cm) n'ont pas été localisés en fonction de la localisation des puits d'exploration. Cependant, il est possible pour chacun des sites échantillonnés (n=1114), de calculer la distance au puits le plus proche (Fig. 2).

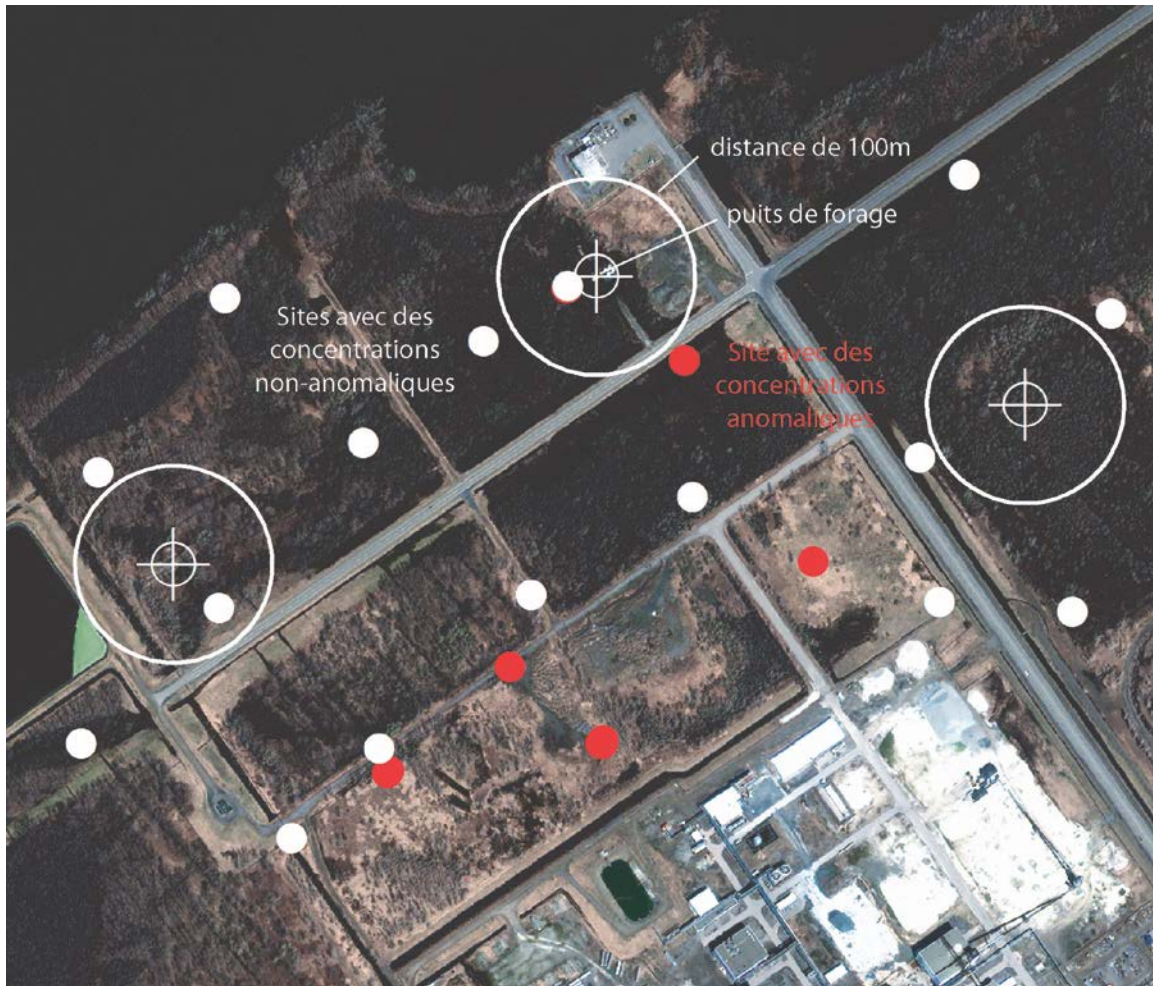


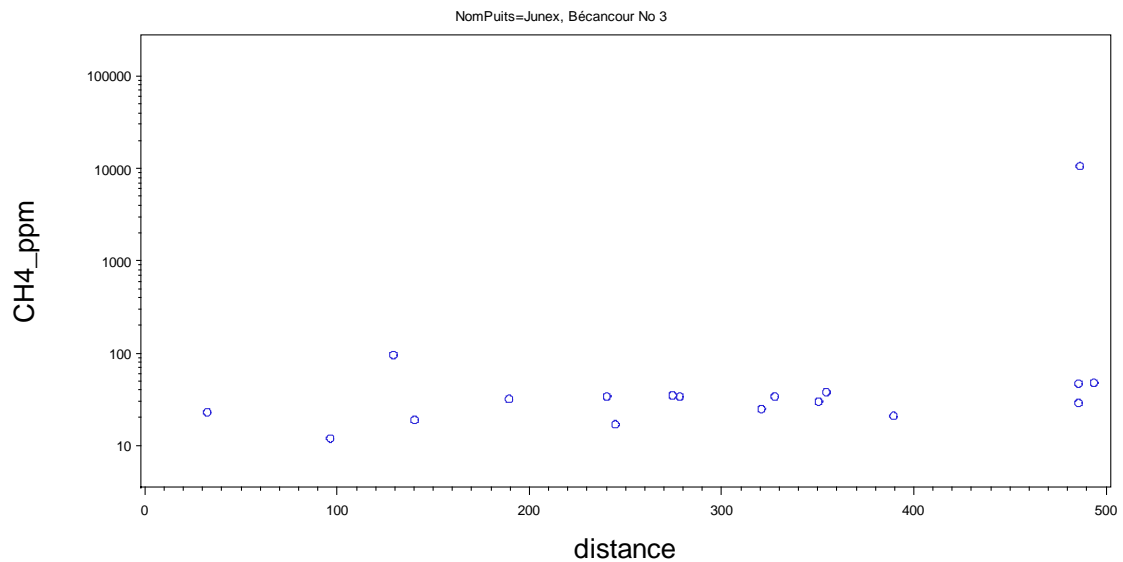
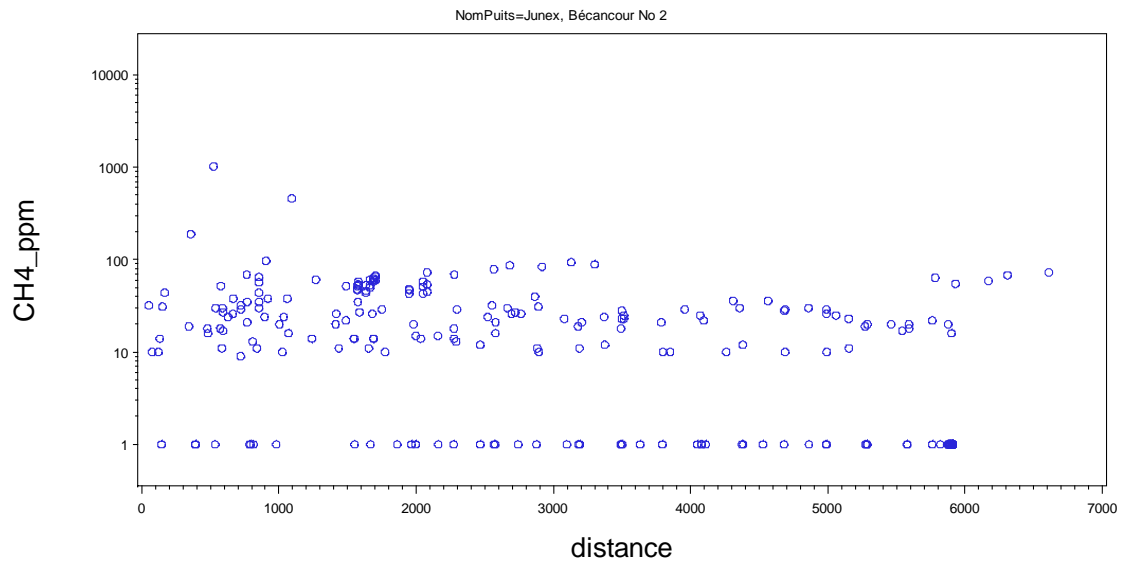
Figure 2. Puits de forage (cibles blanches), distance de 100 mètres aux puits (cercles blancs). Sites présentant des anomalies (points rouges), et sites ne présentant pas d'anomalies (points blancs).

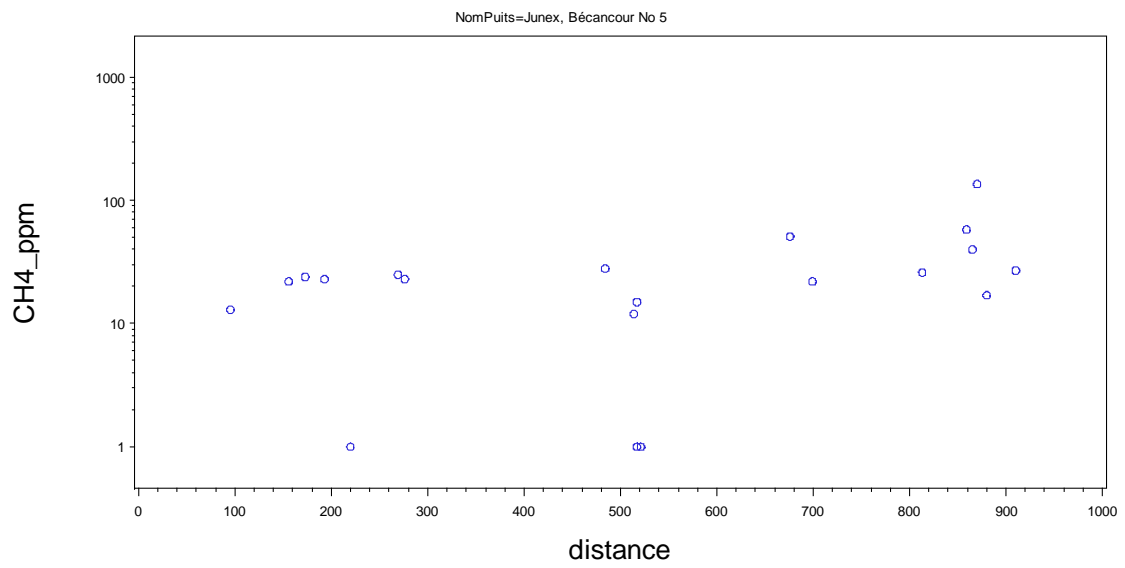
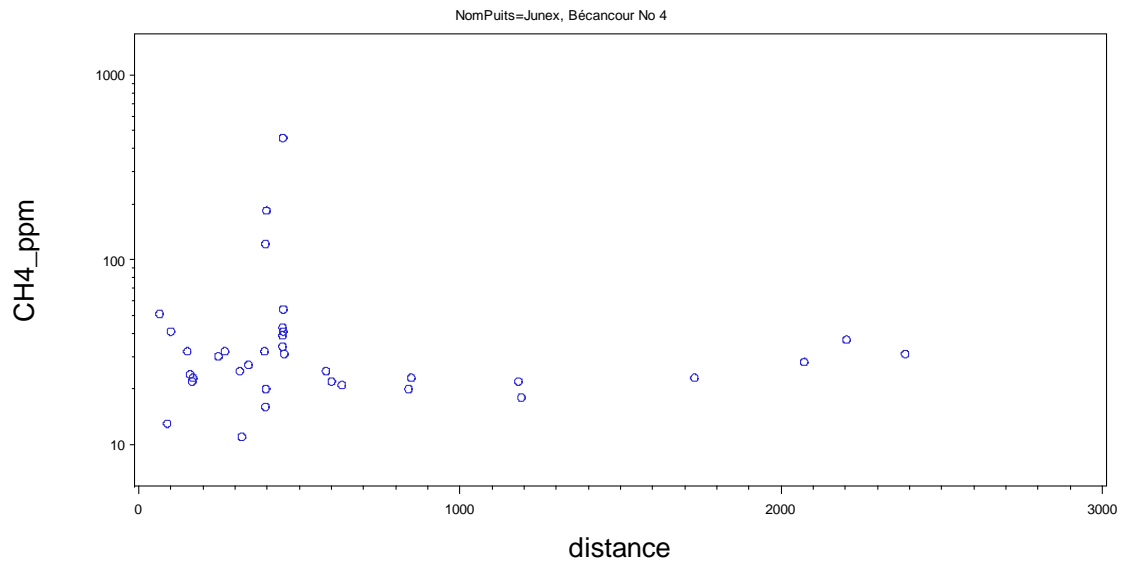
Les analyses subséquentes testent la présence de relations entre les concentrations en CH<sub>4</sub> ou les anomalies en CH<sub>4</sub> (valeurs de concentrations contenues dans le 95<sup>ème</sup> percentile) et la distance aux puits.

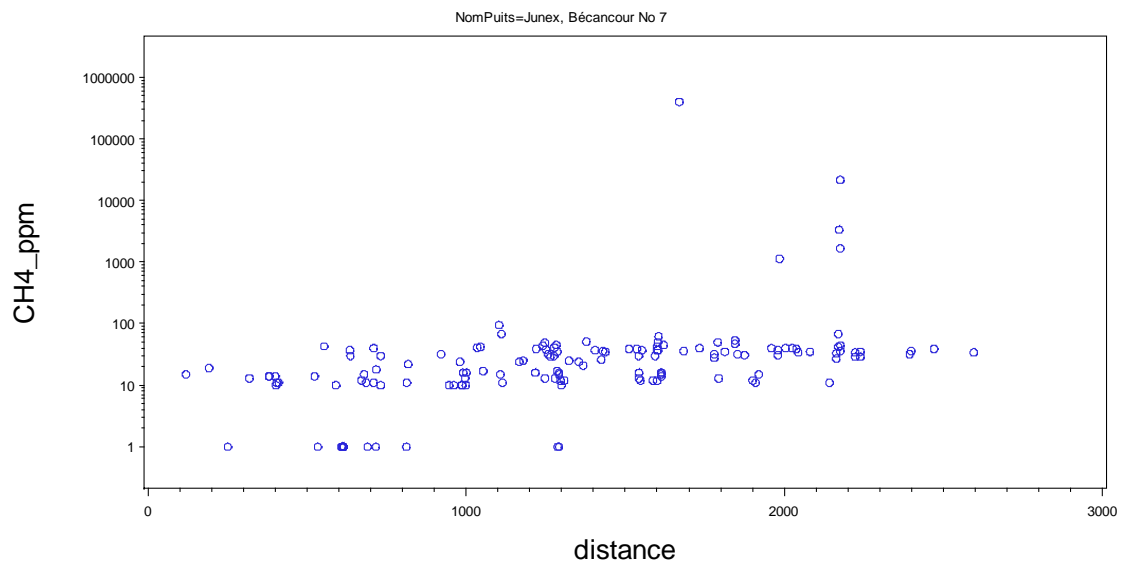
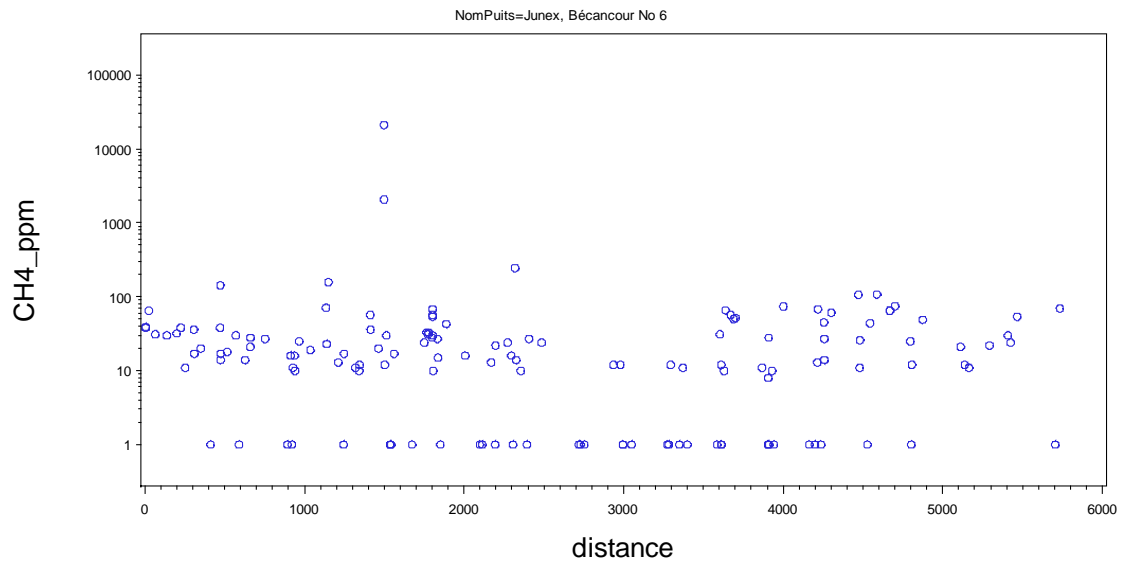
## Visualisation des données brutes

Les figures ci-dessous, présentent pour chacun des puits les concentrations en CH<sub>4</sub> observées dans les sols en fonction de la distance au puits (Fig. 3). Les concentrations en CH<sub>4</sub> sont figurées sur une échelle logarithmique.

Les sites retenus pour chaque puits sont ceux pour lesquels le puits considéré est le puits le plus proche. Cette procédure a pour objectif d'éliminer les interférences entre les puits.







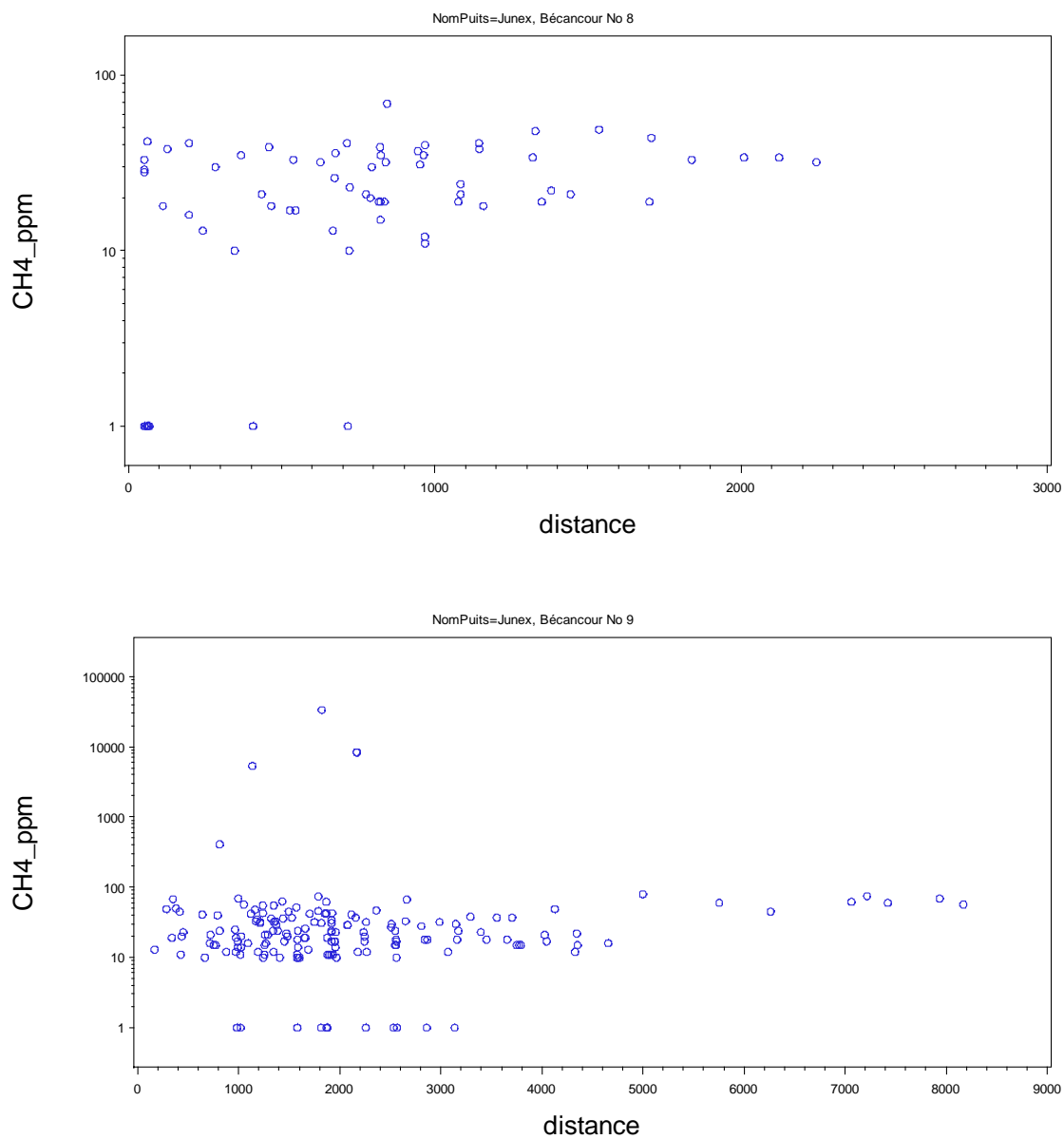


Figure 3. Relation entre les concentrations de CH<sub>4</sub> dans les gaz de sol et la distance aux puits. Chaque figure est relative à un puits.

Visuellement, on ne constate pas d'augmentation ou de diminution des valeurs de concentrations en CH<sub>4</sub> lorsqu'on se rapproche des puits.

## Distribution des sites avec des anomalies versus sans anomalies

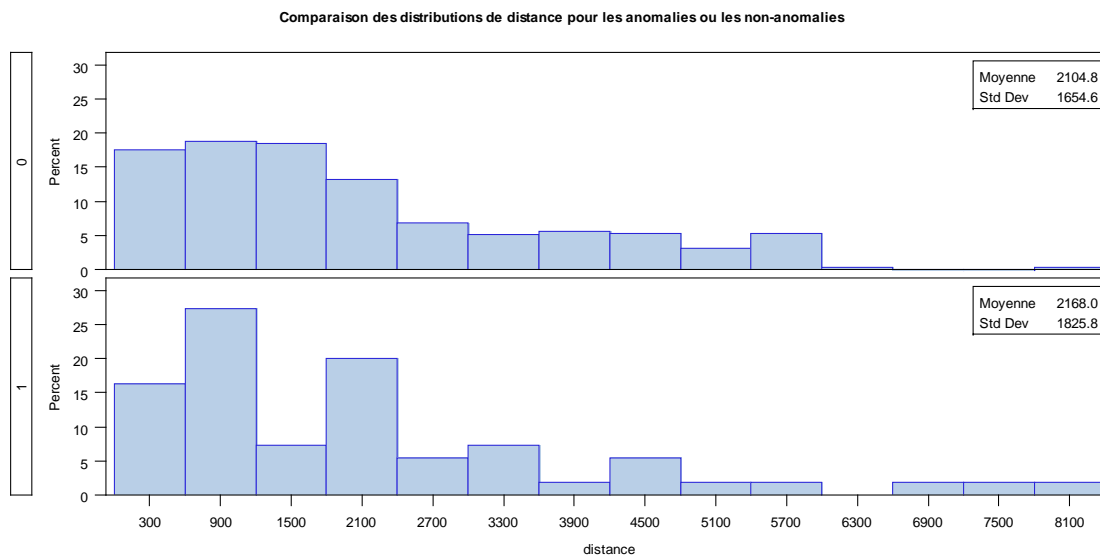


Figure 4. Histogramme de fréquence de la présence (1) ou de l'absence (0) d'anomalies en CH<sub>4</sub> dans les gaz de sol en fonction de la distance aux puits de forage.

Les tests non-paramétriques effectués (distributions de fréquence non normales; Procédure NPAR1WAY, SAS) semblent confirmer que les fortes concentrations anomaliques en CH<sub>4</sub> ne se rencontrent pas préférentiellement à proximité des puits (Fig. 4).

La valeur de probabilité (test bilatéral) est de 0.67, ce qui indique que l'hypothèse nulle qu'il n'existe pas de différence entre les deux distributions (anomalies et non-anomalies) ne peut pas être rejetée.

### Interprétation des résultats

La présence des puits ne semble pas expliquer la présence d'anomalies en méthane dans les sols de notre zone d'étude. Les données analysées ne supportent pas l'hypothèse que les puits provoquent des rehaussements de la valeur des concentrations en CH<sub>4</sub> dans les sols. La même démarche a été appliquée aux hydrocarbures gazeux (éthane, propane, butane). Les résultats sont les mêmes que pour le CH<sub>4</sub>, et aucun effet des puits n'est observable.

Les tests ont été effectués sur un jeu de données recueilli pour d'autres objectifs que celui de juger de l'effet potentiel de puits de forage. Des études complémentaires, plus spécifiques, pourraient être menées pour obtenir des conclusions plus robustes. En ce qui concerne les

données présentées dans ce rapport, les analyses menées ne montrent aucune influence des puits sur les mesures recueillies

## Annexe 4: Influence des routes

### Généralités

La présence des routes peut potentiellement affecter les données. Le passage des véhicules, la construction des routes ou le lessivage des bitumes pourraient augmenter la présence de fortes concentrations d'hydrocarbures dans les sols. L'hypothèse de recherche suivante a donc été posée : « ce sont les routes qui influencent la présence des anomalies en hydrocarbures gazeux ».

### Données utilisées

La matrice utilisée contient comme variable (Tab. 1):

- la présence ou l'absence d'anomalies en hydrocarbures pour chaque site,
- la distance entre le site échantillonné et la route la plus proche

Tableau 1. Matrice utilisée.

Site	Présence d'anomalie (0/1)	Distance minimale (mètre)
1	0	234
2	1	456

Une anomalie en hydrocarbure (site anormalique) est définie comme la présence sur un site de fortes concentrations (95<sup>ème</sup> percentile) en éthane, propane ou butane.

Afin de privilégier une approche conservatrice, la zone d'étude a été restreinte à la zone industrielle (incluant l'autoroute au sud, fig. 1). C'est dans cette zone que se rencontrent :

- le plus grand nombre d'anomalies en hydrocarbures,
- le réseau routier le plus dense,
- la plus forte activité au point de vue circulation automobile, travaux d'entretiens...

Toutes les routes ont été conservées, y compris celles où le trafic est quasi nul (route nord-ouest se terminant en cul-de-sac).



Figure 1. Données utilisées. Les lignes figurent les routes discrétisées en points, les petits points noirs sont les sites avec de faibles concentrations en hydrocarbures gazeux (non-anomaliqes) et les gros points noirs sont les sites avec des concentrations anormaliqes (95<sup>ème</sup> percentile) en éthane, propane ou butane.

La distance minimale entre chacun des sites et la route la plus proche a été réalisée en :

- discrétisant en points les linéaires routiers (distance entre les points = 10 m ; ARCGis),
- recherchant pour chaque site le point route le plus proche (SAS, langage macro),
- calculant la distance entre ce point route et le point site (SAS, langage macro).

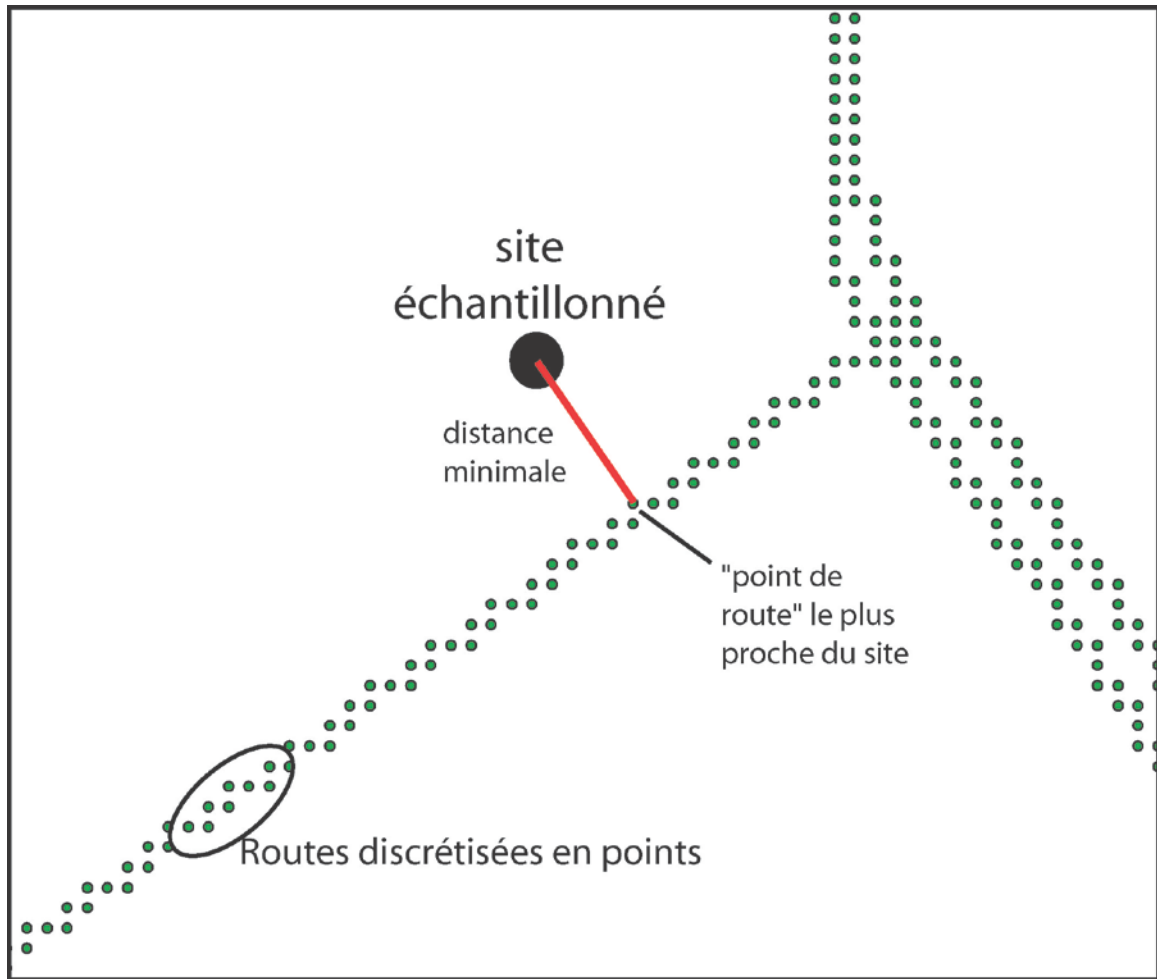


Figure 2. Discrétisation des routes en points.

L'opération de discrétisation des entités linéaires en points a permis de calculer facilement des distances entre les sites échantillonnés et les routes (Fig. 2).

## Analyses

Hypothèse testée (H1): La distance entre les routes et les sites anomaux est plus faible que pour les sites non-anomaux.

Hypothèse nulle : il n'existe pas de différence entre la distance site-pour les sites anomaux et les sites non-anomaux.

## Distributions des distances minimales

### Comparaison des distributions de distance pour les anomalies ou les non-anomalies

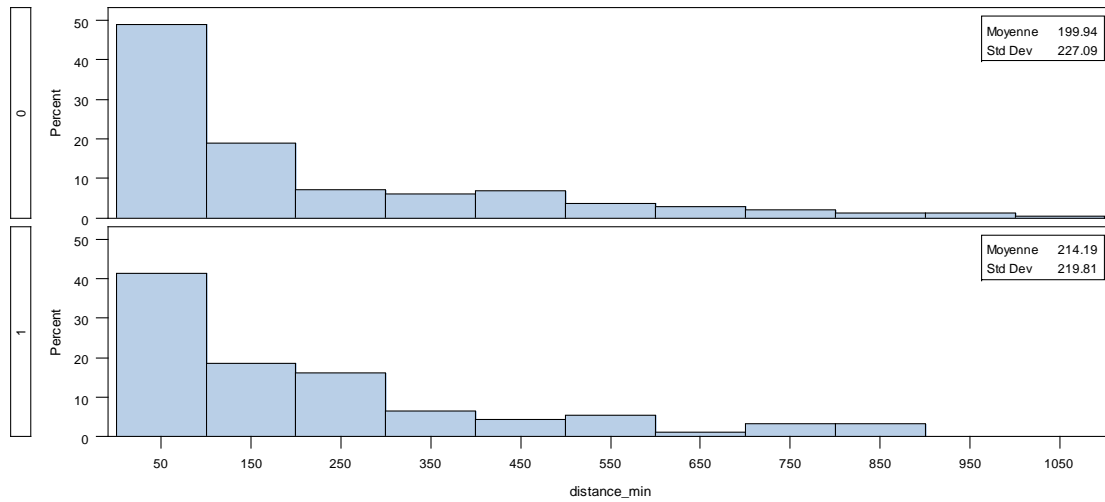


Figure 3. Distribution des distances aux routes pour les sites normaux et anomaux.

Les histogrammes fréquentiels des distances minimales (distance\_min) entre les sites et les routes pour les sites non-anomalous (0) et les sites anomaux (1), montrent que les distances ne sont pas normales (Fig. 3).

Il est à noter que la distance minimale moyenne entre les sites et les routes est plus faible pour les sites non-anomalous (199 m) que pour les sites anomaux (214).

#### Test non paramétrique de Wilcoxon

Les distributions non-normales imposent l'utilisation de tests non-paramétriques (Fig. 4).

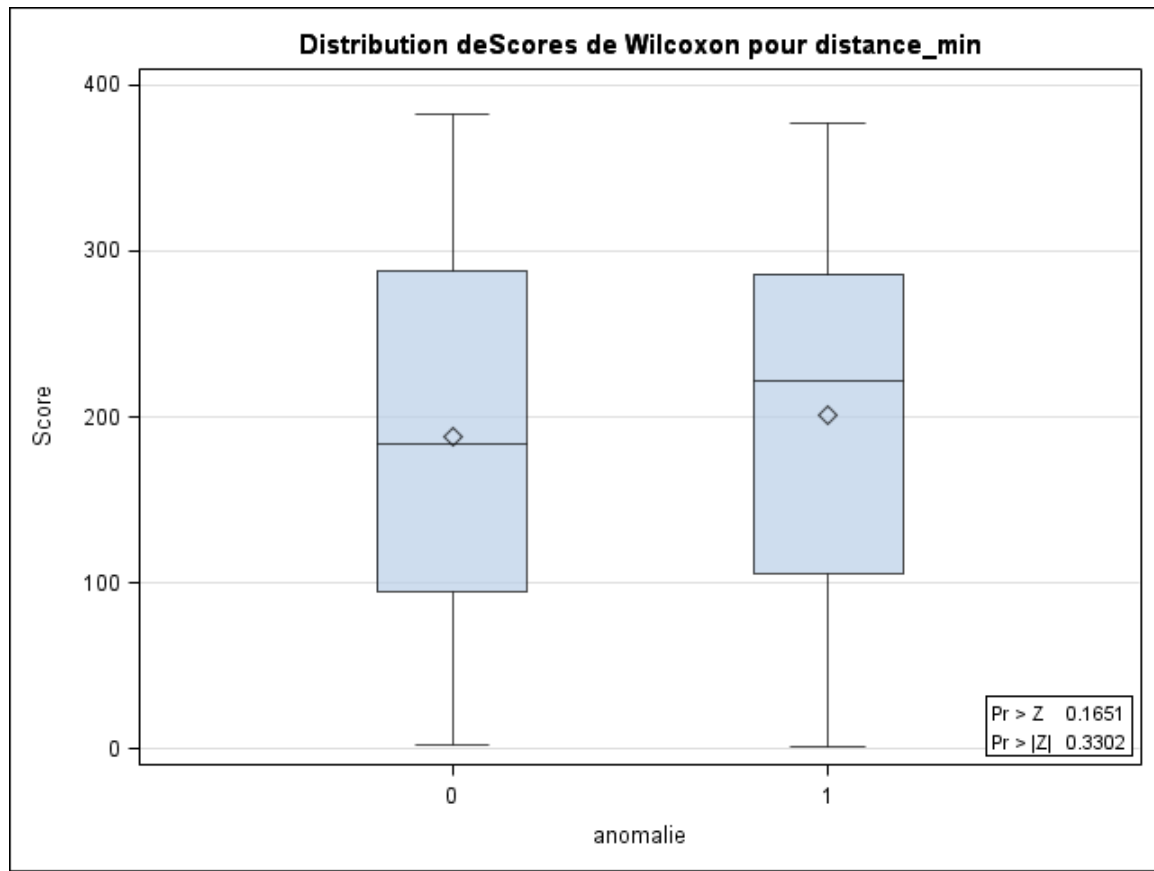


Figure 4. Test de la différence entre les distributions de distance des sites normaux et anomaux.

Les scores de Wilcoxon ne sont pas significativement différents pour les sites anomaux et non-anomaux (test bilatéral,  $P > \text{abs}(Z) = 0.33$ ).

L'hypothèse nulle qu'il n'existe pas de différence de distance entre les routes et les sites pour les sites anomaux et les sites non-anomaux ne peut pas être rejetée.

Les données utilisées ne permettent pas de montrer qu'il existe un effet des routes sur la présence des anomalies en hydrocarbures.

### Interprétation des résultats

Les analyses ne permettent pas de montrer que la présence des routes ait pu influencer les résultats des échantillonnages des hydrocarbures gazeux dans les sols. Les remarques suivantes essaient de dégager quelques limites de cette interprétation.

### **Pondération équivalente de chaque observation**

Chaque site a un poids équivalent dans les analyses. La non-influence des routes est appréciée globalement sur l'ensemble des sites. Quelques sites spécifiques peuvent être influencés par la présence des routes, mais cet effet peut passer inaperçu.

### **Historique de la zone d'étude**

La présence des anomalies pourraient être liées à la présence de routes anciennes actuellement disparues. Cette hypothèse semble peu probable.

## Annexe 5: Mesure semi-quantitative du radon dans les sols

### PRINCIPE

Des échantillons de gaz dans le sol sont récoltés dans des cellules de Lucas pour estimer la concentration de radon. Pour ce faire, un trou d'environ 2,5 cm de diamètre doit être percé dans le sol jusqu'à une profondeur d'environ 65 cm. La sonde de l'échantillonneur sous vide pour sols est insérée dans ce trou à une profondeur de 50 cm et le gaz du sol est aspiré dans une cellule de Lucas à l'aide d'une pompe manuelle. Une cellule de Lucas consiste en une chambre de scintillation dont la surface interne est recouverte de sulfate de zinc activé à l'argent. Sur une des faces de la cellule on retrouve une fenêtre de quartz transparente qui sera placée sur le tube du photomultiplicateur (détecteur) du AB-5R. Sur l'autre face de la cellule on retrouve 2 connecteurs permettant l'entrée des échantillons gazeux. L'activité de ces échantillons est mesurée à l'aide d'un moniteur de radiation alpha (Pylon AB-5R).

### ATTENTION

- 1) Un voltage de près de **1100V DC** peut être présent sur le détecteur du AB-5R. On doit s'assurer que le **AB-5R est en position OFF avant d'y brancher tout accessoire.**
- 2) Le détecteur peut s'endommager s'il est# exposé à la lumière. Avant de mettre le AB-5R en position ON, s'assurer que le détecteur est protégé de la lumière (**couvercle protecteur ou cellule de Lucas en place**).
- 3) S'assurer de la polarité si on utilise une pile de 12V pour recharger le AB-5R.

### PRÉPARATION INITIALE

Le schéma du panneau de contrôle du AB-5R est illustré à la Figure 1.

- 1) Date et heure

Lorsqu'on place l'interrupteur du AB-5R en position ON, l'écran affiche pendant 5 secondes:

8 : 8 : 8 : 8 : 8 : 8 : 8 : 8

Pendant cet affichage, appuyez sur le bouton PROG STEP. L'écran affichera un « d » clignotant et la date dans le format AA:MM:JJ. Pour changer la date, appuyez sur le bouton PUMP pour sélectionner le paramètre à changer et le bouton START/STOP pour le régler. Pour terminer appuyez sur la touche PUMP pour retrouver le « d » clignotant et appuyez sur le bouton PROG STEP pour accepter la date. L'écran affichera alors un « t » clignotant et l'heure dans le format HH:MM:SS. Ajustez l'heure en utilisant les touches PUMP et START/STOP. Pour quitter, appuyez

sur PUMP pour retrouver le « t » clignotant et appuyez sur la touche PROG STEP plusieurs fois pour retourner au mode « rEAdY ».

## 2) Durée de l'intervalle

Par défaut, la durée de l'intervalle de mesure est de 5 minutes. Si on veut le changer, on doit appuyer sur PROG STEP. L'écran affichera « In XX » où XX est la durée de l'intervalle. Le bouton PUMP sert à changer le premier X et le bouton START/STOP sert pour le 2<sup>e</sup> X. **Choisir une durée d'intervalle de 1 minute.** Appuyez sur PROG STEP pour accepter les changements.

## 3) Enregistrement des paramètres

Quand le sélecteur de pile (**BATTERY**) est en position **ON**, les modifications des paramètres seront conservées même si le AB-5R est en position OFF. Dès qu'on place le sélecteur de pile (BATTERY) en position OFF, tous les paramètres reprendront leurs valeurs par défaut. Les mesures ne s'enregistrent pas en mémoire quand le sélecteur de pile est en position OFF.

## 4) Mémoire

Pour vérifier la quantité de mémoire disponible, on appuie sur la touche RECALL. L'écran affichera « FrEE XXX » où XXX est le nombre d'intervalles disponibles (maximum 675). Appuyer sur RECALL nous ramène en mode « rEAdY ».

Pour effacer toutes les données, appuyez sur le bouton PROG STEP en maintenant la touche RECALL enfoncée. L'écran affichera :

CLEAr ?

En continuant de maintenir la touche RECALL enfoncée, appuyez de nouveau sur le bouton PROG STEP. L'écran affichera :

SURe ?

En continuant de maintenir la touche RECALL enfoncée, appuyez de nouveau sur le bouton PROG STEP. L'écran affichera :

donE !

Appuyer sur RECALL nous ramène en mode « rEAdY »

## 5) Entretien

- Vérifier et remplacer le dessicant de la colonne de l'échantillonneur sous vide pour sols au besoin (devient rose quand on doit le remplacer)
- Vérifier et remplacer le morceau de coton au bout de la sonde de l'échantillonneur sous vide pour sols s'il est trop souillé.
- Vérifier et remplacer le filtre de polyéthylène 70µm de l'échantillonneur sous vide pour sols s'il est trop souillé.

## MESURE DU BRUIT DE FOND

- 1) Enlever le couvercle protecteur du PMT (détecteur – *Photomultiplier Tube*) en ayant préalablement mis le **AB-5R en position OFF**. Placer le sélecteur PMT à Int.
- 2) Installer l'adaptateur ABA en le vissant sur le boîtier du PMT.
- 3) Insérer solidement la cellule de Lucas 300A dans l'adaptateur ABA en prenant des précautions pour ne pas rayer la fenêtre de quartz.
- 4) Connecter le tube de l'échantillonneur sous vide pour sols (*Vacuum soil probe assembly*) à une des 2 entrées de la cellule de Lucas. Connecter l'autre entrée de la cellule de Lucas à la pompe manuelle.
- 5) À l'aide d'un petit carottier, percer un trou d'environ 2.5cm de diamètre jusqu'à une profondeur d'environ 65cm. Essayer d'éviter que les parois ne s'effritent.
- 6) Placer un petit morceau de coton au bout de la tige de la sonde afin d'éviter que des particules pénètrent dans la tige. Le coton devrait être remplacé au besoin.
- 7) Introduire la sonde dans le trou en ajustant le couvercle de caoutchouc à la surface du sol.
- 8) Placer le **AB-5R en position ON**. S'assurer qu'on est en **mode CONTINUOUS** et que le **temps est à MIN**.
- 9) Fermer la valve de la sonde et faire le vide dans la cellule jusqu'à environ 26 in. Hg à l'aide de la pompe manuelle. Cette valeur de vide devra être la même dans toutes les mesures subséquentes. S'assurer que toutes les connections sont étanches et que le vide se maintient.
- 10) Prendre une mesure en appuyant sur le bouton Start/Stop du AB-5R. Laisser le AB-5R fonctionner pendant **5 minutes** et appuyer sur le bouton Start/Stop pour terminer la mesure. Faire la moyenne (comme on a sélectionné un intervalle de 1 minute, les résultats obtenus sont en comptes par minute ou CPM). Prendre en note cette valeur qui sera la valeur de votre bruit de fond pour cette cellule. Les valeurs de bruit de fond obtenues pour les cellules initialement sont données au tableau 1.

**Tableau 1** : Valeurs de bruit de fond mesurées le 19 octobre 2011

Intervalle	Comptes de bruit de fond (CPM)		
	#2565	#2605	#2606
1	2	3	0
2	5	0	2
3	1	4	2
4	2	5	0
5	2	0	2
Moyenne	2.4 CPM	2.4 CPM	1.2 CPM

#### ÉCHANTILLONNAGE DU RADON DANS LE SOL

- 1) Avant chaque échantillonnage de Radon dans le sol, faire une mesure du bruit de fond tel que décrit ci-haut. À cette étape-ci, la cellule de Lucas devrait être sous-vide et la sonde de l'échantillonneur pour sol devrait être placée dans le trou du site d'échantillonnage.
- 2) Ouvrir lentement la valve jusqu'à ce que le système s'équilibre avec la pression ambiante. Si le système ne réussit pas à s'équilibrer, il faut alors s'assurer que le coton placé au bout de la tige de la sonde et/ou le filtre de polyéthylène ne sont pas colmatés.
- 3) **Démarrer immédiatement la mesure** en appuyant sur le bouton Start/Stop du AB-5R. Laisser le AB-5R fonctionner pendant **12 minutes** et appuyer sur le bouton Start/Stop pour terminer la mesure.
- 4) Tout de suite après la mesure, retirer la sonde du trou d'échantillonnage. Fermer la valve et faire le vide dans le système tel que décrit à l'étape 9 de la Mesure de bruit de fond. Ouvrir la valve et laisser entrer de l'air frais dans le système. Répéter cette procédure au moins 3 fois afin d'éliminer le Radon de la cellule.
- 5) Si on veut réutiliser la même cellule, il faut attendre au moins 10 minutes et refaire une mesure de bruit de fond. Si le bruit de fond est trop élevé, on peut

attendre encore quelques minutes\* ou changer de cellule (étape 1 de Mesure de bruit de fond).

\* Exemple : si les comptes mesurés dans la cellule étaient de l'ordre de 200CPM, il faudra attendre 5 minutes pour qu'on mesure un bruit de fond de 10CPM après la purge. Si les comptes étaient de l'ordre de 2000CPM, un temps d'attente de 15-30 minutes sera nécessaire.

## ENREGISTREMENT DES DONNÉES

Les données sont enregistrées selon la mesure, le cycle et l'intervalle dans lesquels elles ont été acquises. La première mesure effectuée à partir du moment où la mémoire a été réinitialisée porte le #1. Le premier cycle d'une mesure portera le #1 et le premier intervalle d'un cycle sera numéroté #1. Dans notre cas (mode CONT), toutes nos données seront enregistrées dans le cycle #1 de chaque mesure à moins qu'il y ait plus de 99 intervalles. Dans ce cas, les données suivantes seront placées dans le cycle #2....

Les données peuvent être rappelées pour les consulter ou les effacer selon leur numéro de mesure, cycle et intervalle.

- Appuyez sur la touche RECALL. L'écran affichera « FrEE XXX » où XXX est le nombre d'intervalles disponibles.
- Appuyez sur la touche PROG STEP. L'écran affichera « run XX » où XX est le numéro de la mesure en cours ou de la plus récente mesure.
- Pour choisir une mesure différente, appuyez sur PUMP pour choisir le premier chiffre du numéro et sur START/STOP pour le 2<sup>e</sup> chiffre.
- Appuyez sur la touche PROG STEP pour confirmer le numéro de la mesure désirée.
- Si le numéro choisi est valide, l'écran affichera « n C 01 », sinon, le AB-5R quittera le mode RECALL.
- Appuyez sur la touche PUMP et START/STOP pour sélectionner le numéro du cycle désiré.
- Appuyez sur la touche PROG STEP pour confirmer le numéro du cycle désiré. L'écran affichera « In 01 ».
- Appuyez sur la touche PUMP et START/STOP pour sélectionner le numéro de l'intervalle désiré.
- Appuyez sur la touche PROG STEP pour confirmer le numéro de l'intervalle désiré. Surveillez l'indicateur lumineux situé sur le bouton RECALL.
  - L'indicateur est éteint : il n'y a aucune donnée pour l'intervalle, cycle, mesure spécifiés.

- L'indicateur est allumé : l'écran affiche les données pour l'intervalle demandé.
  - Pour aller à l'intervalle suivant, appuyez sur PROG STEP
  - Appuyer sur la touche STATUS affiche les numéros de la mesure, cycle et intervalle.
- Appuyez sur la touche RECALL pour quitter le mode RECALL.

### **CALCULS**

Un estimé de la quantité de radon dans le sol peut être obtenu à l'aide de l'équation suivante :

