

Exemple d'approche pluridisciplinaire dans la caractérisation d'eaux thermales carbo-gazeuses

A pluridisciplinary approach to carbonic and groundwater survey

J.C. GRILLOT(1), M. SCHOELLER(2)

RÉSUMÉ

Une approche pluridisciplinaire est menée à propos d'eaux souterraines carbo-gazeuses : au niveau des relations entre tectonique active et hydrothermalisme ; sur les origines des composants aqueux et gazeux (CO_2) par analyse de compositions isotopiques (^2H , ^{18}O , ^3H et ^{13}C) et mises en équation des équilibres carboniques.

Trois exemples sont traités dans le Sud-Est de la France : le premier en région de socle métamorphique (émergence thermique chaude) ; les deux autres en domaine de couverture carbonatée épaisse (source karstique littorale froide et aquifère karstique peu profond).

La complémentarité des informations acquises permet de préciser d'une part, le rôle de certaines directions fissurales dans les cheminements souterrains par rapport au contexte sismotectonique régional ; d'autre part, la genèse des eaux et leur âge relatif ; enfin l'origine du CO_2 qui peut se révéler mixte (biogénique-mantellique) ou infracrustal.

Se dégage de la sorte une méthodologie d'étude de ces eaux particulières qui mérite d'être plus largement développée.

(1) Laboratoire d'Hydrogéologie, UA CNRS 1359, Université des Sciences et Techniques du Languedoc, 34060 Montpellier Cedex, France.

(2) Centre d'Hydrogéologie, Université de Bordeaux I, Avenue des Facultés, 33405 Talence Cédex, FRANCE.

Mots clés : *géothermalisme carbo-gazeux, sismotectonique, tectonique cassante, néotectonique, hydrochimie isotopique, équilibres carboniques, France.*

SUMMARY

Comparison of fissural, isotopic and hydrochemical data constitutes an approach to Geothermal phenomena which has several consequences. The examples which are given are taken from a present regional tectonic context which is characteristic of a drawing close of the African and the European plates. Its maximum horizontal stress is of a N-S SE trend. Consequently the fissural trends EW to ENE - NSW existing on the three areas under survey would play no major role in groundwater flows and rising of deep C.O. Such a significant role would be probably played by the joining of NS to NW trends, which at present act in extension (N-S fractures) or with transverse movements.

They are found either at the gaseous and carbonic outlets (bare basement) or in the neighbourhood of these outlets (less than 300 m distant) located in the covering (thickness 300 m). It can thus be assumed that the fissuration is at present continuous between the covering and the basement in the N-S direction. This assumption is in agreement with the present stress field and the associated deformations. So all these data make it possible to emphasize on one hand the role of some fractural directions in groundwater flow according to the regional sismotectonic context, on the other the origins of the waters as well as their relative ages and lastly the origin of the CO₂ which can be mixed (biogenic and from the mantle) or infracrustal. Such an approach has several consequences connected with :

- 1) geothermal phenomena : the water temperature and the survey of the hydrothermal flows can be considered as a preliminary survey for deep local hydraulic investigation,
- 2) seismic risks : the fact that the dissolved gas (i.e. CO₂) derives its origin from the mantle is an indicator of such risks,
- 3) The survey of deep geological accidents in particular within deep sedimentary cover : a methodology for the study of this particular type of waters which can efficiently be applied elsewhere is thus created.

Key-words : *carbonic and gaseous geothermal, neotectonics, isotopic, hydrochemistry, carbonic equilibrium, France.*

INTRODUCTION

Selon une récente mise au point (MAISONNEUVE et RISLER, 1979), reprise par DAZY *et al.*, (1984), le terme carbo-gazeux s'applique à "des eaux à

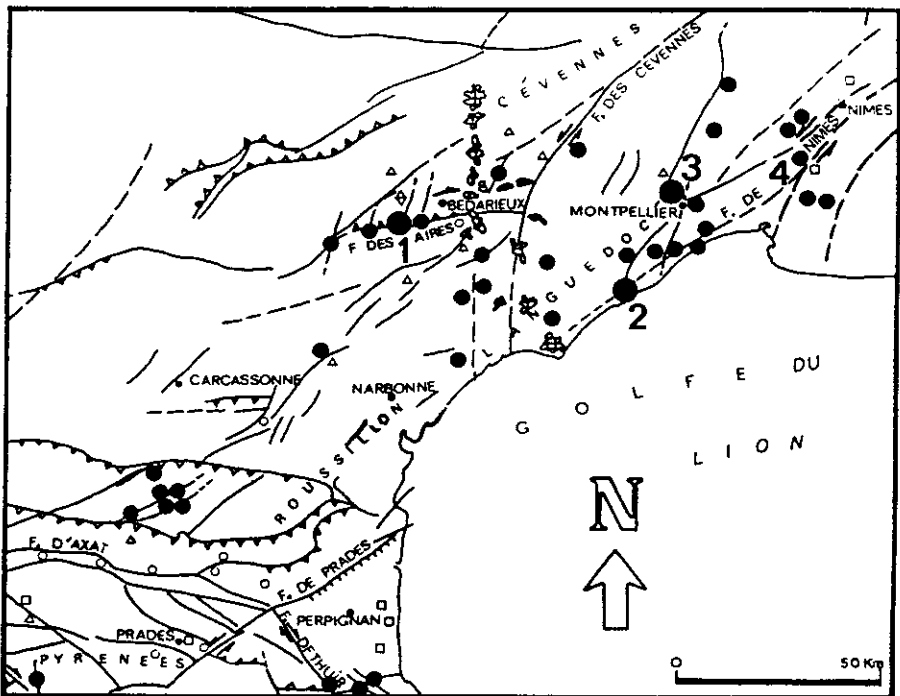
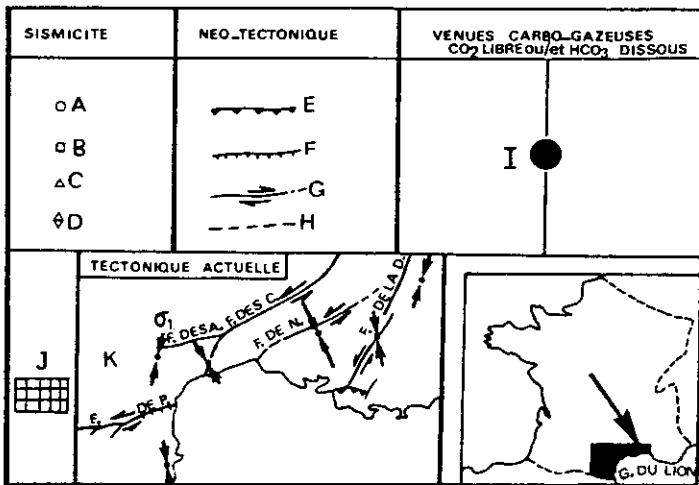
CO₂ libre en excès ou à teneur en HCO₃⁻, largement supérieures à la quantité dissoute d'environ 300 mg.l⁻¹ pour une eau vadoses saturée en carbonate de Ca dans la traversée d'un massif calcaire". Il y a lieu cependant d'expliciter cette citation. En effet, en dehors des émergences présentant un dégagement visible de CO₂, il existe des eaux dont les teneurs en carbonates sont telles qu'il est nécessaire de faire intervenir des pressions partielles de CO₂ dépassant très largement les valeurs habituelles des sols (présence de CO₂ anormale). Ainsi, la valeur de 300 mg.l⁻¹ est un ordre de grandeur qui s'applique certes aux eaux karstiques des régions méditerranéennes, mais il ne saurait être un seuil universel car des facteurs interdépendants tels que la température (altitude), le régime pluviométrique et le pH influent sur les variations de concentration en carbonates. De plus, le degré de karstification d'un massif calcaire (perméabilité du réservoir) et la nature des roches (composition, texture) jouent en partie sur les vitesses de circulations souterraines et corrélativement sur les quantités de carbonates mis en solution. C'est pourquoi, l'attribution du caractère carbo-gazeux fondé sur des concentrations anormales en carbonates ne peut être envisagée qu'après avoir identifié les réservoirs aquifères, pris connaissance de leurs conditions aux limites et de leur fonctionnement (DROGUE *et al.*, 1983).

C'est dans le cadre de cette recherche systématique opérée dans la couverture sédimentaire du SE de la France qu'un inventaire des eaux carbo-gazeuses, pour la plupart thermominérales selon la classification de H. SCHOELLER (1949), a été réalisé (fig. 1). Cette reconnaissance a couvert une superficie d'environ 4.10⁴ km², s'étendant de l'extrémité orientale de la chaîne pyrénéenne (Roussillon), jusqu'aux structures externes de l'Arc alpin, bassin rhodanien et région Provence-Côte d'Azur compris (GRILLOT *et al.*, 1983 ; YERRIAH-MASSON, 1986). Concernant les teneurs en carbonates, celles-ci, après une analyse systématique spatiale et temporelle, se sont avérées normales pour des concentrations inférieures à 450 mg.l⁻¹ dans les karsts des massifs pyrénéens et sub-alpins ; inférieures à 550 mg.l⁻¹ dans l'Urgonien du bassin rhodanien et les karsts de plaine (jurassico-crétacés) du Languedoc.

MÉTHODES

On sait qu'il existe un lien étroit entre tectonique cassante polyphasée et hydrothermalisme (GIBERT *et al.*, 1975 ; DAZY et GRILLOT, 1981-1982 ; GRILLOT et DAZY, 1983). Dans ce lien, la tectonique actuelle et l'histoire néotectonique influent sur la position des émergences (GRILLOT et DROGUE, 1986 ; GASTIL et BERTINE, 1986) comme sur certaines caractéristiques hydrogéochimiques telles que radioactivité (ULOMOV, 1968 ; SADOVSKY *et al.*, 1972 ; RÉMY et PELLERIN, 1982 ; ODDOU *et al.*, 1983) et dégagement de CO₂ (GRILLOT *et al.*, 1983). C'est pourquoi dans un deuxième temps, le géothermalisme carbo-gazeux a été abordé dans le cadre structural du SE de la France (fig. 1), relativement bien connu actuellement (PHILIP et TAPPONNIER, 1976 ; PHILIP, 1980 ; BOUSQUET et PHILIP, 1980 ; WEBER *et al.*, 1980 ; PHILIP, 1983 ; COMBES, 1984).

On est aussi en mesure de discuter les origines des composants aqueux et gazeux grâce aux isotopes (CRAIG, 1963 ; FONTES *et al.*, 1963). Ainsi, par les données en ³H, ²H et ¹⁸O, on peut déceler des mélanges entre



apports vadoses récents, plus ou moins froids, et eaux chaudes magmatiques ou météoriques anciennes et réchauffées au cours de leur trajet en profondeur (BAUBRON *et al.*, 1978) ; par les isotopes du carbone (¹³C), un dégagement de CO₂ mantellique (TAYLOR *et al.*, 1967 ; SCHOELL and STAHL, 1972 ; BATARD *et al.*, 1979a-b et 1982 BLAVOUX *et al.*, 1982), ou essentiellement lié à l'activité biologique des sols (PELIKAN, 1968), ou encore résultant de la décomposition à moyenne et grande profondeur des roches par thermodécarbonatation (MUFFLER and WHITE, 1968 ; IVANOV *et al.*, 1968). Evidemment, on doit tenir compte des mélanges possibles entre

Figure 1.- Cadre sismotectonique des venues carbo-gazeuses.

Figure 1.- Seismotectonics framework of the gaseous and carbonic comings.

- sismicité (sans distinction d'intensité épacentrale et de magnitude) :
A : épacentres précis ; B : détermination douteuse ; C : données instrumentales ; D : confrontation instrumentale-macroscopique ;
 - néotectonique avec :
E : chevauchement ; F : faille normale ; G : décrochement ;
H : discontinuité géophysique ;
 - venues carbo-gazeuses (I) ;
 - volcanisme alcalin plio-quadernaire de type fissural (J) ;
 - directions de la contrainte horizontale maximale actuelle (K) ;
- 1, 2 et 3 : sites testés ; 4 : "source" Perrier.
- Seismic activity (without separating epicentral intensity and magnitude) :
A : precise epicenters ; B : doubtful determination ; C : instrumental data ; D : instrumental and macroscopic comparison ;
 - Neotectonics with :
E : overlap ; F : normal fault ; G : strike-slip fault ;
H : geophysical discontinuity ;
 - Gaseous and carbonic comings (I) ;
 - Plio-quadernary alkaline volcanism of fissural type (J) ;
 - Directions of the present maximum horizontal stress (K) ;
- 1, 2, 3 : studied areas ; 4 : "Perrier" Spring.

différents CO₂ et d'éventuels échanges en présence par exemple de couches charbonneuses, tourbe ... (BLAVOUX *et al.*, 1982). C'est en troisième lieu par ces méthodes que la genèse des eaux et l'origine du CO₂ ont été recherchées, en retenant différents sites selon leur cadre structural actuel (1, 2 et 3, fig. 1). Par ailleurs, ces méthodes d'analyse ont été confrontées aux équations des équilibres carboniques qui ont déjà montré leur intérêt dans la détermination des origines profondes ou/et superficielles des circulations (SCHOELLER, 1955, 1962, 1969 et 1980). Enfin, dans le but de limiter au maximum les "bruits de fond" dus au CO₂ ambiant

(ATKINSON, 1977) et organique (PELIKAN, 1968), les prélèvements (pour le CO₂ libre, le gaz est prélevé sur le terrain dans une ampoule à vide puis analysé directement au spectromètre de masse. Pour le CO₂ dissous et les carbonates, les échantillons d'eau sont traités au Cl₂ Ba ; le précipité deshydraté est mis en présence d'acide phosphorique et le CO₂ dégazé sous vide est analysé au spectromètre de masse) ont été effectués à l'étiage hivernal (BATARD *et al.*, 1979a).

C'est en s'appuyant conjointement sur toutes ces approches que les trois exemples du Sud-Est de la France ont été choisis dans le double objectif suivant : d'une part apporter des précisions sur les origines des composants aqueux et gazeux ; d'autre part explorer les perspectives d'une méthodologie d'étude du géothermalisme carbo-gazeux.

TECTONIQUE ET EAUX CARBO-GAZEUSES

A partir de la synthèse cartographique réalisée (fig.1), certaines caractéristiques marquantes du SE de la France apparaissent :

- le volcanisme alcalin plio-quaternaire du Bas-Languedoc (- 700 000 ans), de type fissural sensiblement subméridien, ne semble pas peser fortement sur la distribution actuelle de l'hydrothermalisme carbo-gazeux. L'association des deux phénomènes n'aurait donc pas conservé ici une pérennité temporelle (MAISONNEUVE et RISCLER, 1979), bien que seule une tectonique en distension ait pu conjointement provoquer un dégagement de gaz volcanique provenant du manteau et une montée des magmas basaltiques. Autrement dit, si les deux manifestations résultent d'une même cause, elles peuvent se dissocier ensuite, plus ou moins rapidement, dans l'espace et dans le temps. A ce propos, il semble utile de généraliser les observations sur cet aspect du volcanisme récent et actuel si l'on veut mieux cerner l'évolution de ces relations (études en cours) ;
- deux domaines carbo-gazeux essentiels s'individualisent dans ce bassin : l'un en bordure nord de la zone axiale pyrénéenne (seule cette partie orientale de la chaîne présente nettement de telles manifestations) ; l'autre selon un axe orienté NE-SW allant du Languedoc méditerranéen à la bordure alpine. En contre partie, l'arc alpin proprement dit, y compris ses abords méridionaux (Provence-Côte d'Azur), est pratiquement dépourvu de tels phénomènes. Ceci confirme que dans le SE de la France s'amorce une "ceinture" péri-alpine carbo-gazeuse (MAISONNEUVE et RISLER, 1979), qui par ailleurs se développe plus largement en Europe occidentale jusque dans les Sudètes tchécoslovaques et polonaises (KAGURA *et al.*, 1968 ; TEISSEYRE, 1968 ; PACES, 1972) ;
- sur la bordure pyrénéenne, les venues se localisent près d'intersections entre accidents E-W et fractures soit subparallèles à la faille de Prades (normale-décrochante sénestre), soit orientées NNW-SSE (faille de Thuir décrochante dextre et ses satellites). Or, le fonctionnement sismotectonique actuel de cette région montre que les failles E-W ont un jeu inverse (alignement d'épicentres sismiques sur la faille d'Axat), associé parfois à du plissement et à des jeux cisailants sur fractures NE-SW et NW-SE (BOUSQUET et PHILIP, 1980). Autrement dit, sismotectonique et hydrothermalisme carbo-gazeux soulignent ensemble l'importance de ces décrochements conjugués qui, de

plus, interviennent dans la distribution de la sismicité à l'échelle pyrénéenne (WEBER *et al.*, 1980) ;

- du Languedoc à la bordure alpine, les venues carbo-gazeuses se répartissent nettement dans un couloir formé par deux lignes de fractures orientées NE-SW (failles des Cévennes et de Nîmes). Ces discontinuités ont une longue histoire tectonique (PHILIP, 1983), marquée par de multiples rejeux successifs depuis l'époque tardi-hercynienne (ARTHAUD et MATTE, 1975 ; BAUDRIMONT et DUBOIS, 1977). En revanche, les émergences sont quasiment inexistantes en Provence-Côte d'Azur, en particulier le long du grand faisceau de failles de la Durance (une seule venue), dont l'histoire tectonique est pourtant aussi complexe (COMBES, 1984). Certaines venues (région sud de Montpellier) semblent proches de la faille de Nîmes ou de ses prolongements occidentaux le long du littoral. Mais les données de terrain montrent qu'elles ne s'alignent pas exactement sur ces fractures (exemple 2, fig. 1). En fait, dans cette région, elles se localisent près de l'intersection entre accidents N-S et E-W, les premiers ayant actuellement un jeu normal associé à des mouvements décrochants dextres sur fractures NW-SE (BOUSQUET et PHILIP, 1980 ; GRILLOT *et al.*, 1983). Dans le bassin rhodanien et dans la zone subalpine occidentale, elles apparaissent plutôt liées soit à des structures décrochantes sénestres actuelles N-S à NE-SW, soit à des accidents conjugués cisailants NW-SE dextres et NE-SW sénestres (DAZY et GRILLOT, 1981-1982 ; GRILLOT et DAZY, 1983). Or, dans ces régions, la corrélation entre néotectonique et sismicité montre que l'activité sismique tend à privilégier des mouvements selon les grands couloirs décrochants NNE-SSW et NW-SE, obliques à l'Arc alpin (WEBER *et al.*, 1980). Ainsi, sismotectonique et hydrothermalisme carbo-gazeux soulignent ici encore l'importance de structures cassantes qui, fait remarquable, présentent sensiblement les mêmes orientations que dans le domaine pyrénéo-languedocien (GRILLOT, 1982).

En résumé, on peut avancer que des Pyrénées orientales à la chaîne alpine les accidents cassants subméridiens, NE-SW et NW-SE, dont la distribution spatiale et l'importance régionale ont commandé l'évolution paléogéographique du bassin mésogéen pyrénéo-provençal (BAUDRIMONT et DUBOIS, 1977), ont un rôle prépondérant dans la répartition actuelle des venues carbo-gazeuses. Toutefois, le long de grandes failles cette relation est imprécise (pas de concordance géographique dans la plupart des cas) et l'origine du CO₂ est inconnue à ce stade d'étude. C'est pourquoi d'autres informations, telles que les données isotopiques, sont nécessaires afin de mieux appréhender cette distribution. Or dans le Languedoc méditerranéen, la couverture sédimentaire post-triasique aquifère à plusieurs niveaux (karsts jurassico-crétacés et tertiaires ; nappes des formations plio-quadernaires), masque le socle hercynien cristallophyllien. Dans l'hypothèse où deux des plus grandes failles régionales proches des venues carbo-gazeuses (Cévennes et Nîmes) seraient nourricières en CO₂ profond, on sait que des eaux chargées en CO₂ dissous venant du socle, et qui pénètrent par ascendance dans des assises perméables, peuvent largement diffuser dans les réservoirs carbonatés par phénomène autocurant (MAISONNEUVE et RISLER, 1979).

De cette diffusion pourrait ainsi résulter une dispersion des montées en surface de CO₂ ce qu'illustrerait, par exemple, la répartition de la plupart des émergences en dehors du faisceau des failles cévenoles. En outre ces processus, s'ils existent, pourraient avoir plusieurs conséquences hydrogéochimiques : des mélanges entre eaux froides vadoses ou juvéniles réchauffées en profondeur (circulations dans le socle hercynien) ; une remontée en surface, tout au moins partielle, de CO₂ mantellique ou/et de thermodécarbonatation profonde.

C'est en s'appuyant sur des analyses isotopiques du complexe eau-gaz (inédites), que de telles hypothèses ont été avancées (AVIAS, 1980) dans une recherche sur la genèse des eaux carbo-gazeuses de la "source" très prisée de Perrier (4 fig. 1).

APPLICATION

L'approche nécessitant, nous l'avons vu, une bonne connaissance de la sismogénèse actuelle du domaine et du contexte pétrographique de chacun des sites choisis, ceux-ci doivent être au préalable replacés dans leur environnement géologique :

Il s'agit tout d'abord d'une venue chaude (52 ± 2 °C) du complexe thermal de Lamalou (1, fig. 1), qui sourd à la faveur d'une fracture subméridienne intra socle métamorphique (micaschistes cambriens et schistes siluriens) recoupant un accident sensiblement E-W à jeu récent inverse-décrochant dextre.

D'une source du littoral méditerranéen (2, fig. 1), froide (19.6 ± 0.5 °C), qui correspond à une exsurgence apparemment classique d'un massif karstique (source Font-Forte). Cette émergence est située sur une fracture méridienne et près d'une discontinuité détectée par géophysique (direction ENE-WSW) qui, bien que peu visible en surface, correspond à un prolongement occidental d'une grande faille régionale (accident de Nîmes). Cette faille présente des indices de mouvement récent en décrochement sénestre, à proximité de laquelle d'ailleurs se situent les champs de captage des eaux carbo-gazeuses de Perrier (4 fig. 1).

Enfin d'un forage captant à 75 m de profondeur l'aquifère jurassique d'une structure chevauchante d'âge Eocène supérieur (3, fig. 1). Cet ouvrage se situe à proximité immédiate d'un accident orienté ENE-WSW et à moins de 300 m d'une faille (décrochante) N20. La température des eaux souterraines y fluctue dans l'année entre 16.5 et 21.5 °C, celle de l'air (moyenne annuelle) étant de 13.5 °C.

RÉSULTATS ISOTOPIQUES

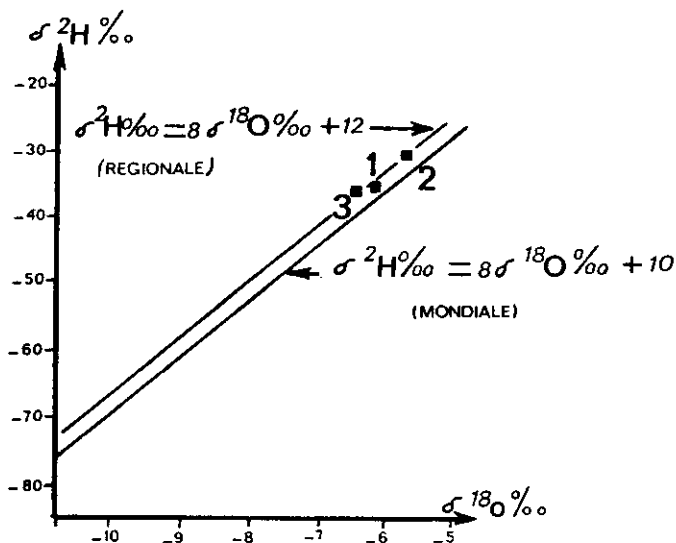
La relation $^2\text{H}-^{18}\text{O}$ établie pour les trois sites (tableau 1 et fig. 2) montre que les valeurs s'organisent convenablement entre les droites de précipitations mondiales (CRAIG, 1961 ; DANSGAARD, 1964) et régionales (BLAVOUX et BERTHIER, 1985). Ces eaux ont donc toutes une origine météorique et non magmatique (TAYLOR, 1974). Les teneurs en tritium caractérisent trois types d'eaux :

- sur le site 1 (Lamalou), les valeurs inférieures à 4 UT attestant d'un âge antérieur aux premiers essais nucléaires dans l'atmosphère de 1952 (PONTES, 1978) ;

Tableau 1.- Données isotopiques.

Table 1.- Isotopic data.

n° éch.	³ H UT ± 1 janv. 86	² H vs SMOW ‰	¹⁸ O vs SMOW ‰	¹³ C _{CO₂} gaz PDB	¹³ C _{CO₂} aq ‰ PDB	¹³ C _{HCO₃⁻} ‰ PDB	T. °C eau	Alt. (m)
1	4	- 35.1 ± 0.5	- 6.2 ± 0.1	- 5.1 ± 0.1	- 5.7 ± 0.1	+ 0.8 ± 0.1	52 ± 2	225
2	11	- 31.2 ± 0.5	- 5.7 ± 0.1	- 10.7 ± 0.1	- 10.9 ± 0.1	- 1.3 ± 0.1	19.6 ± 0.5	1
3	19	- 35.4 ± 0.5	- 6.4 ± 0.1	NON MESURE	- 15.9 ± 0.1	- 6.5 ± 0.1	16.5 - 21.5	50

Figure 2.- Relation $^2\text{H} - ^{18}\text{O}$ en fonction des droites de précipitations.Figure 2.- Relations between $^2\text{H} - ^{18}\text{O}$ according to Rainfall lines.

- à l'émergence karstique (2), les teneurs en tritium (11 UT) sont d'une part plus faibles que celles des précipitations actuelles du littoral marin français (< 25 UT) ; d'autre part supérieures à celles des eaux marines (< 5 UT). En outre la salinité y est élevée ($\text{Cl}^- = 1\,065\text{ mg.l}^{-1}$, $\text{Na}^+ = 690\text{ mg.l}^{-1}$). Ces deux données vont dans le sens d'un modèle de fonctionnement qui a déjà été proposé et selon lequel la source libre par intermittence des eaux de mélange entre apports karstiques vadose et remontées salines en provenance, de plus ou moins grande profondeur, du biseau salé (DROGUE and BIDAUX, 1986 ; GRILLOT et YERRIAH-MASSON, 1986). Cette origine partiellement saline est appuyée d'ailleurs par des concentrations élevées en SO_4^{2-} pour des eaux karstiques régionales (200 mg.l^{-1}), qui sont proches de celles des lagunes saumâtres côtières voisines. ;
- sur le site 3 (forage) les teneurs en tritium (19 UT) sont voisines de celles des précipitations atmosphériques actuelles (25 UT). Il s'agit par conséquent d'eaux relativement récentes (postérieures à 1953).

En ce qui concerne les teneurs en ^{13}C du CO_2 libre, dissous et des carbonates en solution dans des eaux minérales carbo-gazeuses, ces données peuvent apporter des informations essentielles sur l'origine du carbone (BAUBRON *et al.*, 1978 ; BATARD *et al.*, 1982 ; BLAVOUX *et al.*, 1982). En se référant à différents auteurs dont les conclusions sont généralement admises (CRAIG, 1961 ; TAYLOR *et al.*, 1967 ; SCHOELL and STAHL, 1972 ; MAISONNEUVE et RISLER, 1974), les valeurs en ^{13}C pour le CO_2 libre comprises entre - 4 et - 8 ‰ caractérisent une origine magmatique de ce gaz ; inférieures à - 12 ‰ une origine partiellement biogénique, étant entendu que dans nos régions ce pôle est prépondérant pour les valeurs se situant vers - 23 ‰ (DEINES, 1980) ; supérieures à - 2 ‰ une provenance liée au métamorphique thermique des carbonates en profondeur.

Pour ce qui concerne le ^{13}C des carbonates on peut considérer en première approche que les valeurs inférieures à - 10 ‰ indiquent un pôle plutôt biogénique ; nettement mantellique ou métamorphique profond au-dessus de - 2 ‰. Bien évidemment, une interprétation plus rigoureuse du ^{13}C de la phase liquide dans le cadre d'un suivi hydrochimique temporel, non abordé ici, devrait prendre en compte le pH de la solution et être accompagnée d'une hypothèse sur le système de minéralisation ouvert ou fermé (DEVER, 1985).

Dans les trois exemples considérés à l'étiage hivernal 1985-86 (fig.3), les compositions en ^{13}C des carbonates, de CO_2 dissous et pour deux échantillons du CO_2 libre, font apparaître sur le diagramme du système carbonique $\text{CO}_2 - \text{HCO}_3^-$ (MUFFLER and WHITE, 1968 ; SCHOELL and STAHL, 1972 ; MERCIER-BATARD et RISLER, 1982 ; BLAVOUX *et al.*, 1982 ; BLAVOUX et BERTHIER, 1985), soit une origine mantellique de l'anhydride carbonique ou/et du carbone des carbonates (1 et 2, fig. 1), soit mixte (3, fig. 1) c'est-à-dire biogénique - infracrustal.

ÉQUILIBRES CARBONIQUES

L'équilibre carbonique dans les eaux souterraines est réglé par différentes équations, les concentrations étant exprimées en activités (avec K constante thermodynamique de dissociation) :

$$\frac{\langle \text{H}_2\text{CO}_3 \rangle}{\langle \text{CO}_2 \rangle_{\text{gaz}}} = K_{\text{CO}_2} ; \quad \frac{\langle \text{H}^+ \rangle \langle \text{HCO}_3^- \rangle}{\langle \text{H}_2\text{CO}_3 \rangle} = K_1 \quad \frac{\langle \text{H}^+ \rangle \langle \text{CO}_3^{--} \rangle}{\langle \text{HCO}_3^- \rangle} = K_2$$

Si l'aquifère est essentiellement de composition carbonaté, il faut tenir compte d'une autre constante de dissociation (K_c) donnée par l'expression :

$$\langle \text{Ca}^{++} \rangle \langle \text{CO}_3^{--} \rangle = K_c$$

Quant à la concentration totale en CO_2 dans l'eau (ϵCO_2 total), elle est donnée par (les valeurs étant exprimées en moles l^{-1}) :

$$\epsilon \text{CO}_2 \text{ total} = [\text{H}_2\text{CO}_3 \text{ ou } \text{CO}_2 \text{ libre total}] + [\text{HCO}_3^-] + [\text{CO}_3^{--}]$$

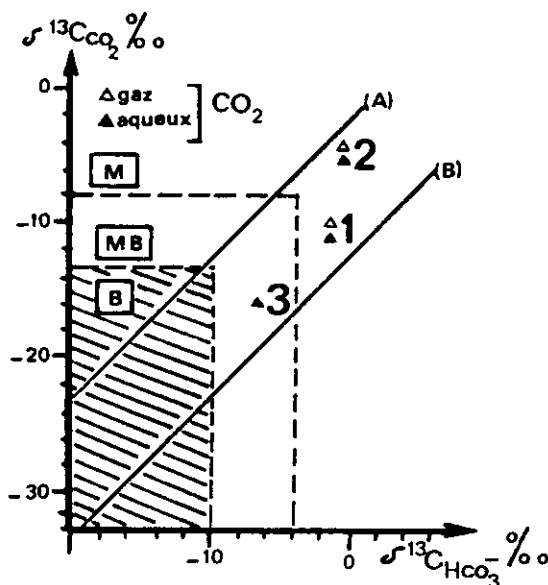


Figure 3.- Diagramme du système carbonique $\text{CO}_2 - \text{HCO}_3^-$.

Figure 3.- Diagram of the carbonic system $\text{CO}_2 - \text{HCO}_3^-$.

(A) : droite de fractionnement du système $\text{CO}_2 \text{ gaz} \rightleftharpoons \text{HCO}_3^- \text{ aq.}$ à 80°C ;
 (B) : droite $\text{CO}_2 \text{ dissous} \rightleftharpoons \text{HCO}_3^- \text{ aq.}$ à 0°C ;
 B : CO_2 biogénique ; M : mantellique ; MB : mixte.

(A) : line of cracking of the system $\text{CO}_2 \text{ gaz} \rightleftharpoons \text{HCO}_3^- \text{ liquid}$ at 80°C ;
 (B) : line dissolved $\text{CO}_2 \rightleftharpoons \text{HCO}_3^- \text{ liquid}$ at 0°C ;
 B : Biogenic CO_2 ; M : from Mantle ; MB : mixed.

Les eaux souterraines "normales" (non contaminées par les incidences endogènes profondes) et qui circulent dans des aquifères sableux, calcaires, dolomitiques, calciques non carbonatés ou silicatés en relation avec le seul CO_2 provenant de l'atmosphère, ont un ϵCO_2 lié à la pression partielle de ce CO_2 ($p\text{CO}_2$, selon SCHOELLER, 1962, 1969, 1980). C'est ainsi qu'une statistique effectuée sur une trentaine d'échantillons d'eaux souterraines vadoses prises en France donne les valeurs maxima exprimées sur le tableau 2.

Cependant, il y a lieu de tenir compte, à côté du CO_2 de l'atmosphère du sol, du CO_2 d'origine endogène (métamorphisme des roches carbonatées émanations mantelliques, contamination organique par les hydrocarbures, la tourbe ...). C'est pourquoi ces différents CO_2 doivent s'ajouter éventuellement au CO_2 d'une eau souterraine normale, ce qui implique encore une fois une bonne connaissance des réservoirs, en particulier de leurs conditions aux limites. A partir de là, toute valeur du ϵCO_2 , HCO_3^- , CO_3^{--} , H_2CO_3 et pression partielle de CO_2 supérieure à celles qui sont données dans le tableau 2 indiquera une origine profonde, soit en totalité soit en partie.

Tableau 2.- Valeurs statistiques des équilibres carboniques
(eaux vadoses, France).

Table 2.- Statistical values of carbonic balances
(vadose waters, France).

$\epsilon \text{ CO}_2$ (10^{-3} moles L^{-1})	HCO_3^- (10^{-3} moles L^{-1})	CO_3^{--} (10^{-3} moles L^{-1})	$\text{H}_2 \text{ CO}_3$ (10^{-3} moles L^{-1})	P (atmosphère)
12	7 - 4(1)	0 (pH < 8.3)	6	0.1

(1) terrains silicatés cristallins (granites, gneiss, quartzites...).

(1) crystalline and silicated terrains (granite, gneiss, quartzite...).

En ce qui concerne les trois sites pris en exemple, ces concentrations sont regroupées sous forme synthétique (tableau 3) : les valeurs en HCO_3^- , CO_3^{--} , CO_2 libre et pH sont issues des analyses chimiques ; les pressions partielles (P_1 et P_2) ont été calculées par différentes équations (JACOBSON et LANGMUIR, 1974) avec K_{CO_2} et K_1 : constantes thermodynamiques ; γ_{CO_2} et γ_1 : facteurs d'activités ; T : température de l'eau ($^\circ\text{C}$) (programme Watspec*).

$$P_1 = [\text{CO}_2] \text{ dissous} / K_{\text{CO}_2} \cdot \gamma_{\text{CO}_2} \quad ([\text{CO}_2] \text{ dissous mesuré par titrage avec NaOH N/50})$$

$$[\text{CO}_2]_1 \text{ dissous} = [\text{HCO}_3^-] < \text{H}^+ > / K_1 \cdot \gamma_1 \quad ([\text{HCO}_3^-] \text{ mesuré par titrage avec H}_2\text{SO}_4 \text{ N/50 et H}^+ \text{ au pHmètre électronique})$$

$$P_2 = [\text{CO}_2]_1 \text{ dissous} / K_{\text{CO}_2} \cdot \gamma_{\text{CO}_2}$$

$$\text{Log } K_{\text{CO}_2} = -13.417 + \frac{2299.6}{(T + 273.15)} + 0.01422 (T + 273.15)$$

$$\text{Log } K_1 = 14.8435 - \frac{3404.71}{(T + 273.15)} - 0.03279 (T + 273.15)$$

L'examen comparatif entre les tableaux 2 et 3 montre que sur les trois sites les eaux présentent du CO_2 d'origine non vadose (en totalité ou en partie). En effet, les pressions partielles, CO_2 et HCO_3^- , sont largement supérieures aux valeurs courantes des eaux superficielles sur les sites 1 et 2 (CO_2 profond) ; à titre moindre mais significatif, sur le site 3, d'un CO_2 d'origine mixte (biogénique - profond).

* Watspec : Centre d'Hydrogéologie, Univ. Bordeaux 1, 33405 Talence Cédex, France.

Tableau 3.- Valeurs des équilibres carboniques sur les trois sites.
 Table 3.- Values of carbonic balances over the 3 areas.

n° éch. (10 ⁻³ m.L ⁻¹)	ε CO ₂ (10 ⁻³ m.L ⁻¹)	HCO ₃ ⁻ (10 ⁻³ m.L ⁻¹)	CO ₃ ⁻⁻ (10 ⁻³ m.L ⁻¹)	H ₂ CO ₃ (10 ⁻³ m.L ⁻¹)	P ₁ atmosphère	P ₂ atmosphère	pH	K _{CO₂}	γ _{CO₂}	K ₁	γ ₁
1	36.1	29.3	0	6.8	0.338	0.471	6.70	0.0201	1	5.14 ± 10 ⁻⁷	0.837
2	36.5	19.46	0	17.0	0.425	0.763	6.12	0.0397	1	4.12 ± 10 ⁻⁷	0.845
3	13.5	9.62	0	3.91	0.104	0.138	6.60	0.0375	1	4.24 ± 10 ⁻⁷	0.876

ou CO₂ libre

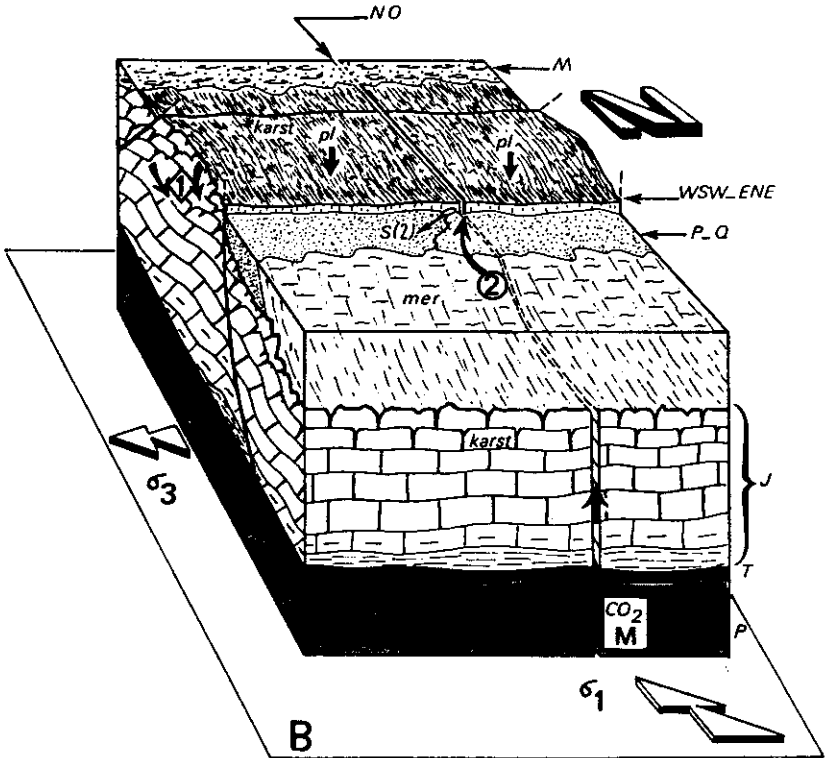
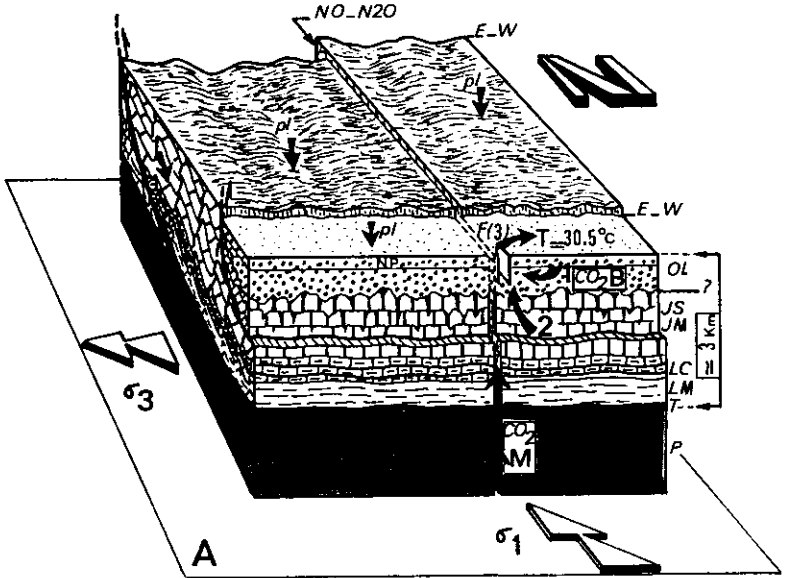


Figure 4.- Tectonique actuelle et géothermalisme carbo-gazeux.

Figure 4.- Gaseous and carbonic geothermal phenomena and recent tectonics.

(σ_1 contrainte horizontale maximale ; σ_3 minimale).

A : exemple de l'aquifère oligocène (OL). Captage par forage (3, fig. 1) d'eaux météoriques (P1 : pluies) récentes contaminées par du CO₂ superficiel (CO₂ B : biogénique), et mantellique (CO₂ M) remontant le long d'une fracturation subméridienne.

JS-JM : Jurassique karstifié (supérieur et moyen) ;

LC-LM : Lias calcaire et marneux ; T : Trias ; P : Paléozoïque.

B : Exemple du karst littoral. Exutoire naturel (2, fig. 1) d'eaux météoriques caractérisées par des mélanges entre (1) eaux récentes karstiques (CO₂ biogénique) et (2) remontées salines, avec apport de CO₂ infracrustal (M) par fracturation subméridienne.

P-Q : Plio-Quaternaire ; M : Miocène.

(σ_1 maximum horizontal stress ; σ_3 minimum).

A : Example of the Oligocene aquifer (OL). Borehole topping (3, fig. 1) of recent meteoric waters (P1 : precipitations) contaminated by superficial CO₂ (CO₂ B : Biogenic) and CO₂ from the mantle (CO₂ M) rising up along a submeridian fracturing.

JS-JM : karstified upper and middle Jurassic ;

LC-LM : marly and calcareous Lias ; T : Trias ; P : Paleozoic.

B : Example of the littoral karst. Natural outlet (2, fig. 1) of meteoric waters characterized by mixing between recent karstic waters (biogenic CO₂) and (2) brine waters uprisings providing infracrustal CO₂ (M) along a submeridian fracturing.

P-Q : Plio-Quaternary ; M : Miocene.

SYNTHÈSE ET CONCLUSIONS

La confrontation de données structurales isotopiques et hydrochimiques (équilibres carboniques) conduit à une approche du géothermalisme aux conséquences diverses : les exemples traités appartiennent à un contexte tectonique régional actuel qui caractérise le rapprochement entre les plaques africaine et européenne, et dont la contrainte horizontale maximale (σ_1) est orientée N-S à NW-SE (PHILIP, 1983). Il est donc peu probable que les failles de direction E-W à ENE-WSW, décelées sur les trois sites, aient une incidence sur les circulations souterraines et sur les remontées de CO₂ d'origine profonde. Ce rôle est joué par contre très vraisemblablement par les joints méridiens à NW-SE, ceux-ci bénéficiant actuellement de mouvements en extension (fractures N-S) ou en décrochement (accidents NW-SE). Or on constate sur le terrain que ces joints sont toujours présents, soit à proximité immédiate des venues carbo-gazeuses lorsque la couverture méso-cénozoïque est absente (site 1), soit à une distance relativement faible (inférieure à 300 m) comparée à

l'épaisseur de cette couverture qui dépasse 3 000 m (sites 2 et 3). C'est pourquoi on peut considérer que la dispersion sur un circuit ascendant des émanations carboniques est minime dans les trois sites, par rapport à une fracturation subméridienne. Ceci laisse entendre qu'il existe une continuité fissurale entre socle et couverture dans cette direction (GRILLOT et YERRIAH-MASSON, 1986), idée tout à fait compatible avec le champ de contrainte actuel (fig. 4). De plus, certaines venues thermales du SE de la France sont radioactives avec présence excédentaire de ^{222}Rn (GRILLOT *et al.*, 1983) que l'on sait détecter et mesurer (ODDOU *et al.*, 1983 ; QUINIF *et al.*, 1984). Or, dans des conditions de déséquilibre entre ce gaz et le radium 234 dissous (RÉMY et PELLERIN, 1982), cette radioactivité est actuellement considérée comme un indice de sismicité potentielle (ULOMOV, 1968 ; SADOVSKY *et al.*, 1972). On peut entrevoir dès lors les perspectives induites par cette approche pluridisciplinaire des eaux thermales :

- d'ordre géothermique en considérant la température des eaux et l'identification des circuits hydrothermaux comme une reconnaissance préliminaire (GRILLOT et DROGUE, 1986) à des investigations hydrauliques profondes (BERGMAN and SACKL, 1985) ;
- relatives aux risques sismiques d'une région par la mise en évidence de propriétés indiciaires (CO_2 mantellique et dégagement de radon) sur certaines fractures ;
- appliquées aux recherches d'accidents géologiques profonds, en particulier dans les couvertures sédimentaires épaisses.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- ARTHAUD F., MATTE Ph. (1975). Les décrochements tardi-hercyniens du SW de l'Europe. Géométrie et essai de reconstitution des conditions de la déformation. *Tectonophysics*, 25: 139-171.
- ATKINSON T.C. (1977). Carbon dioxide in the atmosphere of the unsaturated zone : an important control of ground-water hardness in limestones. *J. Hydrology*, 35: 111-123.
- AVIAS J.V. (1980). Géologie et hydrogéologie de la "source" Perrier (Vergèze, France). *J. Fr. Hydrologie*, 11, (1, 31): 39-54.
- BATARD F., BILLET Chr., RISLER J.J. (1979a). Production de CO_2 d'origine profonde dans le Massif Central français. *Bull. BRGM, Orléans, Fr.*, III(2): 157-164.
- BATARD F., BOSCH B., DEGRANGES Ph., LELEU M., MARCE A., RISLER J.J. (1979b). Les gaz rares, une caractéristique des sources thermominérales du nord du Massif Central français. *C.R. Acad. Sci. Paris*, 288: 811-814.
- BATARD F., BAUBRON J.C., BOSCH B., MARCE A., RISLER J.J. (1982). Isotopic identification of gases of a deep origin in French Thermomineral waters. *J. of Hydrology*, 56: 1-21.
- BAUBRON J.C., BOSCH B., DEGRANGES Ph., HALFON J., LELEU M., MARCE A., SARCIA C. (1978). Recherches géochimiques sur les eaux thermales d'Amélie-les-Bains (Pyrénées orientales) et de Plombières-les-Bains (Vosges). *Intern. symp. on Isotope Hydrology, Neuhberg, I.A.E.A.-S.M.*, 228-29: 585-612.
- BAUDRIMONT A.F., DUBOIS P. (1977). Un bassin mésogéen du domaine périalpin : le sud-est de la France. *Bull. Centre Rech. Expl. - Prod. Elf-Aquit.*, ISSN0396-2687: 261-305.
- BLAVOUX B., DAZY J., SARROT-REYNAULD J. (1982). Information about the origin of thermomineral waters and gas by means of environmental isotopes in Eastern Azerbaijan, Iran, and Southeast France. *J. Hydrology*, 56: 23-38.

- BLAVOUX B., BERTHIER F. (1985). Les originalités hydrogéologique et technique des eaux minérales. *Bull. Soc. géol. Fr.*, 8(1, 7): 1033-1044.
- BERGMANN H., SACKL B. (1985). Hydraulic investigations on the utilization of Geothermal water resources for energy production. *J. Geodynamics*, 4: 341-348.
- BOUSQUET J.C., PHILIP H. (1980). Les caractéristiques de la néotectonique en Méditerranée occidentale. In: *Sedimentary Basins of Mediterranean Sea*: 389-405.
- COMBES Ph. (1984). La tectonique récente de la Provence occidentale: microtectonique, caractéristiques dynamiques et cinématiques; méthodologie de zonation tectonique et relations avec la sismicité. Thèse 3ème cycle, Univ. Strasbourg, 181 pp., ronéo.
- CRAIG H. (1961). Isotopic variations in meteoric waters. *Science*, 133, 1702-03.
- CRAIG H. (1963). The isotopic geochemistry of water and carbon in geothermal areas. *Nuclear Geol. of Geoth. Areas.*, C.N.R., Pisa, 17-53.
- DANSGAARD W. (1964). Stable isotopes in precipitation. *Tellus*, 16, 435-468.
- DAZY J., GRILLOT J.C. (1981-1982). Le thermominéralisme péri-alpin: exemple de la région savoyarde (France). *Rev. Géol. dyn. géogr. phys.*, Paris, XXIII, 4, 319-328.
- DAZY J., SARROT-REYNAULT J., BLAVOUX B. (1984). Données nouvelles sur quelques sources carbo-gazeuses du Sud-Est de la France (Ardèche, Drôme, Isère). 108ème cong. Soc. sav., Grenoble, Fr., Sci. 1: 235-251.
- DEINES P. (1980). The isotopic composition of reduced organic carbon. In *Handbook of environmental isotope geochemistry, Vol. 1, The terrestrial environment*, A, (P. FRITZ et J.C. FONTES Eds.), Elsevier, 329-406.
- DEVER L. (1985). Approches chimiques et isotopiques des inter-réactions fluide-matrice en zone non saturée carbonatée. Thèse Doct. ès. Sci., Univ. Paris VI, 196 pp., ronéo.
- DROGUE C., LATY A.M., PALOC H. (1983). Les eaux souterraines des karsts méditerranéens. Exemple de la région pyrénéo-provençale (France méridionale). *Hydrogéol. Géol. Ing. BRGM, Orléans, Fr.*, 4, 293-311, 1 carte coul. h.t. 37 x 62 cm.
- DROGUE C., BIDAUX P. (1986). Simultaneous outflow of fresh water and inflow of sea water in a coastal spring. *Nature*, 322(6077): 361-363.
- FONTES J. Ch., GLANGEAUD L., GONFIANTINI R., TONGIORGI E. (1963). Composition isotopique et origine des eaux et des gaz thermaux du Massif Central (France). *C.R. Acad. Sci. Paris*, 256: 472.
- FONTES J. Ch. (1978). Hydrogéologie, un champ privilégié de l'application des isotopes du milieu: l'âge des eaux souterraines. *Symposium I.H.E.S., Montpellier, Fr.*, 2: 715-754.
- GASTIL G., BERTINE K. (1986). Correlation between seismicity and the distribution of thermal and carbonate water in southern and Baja California, United States and Mexico. *Geology*, 14: 287-290.
- GIBERT J.P., SOREL D., VERGELY P. (1975). Tectonique cassante polyphasée et émergences d'eaux thermales: le site de Chaudes-Aigues (Cantal, France). *Bull. Soc. géol., Fr.*, 7, XVII, 4: 622-636.
- GRILLOT J.C. (1982). Sur la structure des aquifères karstiques: corrélations inter-régionales; schématisation générale dans le SE de la France. *Eclogae geol. Helv. Bâle*, 75(1): 77-92.
- GRILLOT J.C., DAZY J. (1983). Photo-interprétation, tectonique cassante et thermalisme: exemple du domaine alpin (France). *Géol. Alpine, Grenoble, Fr.*, 59: 45-60.
- GRILLOT J.C., BOUSQUET J.C., PHILIP H., DAZY J. (1983). Hydrothermalisme carbo-gazeux, radioactivité et sismotectonique: exemple du Languedoc-Roussillon (France). *Hydrogéol., Géol. Ing. BRGM, Orléans, Fr.*, 4: 313-320, 1 carte h.t., 30 x 36 cm.
- GRILLOT J.C., DROGUE C. (1986). Hydrothermalisme et tectonique cassante dans les granites hercyniens du NW Portugal. *Bull. Soc. géol., Fr.*, 4: 127-134.
- GRILLOT J.C., YERRIAH-MASSON J. (1986). A propos du géothermalisme carbo-gazeux dans le Sud-Est de la France. *C.R. Acad. Sci., Paris*, 303(7): 623-626.
- IVANOV V.V., KONONOV V.I., SUGROBOV V.M. (1968). Main regularities of the formation of hydrothermal waters in the regions of recent volcanism. *XXIII Intern., Geol. Congress, Prague*, 17: 151-160.

- JACOBSON R.L., LANGMUIR D. (1974). Controls on the quality variations of some carbonate spring waters. *J. Hydrology*, 23: 247-265.
- KAGURA G., FRANCO O., GAZDA S., SILAR J. (1968). Thermal and mineral waters of Czechoslovakia. *XXIII Intern. Geol. Congress, Prague*, 17: 185-194.
- MAISONNEUVE J., RISLER J.J. (1974). Le gaz carbonique hydrothermal en Auvergne (France). *Rev. Sci. Nat. d'Auvergne*, 40: 27-47.
- MAISONNEUVE J., RISLER J.J. (1979). La "ceinture" péri-alpine carbo-gazeuse de l'Europe occidentale. *Bull. BRGM, Orléans, Fr.*, III(2): 109-120.
- MERCIER-BATARD F., RISLER J.J. (1982). Les gaz associés aux eaux thermominérales. *Presse Therm. et Clim., Fr.*, 119(3): 139-149.
- MUFFLER L.J.P., WHITE D.E. (1968). Origin of CO₂ in the Salton Sea geothermal system Southeastern California. *XXIII Intern. Geol. Congress, Prague*, 17: 185-194.
- ODDOU A., NAULT L., CAMPREDON R., BERNAT M. (1983). Mesure continue des variations des émanations souterraines du radon sur trois sites des Alpes-Maritimes (France). Résultats préliminaires. *C.R. Acad. Sci., Paris*, 296: 1081-86.
- PACES T. (1972). Flux of CO₂ from the lithosphere in the Bohemian Massif. *Nature Physical Sci.*, 240: 141-142.
- PELIKAN V. (1968). La détermination de la teneur en CO₂ dans l'air du sol appliquée à la recherche des eaux minérales. *Cas. Miner. Geol. Ceskol.*, II(4): 452-454.
- PHILIP H., TAPPONNIER P. (1976). Tectonique actuelle et sismicité en Provence. Essai d'interprétation cinématique. *A.T.P. Géodyn. Méditer. occid., coll. Montpellier, Fr., CNRS-INAG*, 121.
- PHILIP H. (1980). Tectonique récente de la France. Caractéristiques géodynamiques. *26ème Congr. géol., intern., Paris, Géol. de La Fr., mém. BRGM, Orléans*, 107: 42-46.
- PHILIP H. (1983). La tectonique actuelle et récente. Ses relations avec la sismicité. Thèse Doct. ès Sci., Univ. Montpellier, 147 p., 1 carte coul. h.t., 100 x 150 cm.
- QUINIF Y., DOREMUS P., BOUKO Ph. CHARLEY J.M. (1984). Une méthode d'analyse du radon 222 dans les eaux naturelles. Application à la prospection de l'uranium (région de Oizy, Belgique). *C.R. Acad. Sci., Paris*, 299(17): 1187-1190.
- REMY M.L., PELLERIN P. (1982). Quelques données récentes sur la radio-activité naturelle des eaux hydrothermales françaises. *Presse Therm. et clim.*, 119(3): 150-155.
- SADOVSKY M.A., NERSEOV I.L., NIGMATULLAEV S.K. (1972). The processus preceding strong earthquakes in some regions of Middle Asia. *Tectonophysics*, 14: 295-307.
- SCHOELL M., STAHL W. (1972). The carton isotopic composition and the concentration of the dissolved inorganic carbon in the Atlantis II deep brines. *Planet. Sci. Lett.*, 15: 206-211.
- SCHOELLER H. (1949). La température des eaux souterraines. *Trav. Labo. Géol., Fac. Sci., Bordeaux, Fr.*, 1 vol., 214 pp., ronéo.
- SCHOELLER H. (1955). Géochimie des eaux souterraines, application aux eaux des gisements de pétrole. *Rev. Inst. Franç. Pétr. et ann. combust. liqu.*, 213 pp.
- SCHOELLER H. (1962). *Les eaux souterraines*. 1 vol., Ed. Masson, Paris, 642 pp.
- SCHOELLER H. (1969). L'acide carbonique des eaux souterraines. *Bull. B.R.G.M., Orléans, Fr.*, III(1): 32 pp.
- SCHOELLER H. (1980). Influence du climat, de la température sur la teneur en HCO₃⁻ et H₂CO₃ des eaux souterraines. *J. Hydrology*, 46: 365-376.
- TAYLOR Jr., FRECHEN H.P., DEGENS E.T. (1967). Oxygen and carbon isotope studies of carbonatites from the laacher See District, West Germany and the Alnå District, Sweden. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 31: 407-430.
- TAYLOR H.P. (1974). The application of oxygen and hydrogen isotope studies to the problems of hydrothermal alternation and ore deposition. *Econ. Geol.*, 69: 843-883.
- TEISSEYRE J. (1968). Les sources minérales des Sudètes en relation avec la structure géologique du sous-sol. *XXIII Intern. Geol. Congress, Prague*, 17: 195-204.
- ULOMOV V.I. (1968). On the way to prognosis of earthquakes. *Zemlya i Vsedennaya Acad. Sci. U.S.S.R.*, 3: 23-30.
- WEBER C., HIRN A., PHILIP H., ROCHE A. (1980). Tectonique récente et sismicité de la France. *26ème Congr. Intern. géol., Paris*, II(7) éd. BRGM, Orléans, Fr., 26-50.
- YERRIAK-MASSON J. (Thèse 3ème cycle). (1986). "Le thermominéralisme carbo-gazeux de SE de la France (domaine sédimentaire) dans son contexte sismotectonique". Univ. Montpellier II, 108 pp., 3 ann., 1 carte h.t., ronéo.