

Nature, distribution et potentiel gazier des charbons et roches-mères du bassin carbonifère de Lorraine : contribution à l'estimation des ressources en gaz

Salim Allouti

▶ **To cite this version:**

Salim Allouti. Nature, distribution et potentiel gazier des charbons et roches-mères du bassin carbonifère de Lorraine : contribution à l'estimation des ressources en gaz. Sciences de la Terre. Université de Lorraine, 2024. Français. ⟨NNT : 2024LORR0279⟩. ⟨tel-05123085⟩

HAL Id: tel-05123085

https://hal.univ-lorraine.fr/tel-05123085v1

Submitted on 20 Jun 2025

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



HAL Authorization

UNIVERSITÉ DE LORRAINE | BIBLIOTHÈQUES UNIVERSITAIRES

AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact bibliothèque : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr
(Cette adresse ne permet pas de contacter les auteurs)

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4
Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10
http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php
http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm

Ecole Doctorale SIReNa
Laboratoire GeoRessources

Thèse

Présentée et soutenue publiquement pour l'obtention du titre de

DOCTEUR DE l'UNIVERSITE DE LORRAINE

Mention : GEOSCIENCES

Par : **Salim ALLOUTI**

Sous la direction de M. Raymond MICHELS

Nature, distribution et potentiel gazier des charbons et roches-mères du bassin carbonifère de Lorraine : contribution à l'estimation des ressources en gaz

Date de soutenance : 09 décembre 2024

Membres du jury :

Directeur de thèse :	M. Raymond MICHELS	Chargé de recherche, CNRS, GeoRessources, Université de Lorraine
Président de jury :	M. Yves GERAUD	Professeur, Université de Lorraine
Rapporteurs :	M. Mohamed BOUSSAFIR	Professeur, Université de Tours
	M. François BAUDIN	Professeur, Sorbonne Université
Examinateurs :	M. Laurent BECCALETTO	Docteur HDR, BRGM, Orléans
	Mme Maria Fernanda ROMERO SARMIENTO	Docteur HDR, IFP Energies nouvelles
Membres invités :	M. Alain IZART	Maître de conférences, Université de Lorraine
	M. Jacques PIRONON	Directeur de recherche, CNRS, GeoRessources, Université de Lorraine
	M. Fady NASSIF	Ingénieur, Française de l'Energie, Pontpierre

Remerciements

Je tiens tout d'abord à exprimer ma profonde gratitude au projet REGALOR, qui a financé ma thèse et dont celle-ci faisait partie. Je remercie chaleureusement mon directeur de thèse, Raymond Michels, pour avoir guidé les grandes lignes de mon travail, m'avoir accompagné jusqu'aux derniers instants de cette aventure scientifique et m'avoir permis d'explorer en profondeur le domaine de la géochimie pétrolière. Je lui suis reconnaissant pour sa confiance et son soutien indéfectible tout au long de ce parcours.

Un immense merci à Fabrice Malartre, dont les conseils avisés, les orientations enrichissantes et les suggestions pertinentes ont été essentiels dans l'élaboration de ma thèse, notamment en sédimentologie. Ses directives ont été précieuses, particulièrement pour moi, venant d'un parcours en sciences physiques de la Terre. Je lui suis profondément reconnaissant pour sa confiance et ses encouragements.

Je remercie également Yves Géraud pour nos nombreuses discussions scientifiques en pétrophysique, son soutien constant et la confiance qu'il m'a accordée dans les différentes missions qui m'ont été confiées au sein de l'équipe Gréstock.

Un grand merci à Alain Izart, véritable mémoire scientifique du bassin lorrain, dont les connaissances précieuses ont été d'une aide inestimable. Merci pour ses remarques, ses suggestions et ses discussions scientifiques tout au long de mon projet de thèse.

Je tiens aussi à remercier les membres de mon comité de suivi de thèse, Laurent Truche et Anne Spzwa, ainsi que les membres du jury de thèse, en particulier les rapporteurs M. Mohamed Boussafir et M. François Baudin, pour avoir évalué mon travail.

Je remercie également mes examinateurs, M. Yves Géraud, M. Laurent Beccaletto et Mme Maria Fernanda Romero Sarmiento, pour nos échanges lors de ma soutenance, ainsi que les membres invités, M. Alain Izart, M. Jacques Pironon et M. Fady Nassif, pour avoir accepté d'assister à la soutenance et enrichi les débats sur le bassin lorrain.

Un grand merci à la plateforme de géochimie organique et à sa responsable Catherine Lorgeoux. Merci Catherine pour ta formation, ton accompagnement et toute la gestion du dispositif expérimental d'analyse. Je remercie aussi Caroline Hussard pour son aide précieuse dans mon projet, ainsi qu'Aurélien Randi, pour la partie expérimentale des pyrolyses. Merci Aurélien pour tes encouragements, tes remarques et ton soutien, toujours accompagné de bonne humeur. Merci aussi à Nicolas Lecocq pour son aide dans la préparation des échantillons.

Je tiens à remercier la Française de l'Énergie, et en particulier Fady Nassif, pour avoir facilité l'accès aux données de diagraphies et aux carottes de forage de la carothèque de l'entreprise.

Merci à l'École Nationale Supérieure de Géologie pour son accueil et la mise à disposition du logiciel Techlog de SLB. Un grand merci également à Guillaume Caumon pour avoir autorisé l'accès et à Arnaud Krugell pour son aide sur les questions de licence.

Je remercie le laboratoire ISTO, en particulier M. Claude Le Milbeau, pour les pyrolyses Rock-Eval, ainsi que le laboratoire de Mesures Physiques de Montpellier pour les analyses élémentaires. Un grand merci également au laboratoire EGS-Ploration Organic Petrology (Rueterswil, Suisse) pour les analyses macérales et les mesures de pouvoir de réflectance de la vitrinite.

Un immense merci aux chercheurs de l'équipe Gréstock: Claire B., Lionel B., Jade D., Sylvain L., Audrey T., Dimitrios R., qui m'ont chaleureusement accueilli au début de ma thèse et ont passé le flambeau à la nouvelle génération. Merci aussi à mes collègues de la "Team Covid 19", Metzger, Martin, Laurie, ainsi qu'aux nouveaux membres, Nadjib, Loris, et surtout Pierre, qui reprend actuellement le relais et navigue dans les méandres du laboratoire. Un grand merci, Pierre, pour tout ce que tu as fait pour moi en fin de thèse.

Je remercie également Alexiane (je pense qu'on refera ensemble le trajet Metz-Nancy à vélo pour compléter le tour !), ainsi que Marc pour leurs encouragements. Sans oublier Romain et Bastien, dont le soutien a été précieux.

Je tiens aussi à remercier tous les doctorants de GéoRessources que j'ai croisés, que ce soit au bureau ou au bar des doctorants : Thomas, Paul Baville, Lucas, Elza, Khouloud, Imane, Malika, Célestine, Caroline, Vincent et Paul (merci pour ton code Python qui a sauvé ma dernière figure de mon dernier chapitre).

Je remercie maintenant tous mes amis et toutes les personnes que j'ai rencontrées à Nancy : Samy, Anis, Loubna, Miloud, Arezki, et bien d'autres que j'ai peut-être oubliés… Je pense aussi à toutes ces discussions autour d'un café sur la place Stanislas. Un immense merci à Nicolas, avec qui j'ai découvert le "réservoir à énergie blanche" ! Je tiens également à remercier Fateh et Nassim, pour leurs encouragements et leurs conseils. Enfin, je n'oublie pas ma famille, qui a été un soutien indéfectible. Maman, papa, Amir, Lisa et Malak, merci à vous pour votre patience, votre motivation et votre confiance tout au long de ce parcours.

Résumé étendu

Le bassin carbonifère lorrain, situé dans le nord-est de la France, constitue l'un des gisements les plus prometteurs en termes de ressources en gaz de charbon (CBM) en France et en Europe. Après une longue période d'exploitation charbonnière qui a pris fin en 2004, ce bassin fait l'objet d'un regain d'intérêt pour l'exploration en gaz. Aujourd'hui, les campagnes d'exploration en cours permettent de mieux évaluer les ressources gazières contenues dans les formations sédimentaires du bassin. L'étude géologique et géochimique de ces formations, combinée aux données issues de forages récents, fournit des informations cruciales pour estimer le potentiel gazier de la région.

La lithologie complexe du bassin carbonifère lorrain est caractérisée par une distribution hétérogène de la matière organique, en raison de la variabilité des éléments architecturaux du système fluvio-lacustre. Cela requiert une stratégie d'échantillonnage spécifique, adaptée à l'architecture sédimentaire et aux paléo-conditions de dépôt. Les principales unités sédimentaires identifiées incluent les chenaux, les lobes de crevasse, les plaines d'inondation et les marécages, qui influencent la distribution et la qualité de la matière organique, variant des charbons purs aux argilites, en passant par les charbons argileux et les argiles charbonneuses. Les études menées dans ce contexte englobent des analyses sédimentologiques, diagraphiques, pétrographiques et géochimiques réalisées sur des carottes prélevées dans divers forages du bassin. Ces études visent à caractériser les environnements de dépôt, à quantifier les volumes des gaz in situ, à évaluer la distribution et les propriétés de la matière organique, et à estimer le potentiel gazier des formations sédimentaires.

Les environnements fluviatiles du Carbonifère supérieur du bassin lorrain, renferment des réserves de charbon significatives, offrant un potentiel notable pour l'extraction de gaz de charbon (Coal bed Methane, CBM). Une approche basée sur les diagraphies a été utilisée pour évaluer ce potentiel, en se concentrant sur l'identification des environnements de dépôt et l'estimation des volumes de gaz in situ des couches de charbon. Les données diagraphiques obtenues des forages Folschviller 1A, Diebling S1 et Johannswiller ont permis d'identifier diverses lithologies caractéristiques de divers contextes de dépôt, chacun présentant des potentialités distinctes pour la génération et le stockage du gaz. Les calculs de porosité réalisés à partir des diagraphies montrent des valeurs variables, de 9,6 % dans les grès du Westphalien D et de 5 % dans le Westphalien C. Dans les couches de charbon, la porosité totale moyenne

est d'environ 4,1 %, dont 3 % est attribuée à la porosité de fracture, essentielle pour l'écoulement des fluides et la récupération du CBM. Des relations empiriques entre les composants du charbon et les diagraphies de densité ont été établies pour estimer la teneur en cendres, les matières volatiles, l'humidité et le carbone fixe. Les volumes de gaz adsorbés dans les couches de charbon sont estimés entre 7 et 11 m^3/tonne de charbon dans les formations du Carbonifère supérieur, ce qui souligne le potentiel significatif de cette ressource.

L'évaluation du Carbone Organique Total (COT) le long des puits, basée sur les données diagraphiques, constitue un élément clé de cette étude. Bien que de nombreuses méthodes existent pour estimer le COT dans les séquences marines, leur application aux séquences continentales reste moins fréquente. Cette étude a appliqué plusieurs méthodologies, notamment la méthode de Schmoker, la méthode Δ log R, et la régression multivariée, sur les forages de référence Folschviller 1A et Diebling S1. La méthode de Schmoker s'est avéré la plus fiable, fournissant des estimations cohérentes avec les données Rock-Eval, tandis que la méthode Δ log R a montré des limitations, notamment pour les lithologies charbonneuses, où elle tend à sous-estimer le COT. Pour remédier à ces biais, des équations logarithmiques ont été proposées pour corriger les estimations. En complément, des équations basées sur la régression multivariée des logs gamma-ray, soniques et de résistivité ont été développées pour affiner l'estimation du COT.

L'analyse géochimique et pétrographique de la matière organique du bassin houiller lorrain a permis d'évaluer en détail la nature, la qualité et le potentiel pétrolier des roches-mères charbonneuses. Ces évaluations sont essentielles pour comprendre le potentiel d'hydrocarbures du bassin, ainsi que les mécanismes de génération de ces hydrocarbures en relation avec les différents environnements de dépôt. L'analyse pétrographique révèle que la vitrinite est le macéral dominant, représentant en moyenne 76,80 % de la composition totale, suivie de la liptinite (12,11 %) et de l'inertinite (11,09 %). Cette composition macérale, combinée à divers indices pétrographiques, offre des indices sur les paléoenvironnements lors de la formation du charbon. Les analyses géochimiques montrent des variations significatives de l'Indice d'Hydrogène (IH) entre les différents échantillons : de 150 à 450 mgHC/gCOT pour les charbons, de 350 à 100 mgHC/gCOT pour les argiles charbonneux, et IH < 150 mgHC/gCOT pour les argilites. Ces résultats indiquent un potentiel pétrolier bon à excellent, avec un potentiel (S2) oscillant entre 14,29 et 202,29 mgHC/gRoche pour les roches-mères charbonneuses, tandis que pour les argilites, il varie de 0,13 à 17,35 mgHC/gRoche.

La synthèse des informations acquises a permis de calibrer les méthodes permettant d'établir le bilan gazier à l'échelle d'un puits ou d'un ensemble de puits corrélés. Cette étape a impliqué la comparaison des volumes générés et leur confrontation aux saturations des volumes actuels, afin d'estimer les volumes de gaz potentiellement expulsés dans le bassin. Cette démarche a fourni des indications sur l'efficacité du système gazier. Dans cette partie de l'étude, une première approche a consisté à utiliser les données Rock-Eval en les couplant avec les données géophysiques des puits, en se basant sur les informations relatives au TOC. La deuxième méthode a impliqué le calcul direct des volumes de gaz générés à partir de la maturation artificielle d'échantillons immatures pour les lithologies représentant les différentes variétés de roches-mères. Cette méthode a également permis de déterminer la composition des gaz générés pendant l'enfouissement du bassin lorrain.

Mots-Clés : Bassin carbonifère lorrain; Gaz de charbon; Géochimie organique; Diagraphies; Maturation artificielle; Potentiel gazier.

Extended abstract

The Lorraine Carboniferous Basin, located in northeastern France, is one of the most promising coalbed methane (CBM) resource sites in France and Europe. Following a long history of coal mining that ended in 2004, the basin experiences renewed interest in gas exploration. Current exploration campaigns are enhancing our understanding of the gas resources contained within the sedimentary formations of the basin. Geological and geochemical studies of these formations combined with data from recent drilling are providing crucial insights into the region's gas potential.

The complex lithology of the Lorraine Carboniferous Basin is marked by a heterogeneous distribution of organic matter in relation to the variability of fluvio-lacustrine architectural elements. This complexity necessitates a specific sampling strategy that aligns with the sedimentary architecture and palaeo-depositional conditions. Key sedimentary units identified include channels, crevasse splays, floodplains, and swamps, all of which influence the distribution and quality of organic matter, ranging from pure coal to claystones, and intermediate coal-bearing clays. The studies conducted in this context encompass sedimentological, well-logging, petrographic, and geochemical analyses performed on cores extracted from various drill sites within the basin. These studies aim to characterize depositional environments, quantify in situ gas volumes, evaluate the distribution and properties of organic matter, and estimate the gas potential of the sedimentary formations.

The fluvial environments of the Upper Carboniferous within the Lorraine Basin contain significant coal reserves, presenting notable potential for Coal bed methane (CBM) extraction. A well-log-based approach has been employed to assess this potential, focusing on the identification of depositional environments and the estimation of in situ gas volumes within coal seams. Well-log data from the Folschviller 1A, Diebling S1, and Johannswiller well have enabled the identification of various characteristic lithologies, such as channels, crevasse splays, floodplains and swamps, each exhibiting distinct potential for gas generation and storage. Porosity calculations derived from the well logs indicate varying values, with sandstones porosity at 9.6% in the Westphalian D and 5% in the Westphalian C. In the coal seams, the average total porosity is approximately 4.1%, with 3% attributed to fracture porosity, which is essential for fluid flow and CBM recovery. Additionally, empirical relationships between coal components and density logs have been established to estimate ash content,

volatile matter, moisture and fixed carbon. The adsorbed gas volumes in the coal seams are estimated to range from 7 to 11 m³/ton of coal in the Upper Carboniferous formations, underscoring the significant potential of this resource.

The assessment of Total Organic Carbon (TOC) along the wells, based on well-log data, is a key element of this study. Although various methods exist for estimating TOC in marine sequences, their application to continental sequences is less common. This study applied several methodologies, including the Schmoker method, the Δ log R method, and multivariate regression, to the reference wells Folschviller 1A and Diebling S1. The Schmoker method proved to be the most reliable, providing estimates consistent with Rock-Eval data, while the Δ log R method showed limitations, particularly for coal-bearing lithologies, where it tended to underestimate TOC. To address these biases, logarithmic equations were proposed to correct the estimates. In addition, equations based on multivariate regression of gamma-ray, sonic, and resistivity logs were developed to refine TOC estimation.

The geochemical and petrographic analysis of organic matter in the Lorraine Coal Basin has enabled a detailed evaluation of the nature, quality, and petroleum potential of the coal-bearing source rocks. These evaluations are crucial for understanding the hydrocarbon potential of the basin and the mechanisms of hydrocarbon generation in relation to the different depositional environments. Petrographic analysis reveals that vitrinite is the dominant maceral, averaging 76.80% of the total composition, followed by liptinite (12.11%) and inertinite (11.09%). This maceral composition, combined with various petrographic indices, provides insights into the paleoenvironmental conditions during coal formation. Geochemical analyses show significant variations in the Hydrogen Index (HI) between different samples: from 150 to 450 mgHC/gTOC for coals, from 350 to 100 mgHC/gTOC for coal-bearing shales, and HI < 150 mgHC/gTOC for claystones. These results indicate a good to excellent petroleum potential, with potential (S2) ranging from 14.29 to 202.29 mgHC/gRock for coal-bearing source rocks, while for claystones, it varies from 0.13 to 17.35 mgHC/gRock.

The synthesis of the information provided allowed the calibration of methods to establish the gas budget at the scale of a well or a set of correlated wells. This step involved comparing the generated volumes with in place gas volumes to estimate the gas potentially expelled from the basin. This approach provided insights into the efficiency of the gas system. In this part of the study, an initial approach involved Rock-Eval data coupled with geophysical well data based on TOC information. The second method involved directly calculating the volumes of gas

generated from the artificial maturation of immature samples representing the various types of source rocks. This method also allowed for determining the composition of gases generated during the burial of the Lorraine Basin.

Keywords: Lorraine Carboniferous Basin; Coal Bed Methane; Organic Geochemistry; Well Logging; Artificial Maturation; Gas Potential.

Table des matières

I. INTRODUCTION GENERALE 23

I.1 Contexte scientifique du projet de recherche ‘‘Ressources Gazières de Lorraine (Regalor)’’ -------- 27

I.2 Contexte scientifique de la thèse ‘‘Nature, distribution et potentiel gazier des charbons et roches-mères du bassin carbonifère de Lorraine : contribution à l’estimation des ressources en gaz’’ ---------- 28

I.2.1 Évolution des recherches géologiques dans le bassin lorrain 28

I.2.2 Objectifs de la thèse 28

II. OBJETS ET METHODES 37

II.1 Contexte géologique du bassin carbonifère lorrain ---------- 37

II.1.1 Cadre géographique 37

II.1.2 Situation du bassin carbonifère sarro-lorrain dans la chaîne hercynienne 38

II.1.3 Cadre Litho-stratigraphique du bassin carbonifère Sarro-Lorrain 39

II.2 Etat des connaissances ---------- 45

II.2.1 Les environnements de dépôt dans le bassin lorrain 45

II.2.1.1 Les environnements de dépôt des séries carbonifères du bassin sarro-lorrain 45

II.2.1.1.1 Les cônes alluviaux 46

II.2.1.1.2 Les environnements fluviatiles 47

II.2.1.1.3 Les environnements lacustres: 52

II.2.1.2 Les éléments architecturaux associés à l'environnement de dépôt fluvio-lacustre dans le bassin lorrain ……55

II.2.1.2.1 Les chenaux 55

II.2.1.2.2 Les lobes de crevasse 56

II.2.1.2.3 Les plaines d’inondation 56

II.2.1.2.4 Les marécages à "couches de charbon" 57

II.2.1.3 Synthèse de paléo-environnements de dépôts dans le bassin lorrain 57

II.2.2 Le charbon comme roche source 59

II.2.2.1 Formation des tourbes et processus de transformation de la matière organique 60

II.2.2.2 Classification des charbons lorrains 61

II.2.2.2.1 Le rang du charbon lorrain et les analyses immédiates 61

II.2.2.2.2 Caractéristique pétrographique du charbon lorrain 64

II.2.2.2.3 Pourcentage de réflectance de la vitrinite (%Ro) 66

II.2.2.3 Thermicité et paléo-enfouissement dans le bassin houiller lorrain 69

II.2.2.3.1 Thermicité pendant le Mésozoïque 72

II.2.2.3.2 Thermicité pendant le Paléozoïque 72

II.2.2.4 Génération de gaz de charbon 74
II.2.3 Ingénierie des réservoirs de gaz de charbon 76
II.2.3.1 Étude de la porosité dans les couches de Charbon 77
II.2.3.2 Méthodes de mesure et comportement des réservoirs de gaz de charbon 78
II.2.3.3 Évaluation de la Capacité d'Adsorption du Charbon et de Réserves du Gaz dans le Bassin Houiller Lorrain 80
II.2.3.4 Utilisation des diagraphies pour l'ingénierie et l'Exploration du gaz de charbon : 81
II.2.3.4.1 Les diagraphies 81
II.2.3.4.2 Évaluation des réservoirs de gaz de charbon (CBM) 84
II.2.3.4.3 Détermination du contenu en carbone organique total (COT) 86

II.3 Matériel, outils et stratégie méthodologique ---------- 93
II.3.1 Matériel 94
II.3.1.1 Carottes et échantillons de roches 94
II.3.1.1.1 Etude des carottes et collecte d'échantillons. 94
II.3.1.1.2 Préparation des échantillons : 98
II.3.1.2 Diagraphies 98
II.3.1.2.1 Disponibilité des enregistrements diagraphiques : 98
II.3.1.2.2 Format et traitement des données : 99
II.3.2 Méthodologie globale 99
II.3.2.1 Les analyses de la matière organique 103
II.3.2.1.1 Le Rock Eval 103
II.3.2.1.2 Analyses élémentaires 105
II.3.2.1.3 Pétrographie organique 105
II.3.2.1.4 Analyses cinétiques de genèse d'hydrocarbures 108
II.3.2.1.5 Maturation artificielle par pyrolyse confinée 108
II.3.2.1.6 Analyses des gaz par thermodésoprtion couplée à la chromatographie multidimensionnelle (TDMDGC) 111
II.3.2.2 Les analyses minéralogiques par diffraction des rayons X 113
II.3.2.2.1 Analyse de roche totale 113
II.3.2.2.2 Analyse de la fraction argileuse 113

III. RESULTATS 119

III.1 Caractérisation des environnements de dépôt et estimation des volumes de gaz *in situ* du carbonifère supérieur du bassin lorrain ---------- 119
III.1.1 Introduction 120
III.1.2 Geological context 121
III.1.3 Methods and Materials 124
III.1.4 Theory 126
III.1.4.1 Depositional environment based on well logs analysis 126

III.1.4.2 Petrophysical Evaluation of a Coal Bed Methane Reservoir using well log data 127
III.1.4.2.1 Shale volumes 127
III.1.4.2.2 Total and effective porosities 128
III.1.4.2.3 Proximate analysis and determination of gas content of coal from well logs data 129
III.1.5 Results 130
III.1.5.1 Sedimentary log analysis 130
III.1.5.1.1 Main architectural elements and related facies 132
III.1.5.1.2 Lithological Identification through well-log derived histograms. 137
III.1.5.1.3 Depositional Palaeoenvironments characterisation through cross plots 139
III.1.5.2 Petrophysical Evaluation using well log data 140
III.1.5.3 Proximate analysis and determination of gas content of Coal from Well logs Data 142
III.1.5.3.1 Proximate analysis 142
III.1.5.3.2 Gas Content Analysis 144
III.1.6 Discussion 148
III.1.7 Conclusion 150

III.2 Estimation des teneurs en carbone organique total en utilisant les diagraphies dans les environnements de dépôt fluvio-lacustres du bassin carbonifère lorrain ---------- 155
III.2.1 Introduction 156
III.2.2 Geological setting 159
III.2.3 Materials and Methods 162
III.2.3.1 Data availability 162
III.2.3.1.1 Studied wells and core samples 162
III.2.3.1.2 Organic petrography and Rock-Eval analysis 162
III.2.3.1.3 Well logs data 162
III.2.3.2 Methods of Calculating Total Organic Carbon Using Well-Logs 163
III.2.3.2.1 Well Log responses for Characterizing Coal Deposits 163
III.2.3.2.2 Schmoker Method 164
III.2.3.2.3 Δ. log R Method 165
III.2.4 Results 167
III.2.4.1 TOC calculation using Schmoker 167
III.2.4.2 TOC calculation using Δ log R 169
III.2.4.3 TOC calculation using Modified Δ log R Method 171
III.2.4.3.1 TOC Schmoker vs. TOC Δ log R evaluation 171
III.2.4.3.2 "Δ. log R separation" and TOC calibration 174
III.2.4.4 TOC calculation using Multivariate regression 176
III.2.5 Discussion 179
III.2.6 Conclusion 185

III.3 Caractérisation pétrographique et géochimique des charbons et roches-mères du bassin carbonifère lorrain ---------- 189

III.3.1 Introduction 191
III.3.2 Sampling 193
III.3.3 Analytical procedures 193
III.3.4 Results 194
III.3.4.1 Vitrinite reflectance (VR) 194
III.3.4.2 Maceral analysis 195
III.3.4.3 Elemental composition of coals samples: 202
III.3.4.4 Rock Eval Analyses 206
III.3.5 Discussion 209
III.3.5.1 Thermal maturity of samples. 209
III.3.5.2 Organic Matter Preservation and kerogen type 214
III.3.5.3 Source-rock characteristics and Hydrocarbon potential of coal and coaly facies. 219
III.3.6 Conclusion 226

IV. BILAN GAZIER DU BASSIN HOUILLER LORRAIN 231

IV.1 Approche intégrée à partir des données Rock-Eval et des diagraphies 231
IV.1.1 Détermination du potentiel pétrolier initial (choix de Tmax) 233
IV.1.2 Passage des TOC actuels déterminé par diagraphies aux potentiels pétroliers (S2) actuels (Relation S2 vs. TOC) 234
IV.1.3 Taux de Génération des Hydrocarbures dans le puis Gironville 101. 238
IV.1.4 Méthodes de calcul du potentiel pétrolier initial, du maximum des volumes des hydrocarbures générés et de l'efficacité du système pétrolier. 240
IV.1.4.1 Du TOC résiduel au potentiel pétrolier résiduel 240
IV.1.4.2 Du Potentiel pétrolier résiduel au potentiel pétrolier initial 240
IV.1.4.3 Calcul des volumes maximaux d'hydrocarbures générés et perdus 241
IV.1.5 Résultats de l'application du workflow à partir des diagraphies 241
IV.1.5.1 Calcul des potentiels pétrolier S2 résiduel et initial 242
IV.1.5.2 Détermination des volumes d'hydrocarbures 243

IV.2 Maturation artificielle 244
IV.2.1 Caractéristiques géochimiques et pétrographiques des échantillons pour la maturation artificielle. 244
IV.2.1.1 Paramètres Rock-Eval et réflectance de la vitrinite 244
IV.2.1.2 Analyses macérales 247
IV.2.2 Résultats de la maturation artificielle 249
IV.2.2.1 Analyse des effluents de pyrolyse par TD-MDGC des roches-mères après maturation artificielle…. 249
IV.2.2.1.1 Evolution du pourcentage molaire des gaz en fonction de la température de pyrolyse confinée…. 250
IV.2.2.1.2 Evolution des quantités de CO_2 et d'hydrocarbures en fonction de la température de pyrolyse confinée 252

IV.2.2.1.3 Evolution des quantités de CH_4 en fonction de la température de pyrolyse confinée 255
IV.2.2.2 Analyse Rock-Eval des échantillons après maturation 257
IV.2.2.3 Estimation des Volumes Maximaux d'Hydrocarbures Générés dans le Bassin 262

IV.3 Estimation des réserves pour le forage Fols 1A, Dbl S1 et JHS 1 (Bilan par forage) ---------- 265

V. CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES 273

V.1 Conclusions générales ---------- 273
V.1.1 Caractérisation des dépôts fluviatiles du carbonifère supérieur du bassin Lorrain et estimation de leur teneur en gaz de charbon par l'analyse des diagraphies et des carottes 273
V.1.2 Estimation du carbone organique total (COT) par diagraphies dans le bassin carbonifère 275
V.1.3 Caractérisation organopétrographique et géochimique des dépôts houillers du bassin carbonifère sarro-lorrain 276
V.1.4 Bilan gazier du bassin houiller lorrain 277

V.2 Perspectives ---------- 278
V.2.1 Optimisation du calcul du carbone organique total et du volume de gaz in-situ par l'intégration des applications de machine learning dans le bassin carbonifère lorrain 278
V.2.2 Amélioration de l'estimation du COT dans les faciès charbonneux : intégration des mesures pétrophysiques de laboratoire au modèle Delta Log R 280
V.2.3 Etude des mécanismes de stockage du méthane par rapport au CO_2 dans les charbons lorrains : implications pour l'exploration et l'exploitation du gaz de charbon 281
V.2.4 Perspectives de Recherche sur l'exploration de l'Hydrogène dans les Charbons Lorrains 282
V.2.5 Évaluation du potentiel multi-ressources du bassin carbonifère lorrain : vers une exploitation géothermique et énergétique innovante 283

VI. BIBLIOGRAPHIE 286

ANNEXES 304

Première partie

Introduction générale

Sommaire

I. INTRODUCTION GENERALE 23

I.1 Contexte scientifique du projet de recherche ‘‘Ressources Gazières de Lorraine (Regalor)’’ -------- 27

I.2 Contexte scientifique de la thèse ‘‘Nature, distribution et potentiel gazier des charbons et roches-mères du bassin carbonifère de Lorraine : contribution à l’estimation des ressources en gaz’’ ---------- 28

I.2.1 Évolution des recherches géologiques dans le bassin lorrain 28

I.2.2 Objectifs de la thèse 28

I. Introduction générale

La population mondiale a récemment atteint 8 milliards d'habitants, entraînant une demande énergétique croissante. Selon l'EIA américaine (Energy Information Administration, 2019), la consommation énergétique mondiale devrait augmenter de 50% d'ici 2050. Dans ce contexte, le gaz naturel émerge comme une ressource clé pour la transition énergétique (Agence Internationale de l'Énergie, 2022), représentant une part importante du mix énergétique mondial. Au cours des trente dernières années, le gaz de charbon (Coal Bed Methane, CBM) s'est imposé comme une ressource énergétique significative, avec un rôle croissant prévu dans le futur mix énergétique mondial (Figure I.1.1).

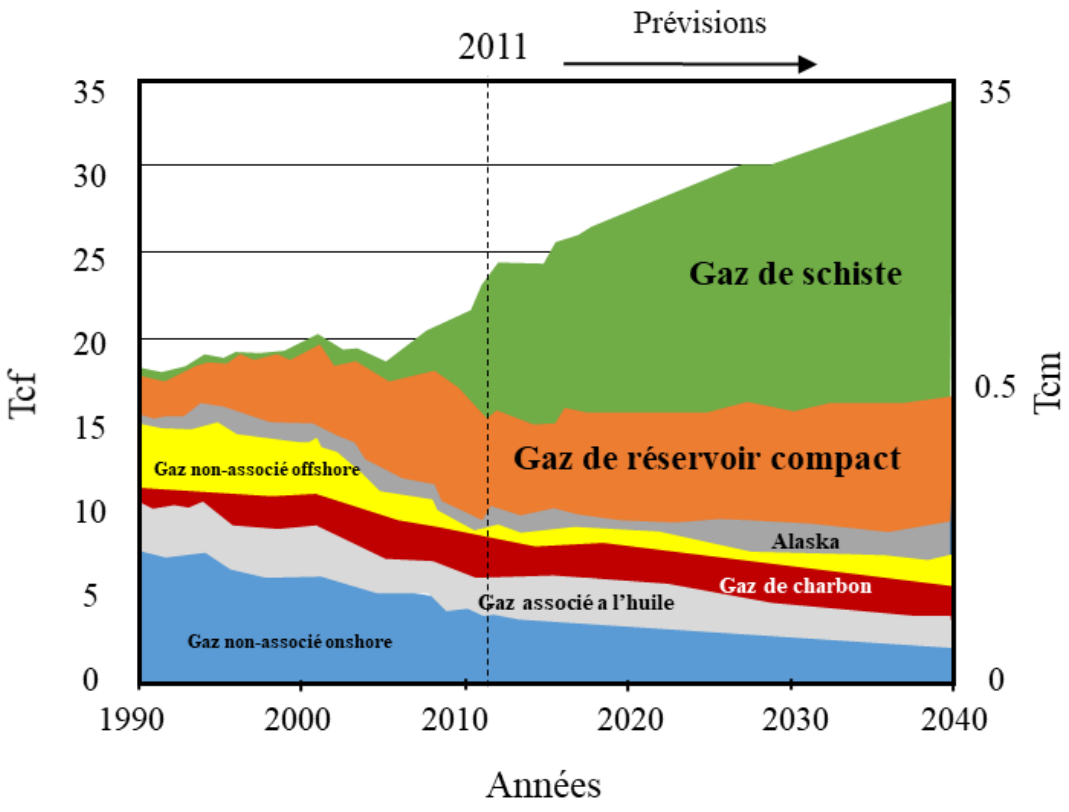


Figure I.1.1: Contribution du gaz de charbon (CBM) à la production totale de gaz naturel aux États-Unis avec T= (10^{12}), cf: pieds cubes, cm: mètres cubes. (Données de l'EIA (2019), modifié d'après Mastalerz and Drobniak (2019)).

Considéré comme une source d'énergie plus propre que le charbon, le CBM offre une alternative intéressante pour réduire les émissions de gaz à effet de serre. Le CBM est un combustible propre : sa combustion ne libère pas de toxines, ne produit pas de cendres et émet moins de dioxyde de carbone par unité d'énergie que la combustion du charbon, du pétrole ou du bois (Mastalerz and Drobniak, 2019). Ces caractéristiques en font une option attrayante pour les pays cherchant à réduire leur empreinte carbone. Le développement du CBM offre ainsi un

potentiel de revitalisation économique pour les anciennes régions charbonnières. Des programmes de recherche, tels que le projet Ressources Gazières de Lorraine (REGALOR) en France ou le Coal Mine Outgassing Program (CMOP) aux États-Unis, visent à explorer les possibilités d'exploitation du CBM tout en gérant l'après-mine, contribuant ainsi à la transition économique et énergétique de ces territoires.

Les estimations actuelles des ressources mondiales totales en CBM se situent entre 113 et 184 Tm^3, dont 42 Tm^3 sont considérées comme récupérables. Les bassins houillers les plus riches en CBM (Figure I.1.2) se trouvent en Russie, aux États-Unis, en Chine, au Canada, en Australie, en Indonésie, en Pologne, en Allemagne et en France (Thomas, 2002; Al-Jubori et al., 2009; Mastalerz and Drobniak, 2019). Les gisements houillers renferment trois types de gaz distincts : le gaz de mine active (CMM), le gaz de mine abandonnée (AMM) et le gaz de couche (CBM, gaz de charbon). Le CMM se dégage pendant l'exploitation minière, l'AMM émane des mines fermées, tandis que le CBM est naturellement piégé dans les couches de charbon inexploitées. Ce dernier requiert des techniques de forage non conventionnelles pour son extraction.

Le bassin carbonifère lorrain, formé il y a 302 à 318 millions d'années, renferme des faisceaux de couches de charbon répartis dans un remplissage sédimentaire de 6 à 8 km d'épaisseur. Cette région, autrefois centre majeur d'exploitation charbonnière, a vu le développement de techniques d'extraction avancées pour faire face à ses complexités géologiques, notamment des déformations tectoniques (anticlinaux et technique d'exploitation « en dressant » par exemple) et des failles à fort rejet. La fermeture du dernier puits de mine (champ de La Houve, en 2004) a marqué la fin d'une ère industrielle ayant débuté au milieu du XIX^{ème} siècle tout en ouvrant de nouvelles perspectives (Gunzburger, 2019). Loin de signifier l'abandon des ressources souterraines, cet événement a stimulé l'exploration de gisements jusqu'alors inexploités (gaz de charbon) ou ignorés (ressources en hydrogène). Dans ce contexte, le projet REGALOR envisage comme une opportunité de valoriser ces ressources potentielles, marquant une nouvelle phase dans l'histoire énergétique de la Lorraine.

Le charbon lorrain présente une structure complexe et poreuse, caractérisée par un système de "*cleats*" (fractures naturelles) (Privalov et al., 2020). En effet, cette structuration singulière, associée à la porosité de matrice, régit le flux de gaz, via la perméabilité, dans un réservoir de type CBM. Cette architecture offre une surface d'adsorption importante pour le méthane qui se trouve ainsi piégé dans la matrice charbonneuse. L'extraction du CBM en Lorraine, menée par la Française de l'Energie (FDE), diffère des techniques conventionnelles d'exploitation gazière.

Elle nécessite une dépressurisation du gisement par drainage, provoquant la désorption du méthane initialement maintenu par pression hydraulique. Cette méthode, spécifique aux CBM, permet de libérer le méthane sans fracturer le charbon (Gunzburger, 2019; Privalov et al., 2022).

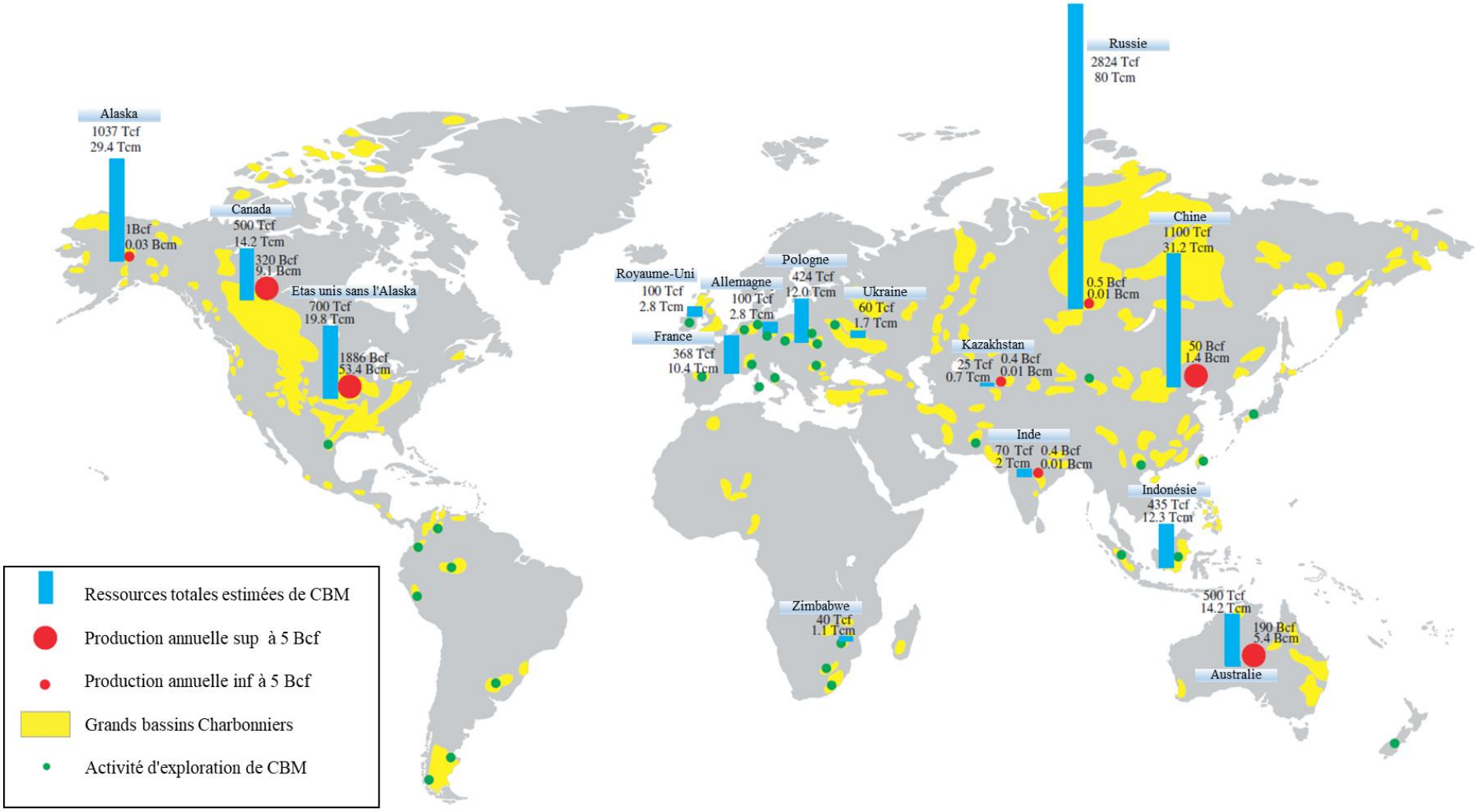


Figure I.1.2: Carte de distribution des ressources, production et activités d'exploration du CBM. B= (10^9) ; T= (10^{12}) ; cf: pieds cubes ; cm: mètres cubes. Données de Thomas (2002) et Al-Jubori et al. (2009). Carte modifiée d'après Mastalerz and Drobniak (2019).

I.1 Contexte scientifique du projet de recherche ‘‘Ressources Gazières de Lorraine (Regalor)’’

Cette thèse s'inscrit dans le cadre du projet REGALOR (Ressources Gazières de Lorraine, https://regalor.univ-lorraine.fr/), une initiative de recherche ambitieuse visant à explorer et évaluer les ressources gazières de la région lorraine, avec un accent particulier sur le gaz de charbon CBM. Ce projet revêt une importance stratégique dans le contexte de la transition énergétique et du développement économique d'une région historiquement marquée par l'exploitation minière du charbon. Le projet, initié en 2012 par la région Lorraine et soutenu financièrement par l'Union Européenne (FEDER) et la région Grand-Est, rassemble une équipe pluridisciplinaire de chercheurs. Il est principalement mené par le laboratoire GeoRessources (Université de Lorraine - CNRS), en partenariat avec la Française de l'Énergie. Cette collaboration entre le monde académique et l'industrie vise à assurer une approche globale et intégrée de la problématique. REGALOR se structure autour de quatre thèmes de recherches principaux :

- Reconstitution de l’histoire de l’enfouissement du bassin lorrain pour comprendre la répartition et affiner l’estimation de la distribution de la ressource gazière
- Définition de l’organisation des blocs structuraux du bassin houiller pour comprendre l’organisation de la fracturation et proposer un guide de prospection des forages
- Modélisation numérique du phénomène de désorption du méthane et de récupération assistée du gaz le long des fractures
- Compréhension des échanges gazeux entre CO_2 et méthane dans le cadre d’une injection de CO_2 dans les couches de charbon.

Ces quatre axes de recherche s'intègrent dans un workflow complet d'exploration des ressources énergétiques du Carbonifère lorrain, allant de l'identification des ressources à l'évaluation de leur exploitabilité et des impacts potentiels. La particularité de REGALOR réside dans son approche holistique, intégrant non seulement les aspects géoscientifiques mais aussi sociologiques. En effet, le projet inclut des études sur l'acceptabilité sociale de l'exploitation potentielle du CBM, reconnaissant l'importance cruciale de l'adhésion des populations locales pour le succès de tels projets énergétiques. L'objectif final de REGALOR est de fournir une base scientifique solide pour éclairer les discussions et les prises de décision concernant l'exploitation potentielle de cette ressource énergétique non conventionnelle. Ce faisant, le

projet contribue à positionner la région lorraine à l'avant-garde de la recherche sur les énergies alternatives et la transition énergétique.

I.2 Contexte scientifique de la thèse ‘‘Nature, distribution et potentiel gazier des charbons et roches-mères du bassin carbonifère de Lorraine : contribution à l’estimation des ressources en gaz’’

I.2.1 Évolution des recherches géologiques dans le bassin lorrain

L'histoire de la recherche géologique dans le bassin lorrain s'étend sur près d'un siècle, marquée par des avancées significatives dans la compréhension de sa structure et de son potentiel économique. Les premiers travaux majeurs remontent aux synthèses de Pruvost (1934) qui a établi une description détaillée des environnements de dépôt. Cette base a été considérablement enrichie par Donsimoni (1981), qui a réalisé une synthèse géologique des données d'exploration minière issues de 400 puits de forage, établissant une calibration stratigraphique précise basée sur des marqueurs paléofloristiques et des horizons de "tonsteins". Les années 1980 ont vu se développer des études sur les environnements de dépôt et la maturité de la matière organique, notamment avec les travaux d'Heckel (1988). Parallèlement, le bassin de la Sarre (Allemagne), prolongement oriental du bassin lorrain, a fait l'objet d'études approfondies sur le remplissage sédimentaire et la reconstitution des environnements de dépôts permo-carbonifères (Schäfer, 1989, 2011). De plus, des modèles de paléo-thermicité ont été élaborés (Littke et al., 2000). La thermicité du bassin a été étudiée par Alpern (1966, 1969), Heckel (1988) et plus récemment par Courel et Liu (1991). Les années 1990 ont marqué un tournant avec les recherches de Conoco-Phillips sur le gaz de charbon, générant de nouvelles données de forages et de profils sismiques. Ces travaux ont permis d'affiner la compréhension des faciès et des séquences du Westphalien C et D (Fleck, 2001; Izart et al., 2005; Izart, 2007). Plus récemment, la recherche de gaz de charbon a été reprise par la FDE (anciennement EGL, European Gas Limited). Les travaux d'Izart et al. (2016) constituent la dernière synthèse majeure de l'histoire de l'enfouissement à l'échelle 1D pour l'ensemble des forages du bassin houiller lorrain.

I.2.2 Objectifs de la thèse

L'évaluation des volumes d'hydrocarbures dans les bassins sédimentaires repose sur l'application de méthodes d'exploration bien établies dans l'industrie pétrolière. Cela nécessite l'intégration de différentes approches, allant de la sédimentologie à la géochimie organique, en passant par les diagraphies et la compilation d'analyses pétrographiques.

Le sujet de cette thèse consiste à évaluer le CBM en tant que nouvelle ressource énergétique, se distinguant des hydrocarbures conventionnels, tant dans le cadre de l'exploration pétrolière que dans son application en ingénierie réservoir (phase d'exploitation). Cette ressource, généralement présente dans les bassins continentaux à environnement de dépôt fluvio-lacustre, se caractérise par des dépôts très hétérogènes et des séquences sédimentaires riches en matière organique, nécessitant des approches sédimentologiques spécifiques. Les méthodes diagraphiques appliquées aux formations argileuses marines des bassins pétroliers sont généralement dérivées des lois empiriques propres à ces environnements, exigeant des ajustements pour les bassins continentaux.

Parmi ces bassins, le bassin carbonifère lorrain, sujet de cette étude, se distingue en tant que bassin continental intramontagneux à environnement de dépôt fluvio-lacustre, caractérisé par une succession de séquences de dépôts de matière organique de type III. Cette étude contribue à l'évaluation des volumes de CBM générés tout au long de l'histoire thermique, en appliquant des démarches adaptées pour évaluer cette nouvelle ressource énergétique.

La complexité lithologique du bassin carbonifère, traduite par la distribution des teneurs en matière organique en fonction de la variabilité des environnements de dépôt dans le système fluvio-lacustre, nécessite une stratégie d'échantillonnage adaptée à ce contexte. Cela implique de se baser sur les différents éléments constituant l'architecture sédimentaire, leur interprétation en termes d'environnements de dépôts (les chenaux, lobes de crevasse, plaines d'inondation, marécages) tout en y intégrant les propriétés de la matière organique (des couches de charbons aux argilites en passant par tous les intermédiaires entre les charbons argileux et les argiles charbonneuses). Le protocole implique donc une complémentarité d'études sédimentologiques, diagraphiques, pétrographiques, géochimiques selon des analyses réalisées sur les carottes des forages dans l'ensemble du bassin, selon les thèmes suivants :

- La caractérisation des environnements de dépôt et des volumes des faciès
- La description et la quantification de la distribution de la matière organique dans les forages
- La caractérisation des propriétés pétrographiques et géochimiques de la matière organique, afin d'évaluer les potentiels gazier des faciès.
- L'étude de l'expression du potentiel gazier à travers des bilans géochimiques sur la matière organique dans les forages et par maturation artificielle

- La comparaison avec les évaluations de saturation *in-situ* et les mesures de désorption en gaz des charbons afin d'effectuer un bilan gazier à l'échelle des forages

Ce mémoire s'articule autour de trois parties principales. La partie objets et méthodes présente le contexte et l'état des connaissances du bassin carbonifère sarro-lorrain, ainsi que la méthodologie employée dans cette étude. La partie des résultats obtenus met en lumière les points clés du potentiel pétrolier du bassin. Enfin, la partie bilan dresse une synthèse globale des résultats et évalue le potentiel gazier à l'échelle des forages.

Partie II : Objets et méthodes

Cette partie présente le contexte géologique du bassin carbonifère sarro-lorrain, suivi d'un état des connaissances sur les différents environnements de dépôt du remplissage sédimentaire. Le processus de formation du charbon sera rapidement évoqué suivi d'un état des lieux de la classification des charbons lorrains. La paléothermicité du bassin, impliquée dans la génération du gaz de charbon (CBM), sera également discutée. Les workflows d'évaluation de ce gaz dans l'ingénierie des réservoirs CBM et pour l'exploration des ressources seront présentés. La section matériel et méthodes détaille les différents forages et échantillons étudiés, ainsi que les formats des données disponibles (carottes, diagraphies). Les diverses analyses effectuées sur la matière organique seront présentées, incluant l'analyse Rock-Eval, les analyses élémentaires, la pétrographie organique, les analyses cinétiques et la maturation artificielle. La dernière section de ce chapitre aborde les analyses de diffraction X réalisées sur roche totale et sur la fraction argileuse.

Partie III : Résultats

Cette partie présente les résultats clés permettant d'établir le bilan du potentiel pétrolier du bassin. Certain ces résultats sont exposés sous forme d'articles scientifiques :

1. La caractérisation des environnements de dépôt et l'estimation des volumes de gaz in situ dans le Carbonifère supérieur du bassin lorrain

Ce premier volet de la recherche s'appuie sur l'intégration de deux thèmes. Le premier concerne des résultats issus de la sédimentologie, basée sur les descriptions de carottes, dans le but de caractériser les éléments architecturaux des environnements fluvio-lacustres. Cette approche inclut l'utilisation des diagraphies pour identifier les différents environnements de dépôt, ainsi

que pour spécifier les caractéristiques pétrophysiques, notamment le calcul des volumes d'argilite, l'estimation de la porosité effective dans les faciès charbonneux et les potentiels réservoirs gréseux. Le deuxième volet de cette recherche englobe l'application de workflows utilisés dans l'ingénierie de réservoir du Coal Bed Methane (CBM) pour déterminer la teneur en gaz du charbon en se basant sur la géophysique des forages. Les diagraphies sont utilisées pour estimer le volume de gaz adsorbé dans le charbon.

2. L'estimation des teneurs en carbone organique total en utilisant les diagraphies dans les environnements de dépôt fluvio-lacustres du bassin carbonifère lorrain

Ce deuxième volet de la recherche s'articule autour de la détermination d'un paramètre essentiel pour l'évaluation du potentiel gazier des formations sédimentaires, à savoir la teneur totale en carbone organique (TOC). Les mesures conventionnelles de TOC en laboratoire, généralement effectuées par l'analyse Rock-Eval sont obtenues de manière discontinue le long des profils sédimentaires ou nécessitent un très grand nombre de prélèvements d'échantillons (un tous les 50cm, ce qui était hors de portée dans le cadre de cette thèse). Afin de pallier à ces limitations, des méthodes exploitant les signaux géophysiques de puits sont appliquées. Ces méthodes, fréquemment utilisées dans les bassins à dépôts marins, sont rarement appliquées aux dépôts fluvio-lacustres charbonneux. L'objectif de cette partie de la thèse est de calibrer les méthodes de Schmoker, delta log R ainsi qu'une régression multivariée, en se basant sur deux puits de référence, [Folschviller (Fols 1A) et Diebling (Dbl S1)], afin de calculer le TOC tout le long des puits. Ces méthodes sont ensuite appliquées à divers autres forages pour lesquels des données diagraphique sont disponibles.

3. La caractérisation pétrographique et géochimique des charbons et roches-mères du bassin carbonifère lorrain.

Le troisième volet de l'étude repose sur l'utilisation des caractéristiques géochimiques et pétrographiques organiques pour décrire les roches mères du bassin houiller lorrain. L'intégration des résultats de la pétrographie et de la géochimie organiques contribue à l'élaboration d'une relation entre la qualité de la matière organique et l'environnement de dépôt. L'évaluation de ces roches mères est ainsi une clé pour appréhender le potentiel pétrolier du bassin et les propriétés de génération d'hydrocarbures en fonction des environnements de dépôt. Des techniques telles que l'analyse Rock-Eval, les analyses élémentaire et macérale fournissent

des données essentielles pour définir la richesse en kérogène, la maturité thermique et le potentiel pétrolier.

Partie VI. L'établissement du bilan gazier par forage

Ce dernier chapitre vise à synthétiser les éléments d'information fournis par les chapitres précédents, tels que la teneur en matière organique, le type de kérogène et le potentiel pétrolier des échantillons étudiés. L'objectif est également de calibrer les méthodes permettant d'établir le bilan gazier à l'échelle d'un puits ou d'un ensemble de puits corrélés. Cette étape implique de comparer les volumes générés et de les confronter aux saturations des volumes actuels, afin d'estimer les volumes de gaz potentiellement expulsés dans le bassin. Cette démarche nous donnera des indications sur l'efficacité du système gazier. Dans cette partie de l'étude, une première approche consiste à utiliser les données Rock-Eval en les couplant avec les données géophysiques des puits, en se basant sur les informations relatives au TOC. La deuxième méthode implique le calcul direct des volumes de gaz générés à partir de la maturation artificielle d'échantillons immatures pour les lithologies représentant les différentes variétés de roches-mères. Cette méthode permet également de déterminer la composition des gaz générés pendant l'enfouissement du bassin lorrain.

Ce mémoire se termine par une partie **Conclusions et perspectives** qui rappellent les résultats majeurs concernant l'analyse des environnements de dépôt, l'évaluation des volumes de gaz in situ, et la quantification de la matière organique (COT) du bassin carbonifère lorrain. Cette partie finale intègre également une évaluation approfondie de la qualité des roches mères et une estimation du potentiel pétrolier global du bassin. Cette section examine aussi les différentes perspectives qui en découlent, les possibilités d'application des nouvelles technologies dans le bassin lorrain, ainsi que les opportunités d'exploration de nouvelles ressources associées au gaz de charbon.

Deuxième partie

Objets et méthodes

II.1 Contexte géologique du bassin carbonifère lorrain

Sommaire

II. OBJETS ET METHODES 37

II.1 Contexte géologique du bassin carbonifère lorrain ---------- 37

II.1.1 Cadre géographique 37

II.1.2 Situation du bassin carbonifère sarro-lorrain dans la chaîne hercynienne 38

II.1.3 Cadre Litho-stratigraphique du bassin carbonifère Sarro-Lorrain 39

II. Objets et méthodes

II.1 Contexte géologique du bassin carbonifère lorrain

II.1.1 Cadre géographique

Le bassin houiller sarro-lorrain est localisé à la frontière entre la France et l'Allemagne, au sud-est du Luxembourg. Il s'étend sur environ 300 kilomètres de longueur suivant une direction SW-NE et sur une largeur de 100 kilomètres (Donsimoni, 1981; Izart et al., 2016; Hemelsdaël et al., 2023) (Figure II.1.1). Le bassin est délimité au nord par la zone de faille de Metz orientée NE (Donsimoni, 1981) et du Hunsrück (Schäfer, 2011) en Lorraine et en Sarre respectivement. Au sud, la limite est définie par une ligne passant par Sarrebourg et Gironcourt, tandis qu'à l'ouest, le bassin est bordé par le grand accident de la vallée de la Marne. Ces limites sont corroborées par des données gravimétriques et aéromagnétiques (Donsimoni, 1981). En Lorraine, le bassin houiller est entièrement recouvert par le mésozoïque du bassin sédimentaire de Paris, formant ainsi une partie de son socle (Izart et al., 2016). En revanche, en Sarre, les formations carbonifères sont affleurantes (Schäfer, 2011)

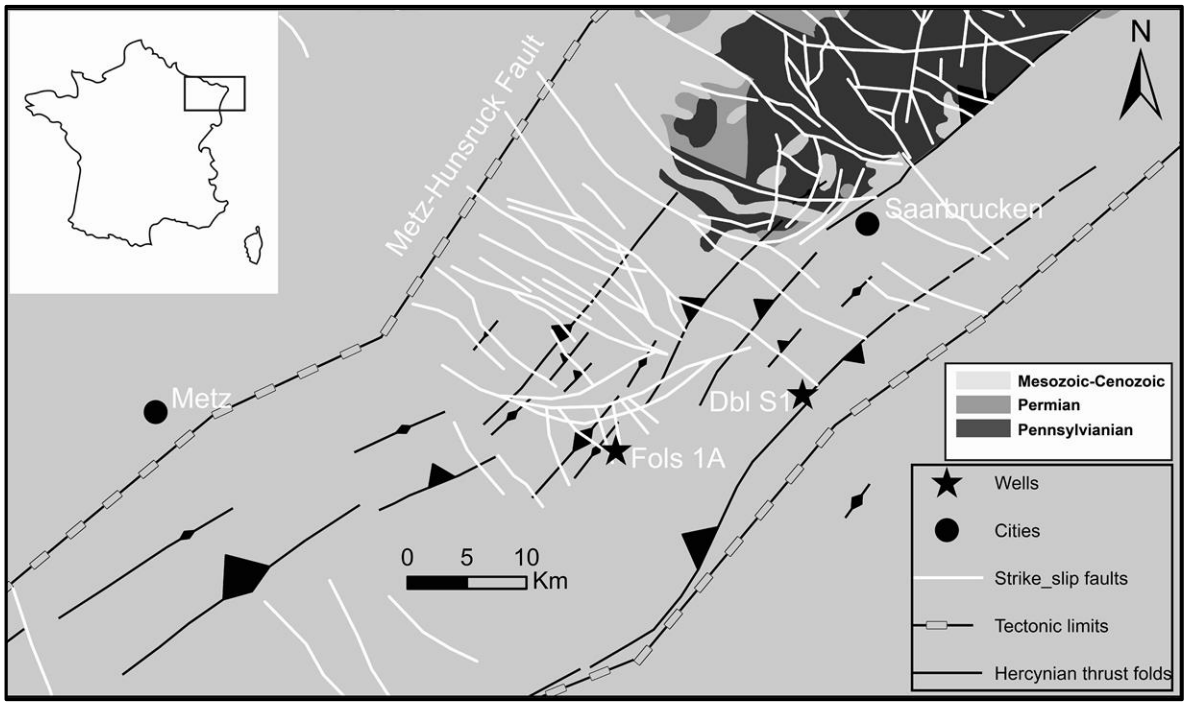


Figure II.1.1 : Carte géologique du bassin carbonifère sarro-lorrain d'après Donsimoni (1981) et Schäfer (2011).

II.1.2 Situation du bassin carbonifère sarro-lorrain dans la chaîne hercynienne

Le bassin carbonifère sarro-lorrain s'est formé sur le socle cristallin appelé Mid-German Crystalline High (MGCH), témoins de la subduction liée à la fermeture de l'océan Rhénohercynien（Franke et al., 2000). Au nord, ce bassin est séparé du bassin houiller du Nord et du Pas-de-Calais par l'unité Rhénohercynienne, délimitée par la suture de la faille MIDI au nord et la suture Metz-Hunsrück fault (ZFMH) au sud（Donsimoni, 1981). Cette unité représente le prisme orogénique déformé et métamorphisé de cette subduction-collision. Au sud, la limite du bassin Westphalien coïncide avec la limite Nord de l'unité Saxothuringienne（Franke et al., 2000). À l'est, le bassin est recoupé par fossé rhénan, tandis qu'à l'ouest, sa limite est un accident hercynien connue sous le nom de la faille de la Marne en surface（Donsimoni, 1981; Izart et al., 2016) (Figure II.1.2).

L'orogenèse hercynienne débute par la subduction de la Laurussia sous le Gondwana à partir de 400 Ma (Dévonien moyen). La région commence à être affectée à partir de la collision vers 345 Ma, au Viséen, donnant naissance à la chaîne hercynienne. Cette collision plisse la région et engendre de nombreux chevauchements, notamment la faille de Metz et son prolongement en Sarre, la faille du sud Hunsrück（Donsimoni, 1981).

La subsidence de la zone cristalline externe crée un bassin dont l'altitude est inférieure à 1000 mètres, illustrant une dépression houillère interne typique （Pruvost, 1934). Le régime tectonique responsable de l'initiation de cette subsidence reste sujet à débat jusqu'au présent (Hemelsdaël et al., 2023). Trois hypothèses ont été evoquées, une subsidence el lien avec de grand décrochement le long de la faille de Metz-Hunsruck, un mouvement retro-chevauchant, ou un mouvement extensif du bassin qui se remplit progressivement pendant le Westphalien (315 à 305 Ma) et le Stéphanien (305 à 300 Ma) par des apports fluviatiles des reliefs voisins. Pendant le Stéphanien, les conditions climatiques et sédimentaires ne sont plus propices à la formation de couches houillères, mais la subsidence continue jusqu'au Stéphanien inférieur en Lorraine et en Sarre jusqu'à l'Autunien (300 à 290 Ma) avant que la sédimentation ne s'arrête.

Pendant le Permien, la phase saalienne de l'orogenèse hercynienne déforme la région, entraînant la formation d'anticlinaux NE-SW, de chevauchements et de cisaillements N-S (Donsimoni, 1981). D'autres auteurs ont montré que le plissement dans le bassin commence plus tôt, pendant le Westphalien en lien avec la phase asturienne (Pruvost, 1934; Hemelsdaël et al., 2023) et pendant le Stéphanien inférieur en lien avec la phase Franconienne (Engel, 1988; M. Mombo,

communication personnelle). Pour Hemelsdaël et al. (2023), la phase asturienne et la phase saalienne sont séparées par un régime extensif pendant le Stéphanien qui témoigne de l'effondrement post-orogénique, qui se poursuit pendant le Permien avec du volcanisme. Plus tard, au début du Tertiaire, l'orogenèse alpine provoque d'importantes déformations en Lorraine, avec la formation de plis de grande longueur d'onde et d'amplitude significative (Donsimoni, 1981).

En somme, le bassin Lorrain est un bassin intramontagneux qui se met en place pendant la fin de l'orogenèse hercynienne et le début de son effondrement. Il a été affecté par plusieurs évènements tectoniques qui rendent complexe la compréhension globale de son initiation et son évolution. Le débat sur l'origine tectonique du bassin, sur le timing de plissement dans le bassin, et l'enregistrement d'une extension pendant le Stéphanien reste donc ouvert à ce jour.

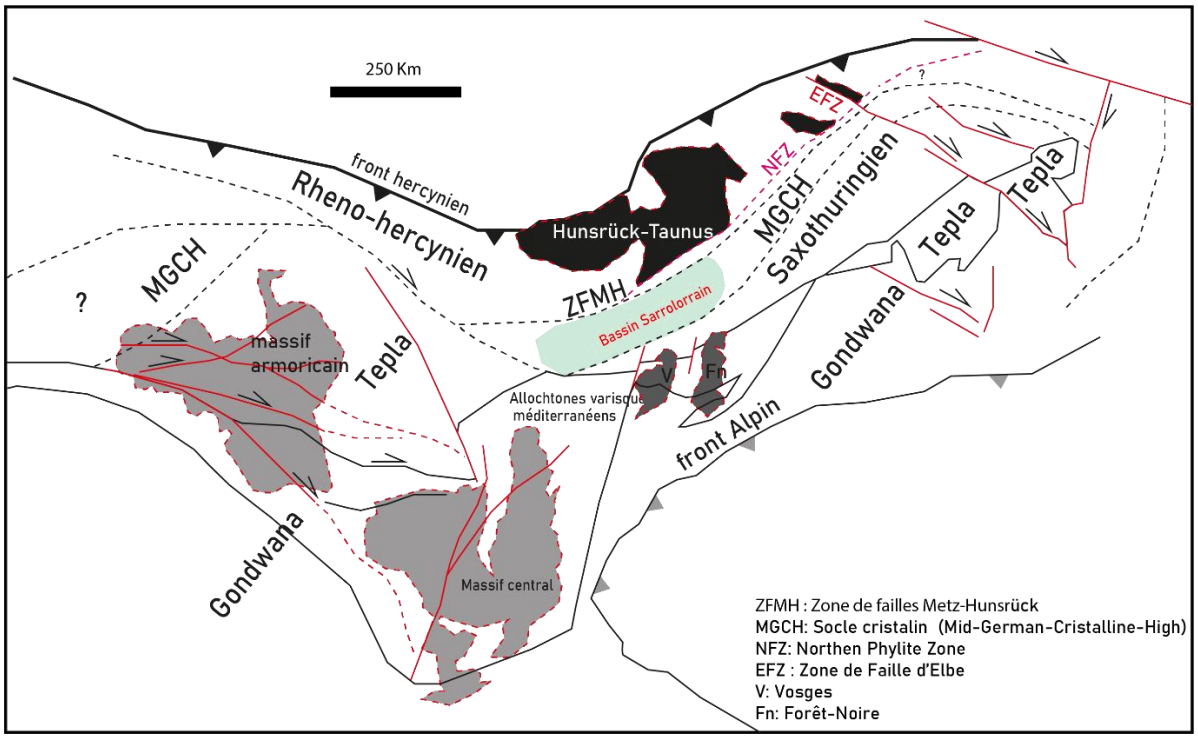


Figure II.1.2: Localisation du bassin carbonifère sarro-lorrain dans la chaine hercynienne.

II.1.3 Cadre Litho-stratigraphique du bassin carbonifère Sarro-Lorrain

Le bassin houiller sarro-lorrain a connu une subsidence significative, permettant une accumulation sédimentaire importante de presque 8 km (Donsimoni, 1981; Hemelsdaël et al., 2023). Les synthèses stratigraphiques et les caractéristiques sédimentologiques des séries permo-carbonifères ont été principalement établies dans le cadre de la prospection des mines de charbon (Pruvost, 1934), la plus récente étant celle de Donsimoni (1981). L'échelle

stratigraphique dans le bassin lorrain repose sur trois critères principaux : la répartition de la macroflore, la palynologie et les tonsteins (cendres volcaniques) (Donsimoni, 1981). Ces critères servent de limites conventionnelles entre les différents faisceaux qui caractérisent les étages carbonifères et permettent de faire la corrélation à l'échelle du bassin.

Le remplissage sédimentaire du bassin houiller lorrain se divise principalement en deux séries majeures : le Westphalien et le Stéphanien. Le Westphalien, d'une épaisseur totale d'environ 4000 mètres, est caractérisé par une centaine de couches de charbon dont l'épaisseur varie de quelques centimètres à quatre ou cinq mètres, atteignant parfois quinze mètres pour les plus épaisses (Donsimoni, 1981). Ces couches de charbon sont intercalées au sein d'une séquence complexe composée d'argilites, de siltites, de grès et de conglomérats. Le Westphalien est subdivisé en quatre formations : le Westphalien A, B, C et D, lesquels sont traversés par des sondages comme Gironville 101 en Lorraine et Saar 1 en Sarre.

Quant au Stéphanien, il comprend environ 1100 mètres de dépôts et renferme quatre couches de charbon (Donsimoni, 1981). Le Stéphanien lorrain se distingue par sa couleur rouge bariolée dans la partie inférieure et les couches de charbon y sont également intercalées dans une série d'argilites grises, de siltites, de grès et de conglomérats. La transition entre le Westphalien et le Stéphanien est marquée par le conglomérat de Holz. Selon Donsimoni (1981) les lacunes sédimentologiques majeures correspondent à des périodes d’érosion significative en lien avec les phases de déformations que le bassin a enregistré (Figure II.1.3).

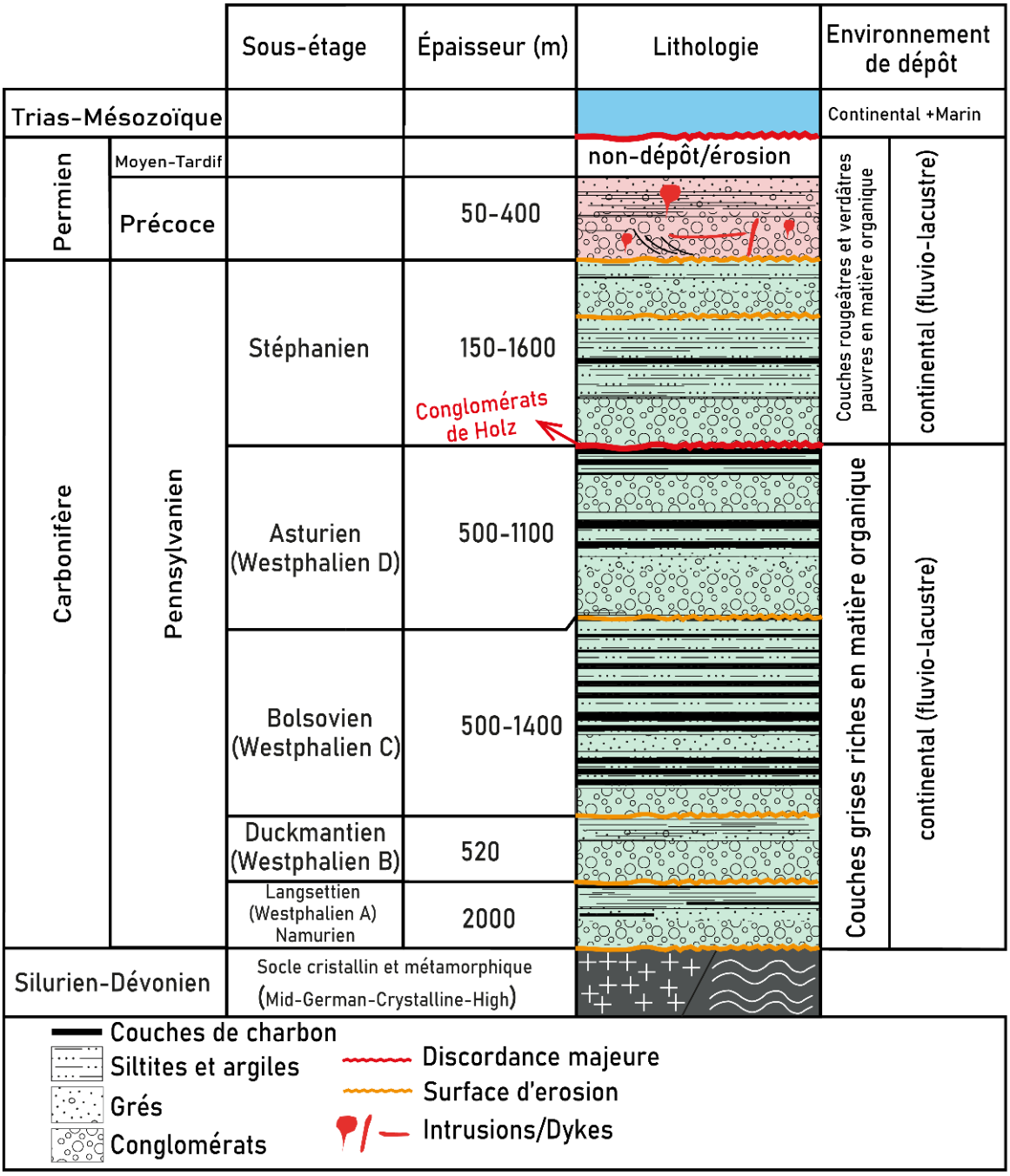


Figure II.1.3: Cadre litho-stratigraphique du bassin carbonifère sarro-lorrain d'après Donsimoni (1981), Izart et al. (2016) et Schäfer (2011).

II.2 Etat des connaissances

Sommaire

II.2 Etat des connaissances---------- 45
II.2.1 Les environnements de dépôt dans le bassin lorrain 45
II.2.1.1 Les environnements de dépôt des séries carbonifères du bassin sarro-lorrain..... 45
II.2.1.1.1 Les cônes alluviaux..... 46
II.2.1.1.2 Les environnements fluviatiles 47
II.2.1.1.3 Les environnements lacustres: 52
II.2.1.2 Les éléments architecturaux associés à l'environnement de dépôt fluvio-lacustre dans le bassin lorrain ……55
II.2.1.2.1 Les chenaux 55
II.2.1.2.2 Les lobes de crevasse..... 56
II.2.1.2.3 Les plaines d'inondation..... 56
II.2.1.2.4 Les marécages à "couches de charbon" 57
II.2.1.3 Synthèse de paléo-environnements de dépôts dans le bassin lorrain..... 57
II.2.2 Le charbon comme roche source..... 59
II.2.2.1 Formation des tourbes et processus de transformation de la matière organique..... 60
II.2.2.2 Classification des charbons lorrains 61
II.2.2.2.1 Le rang du charbon lorrain et les analyses immédiates..... 61
II.2.2.2.2 Caractéristique pétrographique du charbon lorrain 64
II.2.2.2.3 Pourcentage de réflectance de la vitrinite (%Ro)..... 66
II.2.2.3 Thermicité et paléo-enfouissement dans le bassin houiller lorrain..... 69
II.2.2.3.1 Thermicité pendant le Mésozoïque..... 72
II.2.2.3.2 Thermicité pendant le Paléozoïque..... 72
II.2.2.4 Génération de gaz de charbon 74
II.2.3 Ingénierie des réservoirs de gaz de charbon..... 76
II.2.3.1 Étude de la porosité dans les couches de Charbon 77
II.2.3.2 Méthodes de mesure et comportement des réservoirs de gaz de charbon..... 78
II.2.3.3 Évaluation de la Capacité d'Adsorption du Charbon et de Réserves du Gaz dans le Bassin Houiller Lorrain..... 80
II.2.3.4 Utilisation des diagraphies pour l'ingénierie et l'Exploration du gaz de charbon : 81
II.2.3.4.1 Les diagraphies 81
II.2.3.4.2 Évaluation des réservoirs de gaz de charbon (CBM)..... 84
II.2.3.4.3 Détermination du contenu en carbone organique total (COT)..... 86

II.2 Etat des connaissances

II.2.1 Les environnements de dépôt dans le bassin lorrain

Dans cette section sont présentés les divers travaux entrepris dans le bassin carbonifère lorrain, où les modèles de sédimentation fluviatile résultent de la combinaison d'observations morphologiques des rivières modernes et de l'interprétation des séquences de dépôts anciennes. Les travaux réalisés dans le bassin lorrain reposent sur ces principes en examinant les échantillons de sédiments prélevés par carottage, en définissant des types d'assemblages faciologiques et en proposant des séquences lithologiques permettant d'identifier des environnements de dépôt spécifiques.

Donsimoni (1981) a entrepris une synthèse géologique significative du bassin lorrain en se basant sur des données d'exploration minière provenant de 400 puits de forage situés dans la zone d'exploitation du charbon des Houillères du bassin lorrain (HBL). Cette approche a permis d'obtenir une calibration stratigraphique précise en utilisant des marqueurs tels que les paléoflores et les horizons de "tonsteins". Cette démarche s'est appuyée sur les premières tentatives de description des environnements de dépôt réalisées par Pruvost (1934), notamment dans le cadre de l'étude du faisceau de Steinbesch. Une seconde tentative de reconstitution des environnements de dépôts du Westphalien D dans la zone d'exploitation des HBL a été entreprise, notamment par Heckel (1988), essentiellement sur le faisceau de Steinbesch. Simultanément, du côté allemand, le bassin de la Sarre, considéré comme le prolongement oriental du bassin lorrain, a fait l'objet d'études du remplissage sédimentaire et de reconstitution des environnements de dépôts à l'origine des formations permo-carbonifères (Schäfer, 1989; Schäfer, 2011).

Des recherches plus récentes sur les cibles de gaz de charbon, menées par Conoco-Phillips en 1995, ont généré de nouvelles données sous la forme de forages et de profils sismiques. Ces travaux ont permis d'identifier des faciès et des séquences à partir de carottes et de diagraphies, contribuant ainsi à la reconstitution des environnements de dépôt du Westphalien C et D dans l'ensemble du bassin (Palain, 1995; Fleck, 2001; Izart et al., 2005; Izart, 2007)

II.2.1.1 Les environnements de dépôt des séries carbonifères du bassin sarro-lorrain

Compte-tenu du contexte paléogéographique durant le Carbonifère dans le bassin sarro-lorrain (Schäfer, 1989; Henk, 1993; Korsch & Schäfer, 1995; Von Seckendorf et al., 2004; Hemelsdaël

et al., 2023), tous les environnements de dépôt appartiennent au milieu continental. Il s'agit pour l'essentiel de dépôts alluviaux variés.

II.2.1.1.1 Les cônes alluviaux

Les cônes alluviaux sont des accumulations de matériaux clastiques continentaux, souvent de grande taille, qui se forment au pied de reliefs soumis à l'érosion. Dans le bassin sarro-lorrain, ce type de dépôt a été reconnu dans le faisceau de Steinbesch (Westphalien D). Ils sont représentés majoritairement par des faciès gréso-conglomératiques à matrice argilo-gréseuse voire microconglomératique (Heckel, 1988). Dans le forage de Chaumont (Westphalien C et D), deux types de lithofaciès distincts ont été définis (Fleck, 2001; Izart et al., 2005) : i) des faciès de conglomérats à grains flottants, constitués de clastes de quartz anguleux à légèrement émoussés, dans une matrice (faciès "matrice-support"), associés à des coulées de boue ; ii) un faciès de conglomérats à grains jointifs (faciès grain-support"), renfermant également des clastes de quartz anguleux à émoussés. Certains horizons sont relativement massifs sans structuration apparente, tandis que d'autres montrent un litage fruste sub-horizontal et localement des imbrications. Ces cônes alluviaux sont disposés en marge du bassin le long de faille, comme par exemple sur la bordure nord-ouest où ils ont été reconnus dans le forage de Chaumont (Izart et al., 2005), ou sur la bordure nord-est du bassin en Sarre, avec une extension maximale de 0,5 à 1 km vers le centre du bassin. Ces environnements de dépôt à forte énergie (conglomérats majoritairement) sont discontinus latéralement (Palain, 1995), et interfèrent avec les environnements fluviatiles et lacustres du bassin (Schäfer, 2011). Les faciès décrits ci-dessus sont bien illustrés dans l'exemple du conglomérat de Holz (limite Westphalien D-Stéphanien), dont l'épaisseur varie de 5 à 53 mètres et s'étend sur 85 km de l'est de la Lorraine à la région de Kusel en Allemagne, marquant ainsi une discordance majeure entre le Westphalien riche en charbon et le Stéphanien (Figure II.2.1). Les clastes du conglomérat de Holz proviennent des formations dévoniennes de l'Hunsrück (partie méridionale du Massif schisteux rhénan) au nord et du socle paléozoïque des Vosges au sud.

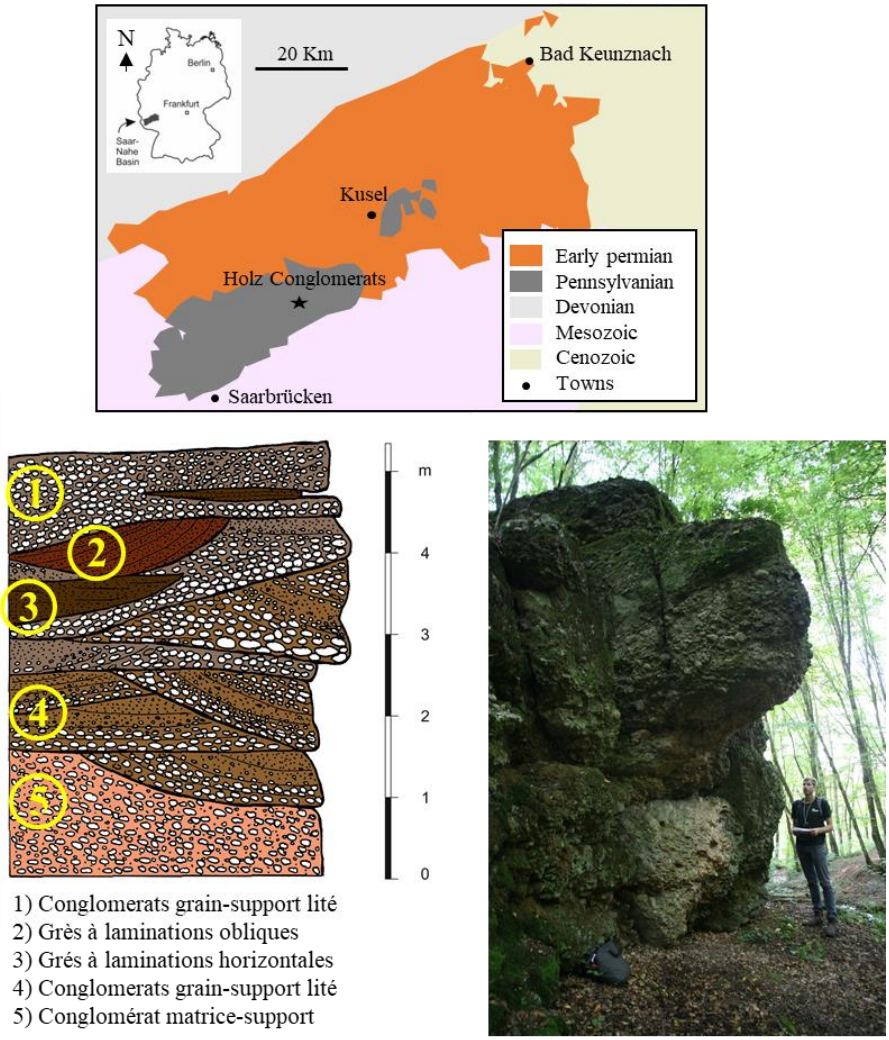


Figure II.2.1: Faciès du conglomérat de Holz (Localité de Holz, Sarre, Allemagne) modifié d'après Voigt et al. (2019).

II.2.1.1.2 Les environnements fluviatiles

Les séries fluviatiles résultent du développement et de l'action des cours d'eau tels que les rivières et les fleuves dans les plaines alluviales. Ils se caractérisent par la diversité du nombre, de la forme, de la taille et de la composition des chenaux qui transportent les sédiments. Ces environnements de dépôts fluviatiles sont souvent largement représentés dans le bassin sarro-lorrain (Donsimoni, 1981; Heckel, 1988; Schäfer, 1989, 2011; Palain, 1995; Fleck, 2001; Izart et al., 2005). Ils constituent l'unité intermédiaire du système de remplissage continental et témoignent d'une transition dans le temps et l'espace entre la zone de sédimentation proximale (les cônes alluviaux) et la zone de sédimentation distale (les deltas lacustres) d'après Fleck (2001). Les dépôts résultants ont été regroupés en trois types majeurs :

i) **les rivières en tresses** sont caractérisées par une succession de dépôts conglomératiques et gréseux massifs en Lorraine (Izart et al., 2005). Ce sont des dépôts marqués par la faible production et préservation des fractions silto-argileuses (les "schistes" des mineurs), caractéristique commune avec les séries équivalentes dans la Sarre (Schäfer, 1989). Les faciès grossiers (conglomératiques et gréseux) montrent systématiquement des contacts érosifs sur les dépôts fins sous-jacents. Les horizons de charbon sont rares. Dans la Sarre, on rencontre des successions répétées de chenaux constitués de conglomérats et de grès de granulométrie variable. L'ensemble montre une granodécroissance culminant avec de rares horizons silteux (Schäfer, 1989). Ces séquences élémentaires présentent une épaisseur totale variant de 5 à 20 m (Schäfer, 2011). La plupart du temps, on a des séquences élémentaires superposées d'épaisseur déca- à hectométrique, comme par exemple dans le Westphalien D du champ de La Houve-Vernejoul (Figure II.2.2). En diagraphies, ces dépôts sont caractérisés par des électrofaciès à signatures cylindriques (Palain, 1995; Izart et al., 2005). Compte-tenu de l'ensemble des critères précédents, l'environnement de dépôt est à rapprocher des rivières de type "deep gravel-bed braided" (Miall, 1996).

ii) **les rivières à méandres** (Figure II.2.3) caractérisées en Sarre par des séries de dépôts de chenaux débutant par des faciès conglomératiques et/ou gréseux auxquels succèdent des faciès de débordement et de plaine d'inondation de faible granulométrie (silts et argiles). La séquence lithologique montre une puissance plurimétrique (Schäfer, 1989; Izart et al., 2005, Privalov et al., 2022). On retrouve ce même type d'organisation en Lorraine, avec des chenaux gréseux à la base évoluant vers des faciès de plaine d'inondation, enregistrant une grano-décroissance. Ces systèmes méandriformes montrent des signaux diagraphiques à électrofaciès en forme en cloche dans les forages de Lorettes et Saulcy (Palain, 1995; Izart et al., 2005). L'ensemble des données permet de rapprocher l'environnement de dépôt du type "gravel-sand meandering" (Miall, 1996).

iii) **les rivières anastomosées** se situent plutôt en partie distale de la plaine alluviale fréquemment inondée. La vitesse du courant est faible, les sédiments sont granulométriquement fins et souvent riches en matière organique. Compte-tenu du caractère souvent agradant des chenaux, les diagraphies montrent des électrofaciès plutôt cylindriques, ressemblant à ceux des rivières en tresses (Izart et al., 2005). Néanmoins, en liaison avec le fort potentiel de préservation des faciès de débordement et de plaine d'inondation, on peut rapprocher cet environnement de dépôt du type "anastomosed" (Miall, 1996) (Figure II.2.4).

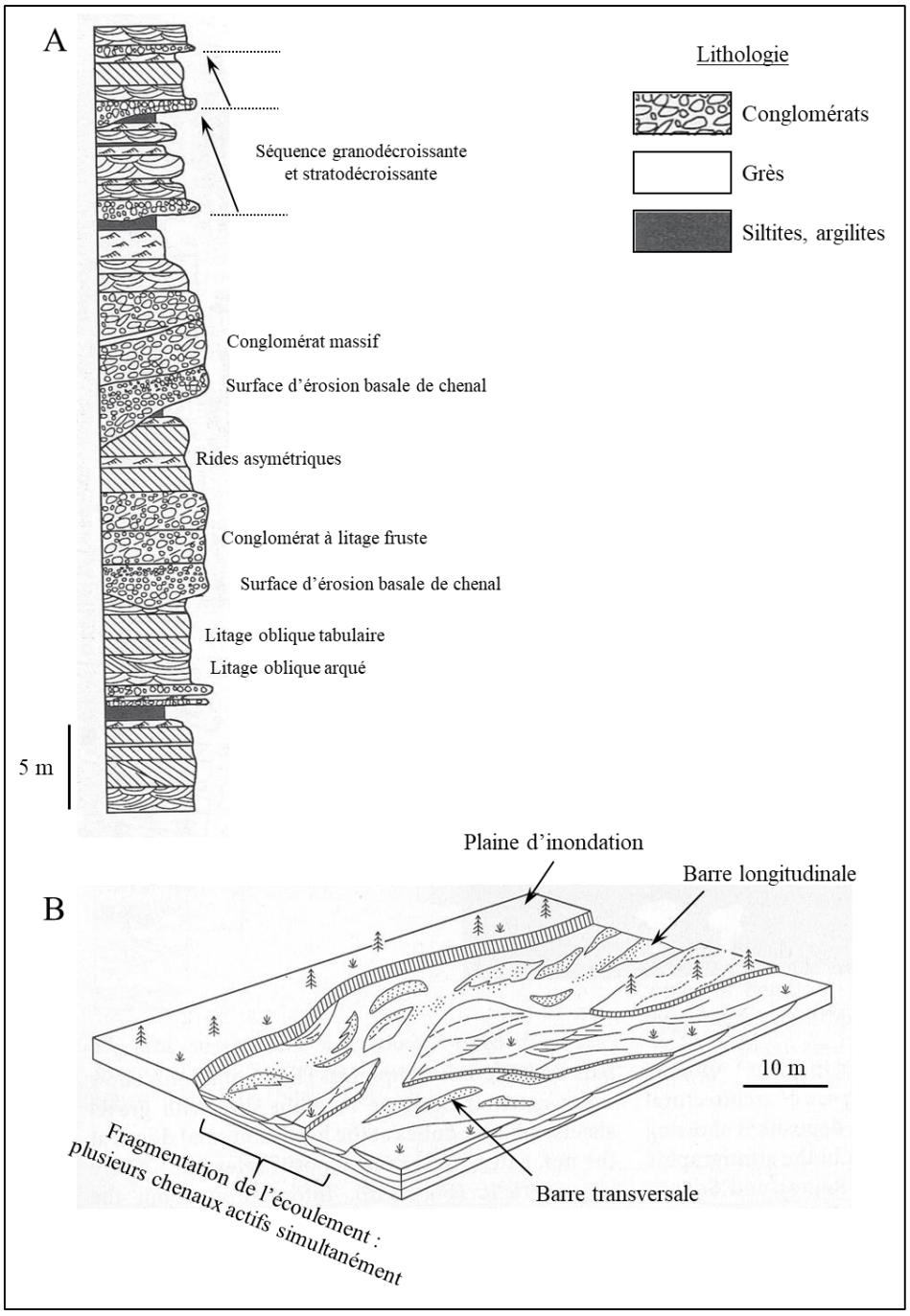


Figure II.2.2: Environnement fluviatile en tresses (type « deep-gravel braided », Miall, 1996). A : succession stratigraphique synthétique ; B : reconstitution tri-dimensionnelle.

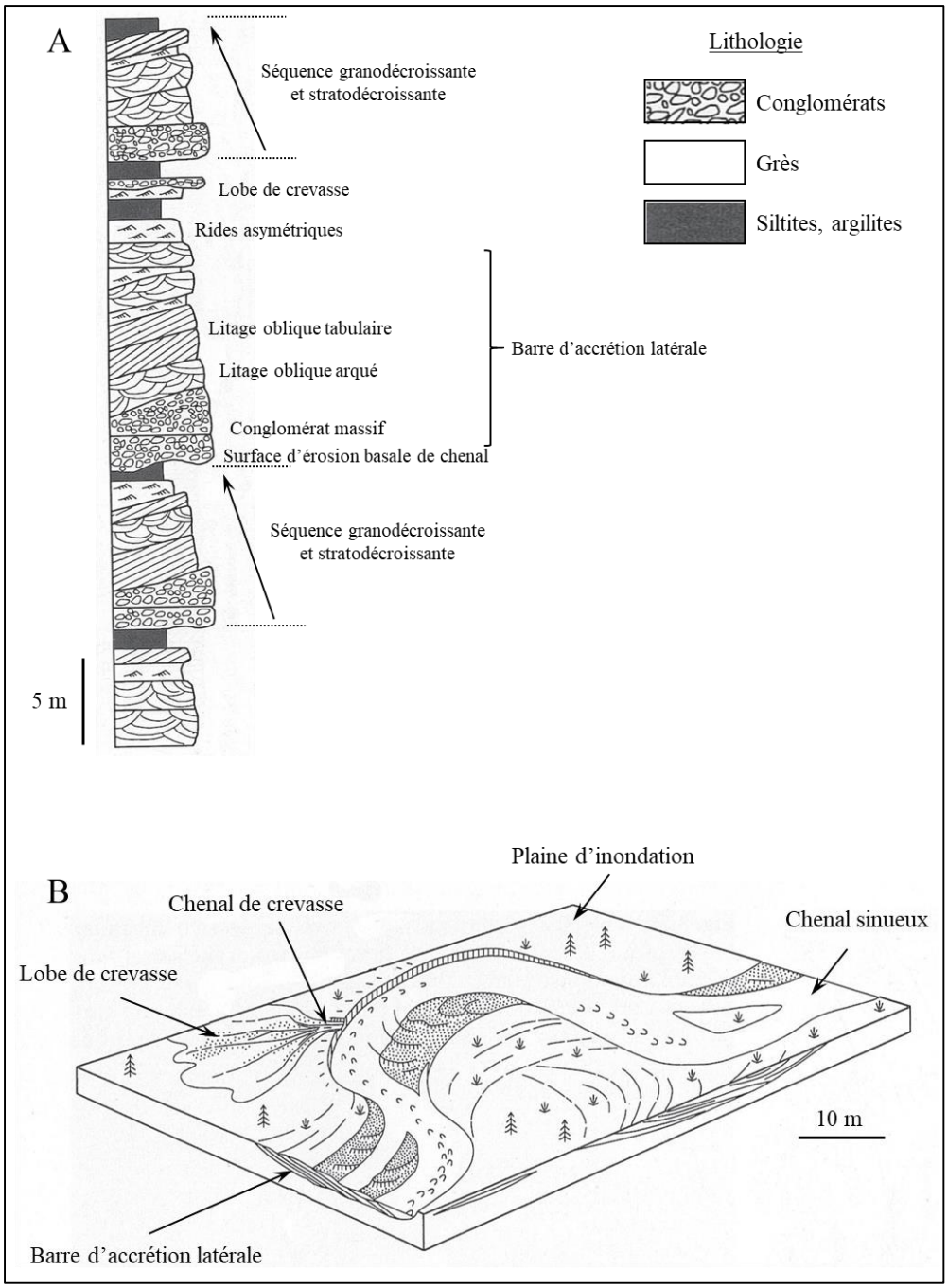


Figure II.2.3: Environnement fluviatile méandriforme (type « gravel-sand meandering », Miall, 1996)
A : succession stratigraphique synthétique ; B : reconstitution tri-dimensionnelle

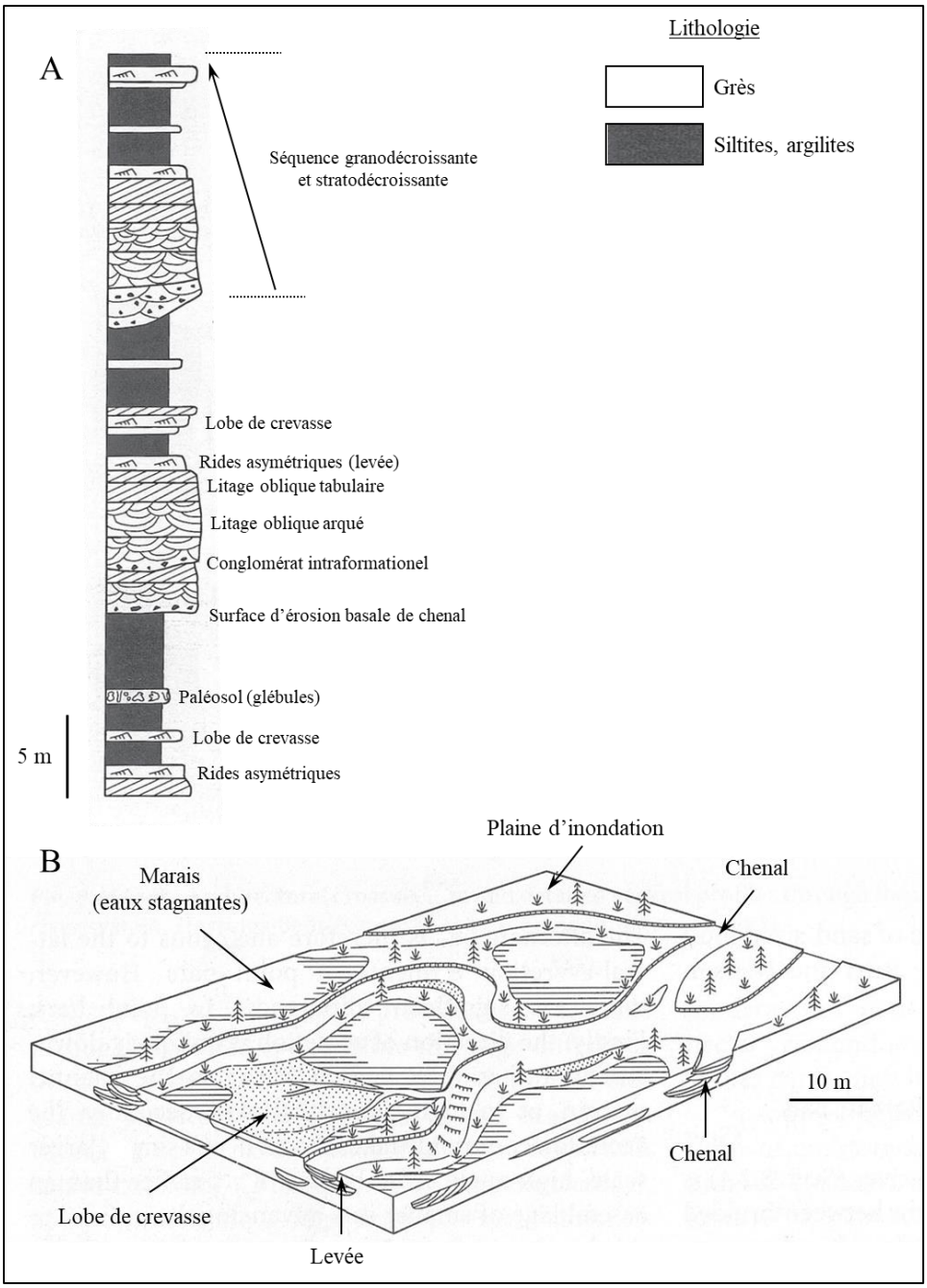


Figure II.2.4: Environnement fluviatile anastomosé (type « anastomosed », Miall, 1996)
A : succession stratigraphique synthétique ; B : reconstitution tri-dimensionnelle.

II.2.1.1.3 Les environnements lacustres:

Durant le Carbonifère, dans le bassin sarro-lorrain, les sédiments transportés par les cours d'eau arrivaient parfois dans un bassin récepteur lacustre. L'environnement deltaïque se forme à l'exutoire d'un bassin versant fluviatile. Cet environnement deltaïque caractérise le milieu proximal lacustre. Au fur et à mesure des apports sédimentaires détritiques par les rivières, le delta prograde et s'organise selon un schéma tripartite, avec du pôle proximal vers le pôle distal : la plaine deltaïque, le front de delta et le prodelta.

Les dépôts deltaïques sont majoritairement représentés par les faciès de plaine deltaïque (chenaux distributaires, levées, lobes de débordement), très similaires aux faciès fluviatiles.

En Lorraine, on retrouve surtout des faciès gréso-silteux, organisés en séquences granocroissantes (Figure II.2.5). Ces séquences ont été identifiées par Heckel (1988) dans le faisceau de Steinbesch au sommet du Westphalien D et par Fleck (2001) et Izart et al. (2005) (Figure II.2.5) dans le Westphalien C et D des forages de Saulcy et Lorettes. Ces séquences présentent du charbon à la base, puis des argilites, puis des argilites gréseuses et des grès argilo-silteux et enfin des grès au sommet (Figure II.2.5). Ces derniers montrent une stratification parfois lenticulaire, un litage ondulant localement perturbé par des figures de liquéfaction de type "convolutes" (Izart et al., 2005; Schäfer, 2011). Des séquences comparables sont décrites dans le Carbonifère supérieur en Sarre avec des grès fins à convolutes à la base, suivis par des litages plans horizontaux de haute énergie, puis de litages de rides. Ces séquences témoignent d'une sédimentation deltaïque proximale dans les lacs (Schäfer, 1989). Ces environnements deltaïques se différencient des "micro-deltas" associés à la progradation des lobes de crevasse dans les dépôts fluviatiles des rivières par leur épaisseur et leur extension latérale. En effet, les lobes de crevasse peuvent atteindre quelques mètres de puissance, tandis que les deltas peuvent dépasser plusieurs dizaines de mètres (Izart et al., 2005) voire des épaisseurs totales de plus de 50 mètres (Schäfer, 1989).

Les dépôts lacustres profonds ont été décrits dans le Westphalien C et D en Lorraine (Schäfer, 1989) présentent des séquences de plusieurs mètres d'épaisseur, caractérisées par une alternance de couches d'argiles sombres et de siltites plus claires, avec des structures d'allure "varvée". Cette alternance de couleurs et de faciès est interprétée comme le reflet de variations saisonnières entre des périodes sèches, avec des siltites pauvres en matière organique, et des

périodes humides, avec des argilites riches en matière organique (Izart et al., 2005). Ce même type de faciès a été observé dans le Permo-carbonifère de Sarre (Schäfer, 1989).

En Sarre, pendant le permo-carbonifère, on retrouve des faciès de lacs peu profonds constitués d'argiles et de grès fins. Ces faciès présentent des rides de courant directionnel, parfois des rides d'oscillation, des figures de dessiccation, et sont souvent associés à des paléosols, accompagnés de restes végétaux variés. On observe occasionnellement la formation d'oncoides en liaison avec le développement de stromatolithes (Schäfer, 1989), ainsi que des traces de pas de tétrapodes divers (Fichter, 1982). Ces faciès se sont déposés dans des lacs à fort taux de sédimentation, alimentés par des systèmes fluviatiles principalement méandriformes (Schäfer, 2011). En Lorraine, des lacs peu profonds ont été reconnus durant le Westphalien C et D, composés par des faciès d'argilites charbonneuse contenant des débris végétaux bien préservés. Ces faciès présentent des racines, révélant un faciès in situ typique de plaine deltaïque engorgée d'eau (Fleck, 2001; Izart et al., 2005).

Dans le Westphalien D (faisceau de Steinbesch), un type de dépôt singulier caractérise un environnement palo-lacustre où les dépôts de matière organique et minérale se sont produits dans un environnement aquatique étendu sous faible tranche d'eau (Heckel, 1988). Ce milieu est caractérisé par un mélange de végétaux transportés et de végétaux in situ. Pruvost (1934) a observé des couches de charbon" hypautochtone" à paléosol, indiquant que ce charbon a été formé à partir des débris végétaux transportés, puis déposés dans un environnement où une végétation aquatique a pu se développer sous la faible profondeur d'eau. Ces couches de charbon reposent sur un substrat à *Stigmaria* (rhizome de lycophytes arborescents), caractéristique d'un ancien sol végétal fossilisé sur place, constitué d'argile silteuse et parfois de grès portant des racines de plantes. À proximité de ces milieux palo-lacustres, des faciès présentent une épaisseur de quelques centimètres à quelques décimètres, composés de charbon ou d'argiles charbonneuses résultant de l'accumulation de matière organique dans un environnement marécageux engorgé d'eau à niveau variable (Fleck et al., 2001).

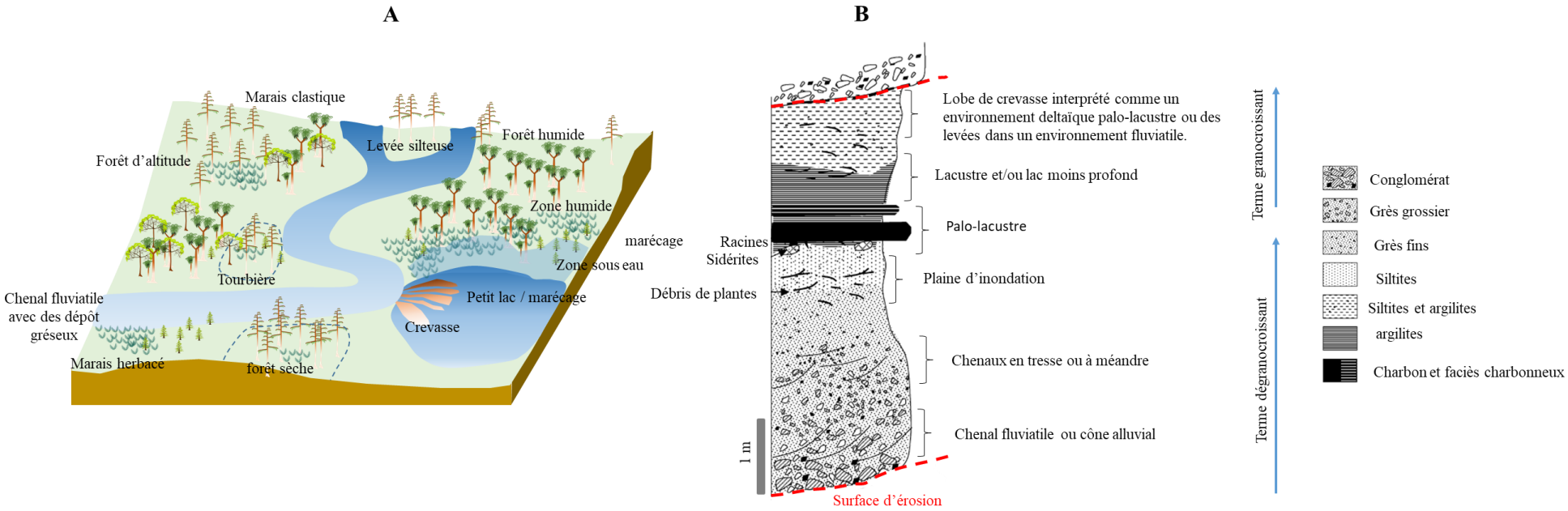


Figure II.2.5: Les environnements de dépôt dans le bassin lorrain : (A) Reconstitution paléogéographique (modifiée d'après Fleck et al. (2001). (B)Assemblages faciologiques des différents environnements de dépôt, exemple du forage de Saulcy (8 m), d'après Fleck et al. (2001) et Izart (2007).

II.2.1.2 Les éléments architecturaux associés à l'environnement de dépôt fluvio-lacustre dans le bassin lorrain

Pour un environnement continental tel que le bassin sarro-lorrain, les systèmes de dépôt sont définis par une diversité d'environnements, allant de la zone de production de matériaux détritiques aux zones de dépôt plus calmes (Allen, 1984). Ces matériaux détritiques suivent un cheminement à travers différents types de dépôts, notamment les cônes alluviaux, les systèmes fluviatiles, les environnements deltaïques, et les environnements lacustres. Chacun de ces environnements est caractérisé par des assemblages faciologiques spécifiques, où les faciès lithologiques, couvrant une gamme de granulométries du conglomérat aux argiles et aux charbons, reflètent les variations d'énergie de transport au sein du milieu de dépôt. Ces assemblages faciologiques, organisés en éléments architecturaux, ont été décrits et catégorisés dans les travaux sur le bassin sarro-lorrain. Pour les systèmes fluviatiles, quatre types distincts peuvent être reconnus : les chenaux, les lobes de crevasse, les plaines d'inondation et les marécages. Ces éléments s'organisent en différents environnements de dépôt proposés partir des analyses sédimentologiques et géochimiques, comme présenté dans les travaux de Fleck et al. (2001) (Figure II.2.5).

II.2.1.2.1 Les chenaux

Les chenaux constituent l'élément morphologique majeur des systèmes fluviatiles. Le remplissage du chenal débute souvent par une base conglomératique qui souligne la surface d'érosion majeure d'installation du chenal. Les sédiments sont généralement de granulométrie élevée (conglomérats et sables gossiers). Les dépôts reflètent les variations d'énergie au sein du chenal. En effet, il n'est pas rare d'observer de nombreuses surfaces d'érosion interne au remplissage du chenal. Les dépôts résultant de ces variations d'énergie induisent un aspect enchevêtré en demi-lentilles concaves vers le haut. La plupart du temps, lorsque le tri est bon, les dépôts de chenaux montrent une granodécroissance. Si les chenaux accompagnent le développement d'écoulements en tresses sur la partie médiane à distale des cônes alluviaux, ils montrent néanmoins un développement optimal et varié (notamment en fonction de leur degré de sinuosité) dans les environnements fluviatiles au sens strict.

En effet, dans le cas où les séquences chenalisantes à forte énergie, de faciès gréso-conglomératiques (Heckel, 1988), sont principalement constituées de successions de plusieurs dizaines de mètres de conglomérats à texture variée ("matrix supported" et "grain-supported"),

les chenaux peuvent être interprétés comme des éléments architecturaux constitutifs des cônes alluviaux (Heckel, 1988; Palain, 1995; Fleck, 2001; Izart et al., 2005; Schäfer, 2011).

Dans le cas où les chenaux montrent un remplissage moins grossier et plus variable sur le plan granulométrique (notamment associés à des faciès gréso-pélitiques selon Heckel (1988), et surtout marqués par l'absence des conglomérats de type "matrix-supported", ils peuvent être associés aux divers environnements fluviatiles (Fleck, 2001; Izart et al., 2005).

II.2.1.2.2 Les lobes de crevasse

L'agencement faciologique des lobes de crevasse (ou lobes de débordement) se caractérise par des dépôts gréseux à silteux. La granulométrie tend à diminuer en s'éloignant de la crevasse, et dans sa partie distale l'épandage est essentiellement constitué de sables fins et de silts. La crevasse correspond à la zone de rupture de la levée du chenal qui permet ainsi à une partie de l'écoulement, normalement canalisé dans le chenal, de se répandre dans la plaine d'inondation. La suite de faciès engendré par le développement progressif de l'épandage est granocroissante. Cette évolution granulométrique enregistre la progradation du lobe au sein de la plaine d'inondation. Les séquences résultantes peuvent atteindre plusieurs mètres d'épaisseur. Ces lobes se développent sur les plaines d'inondation, les marécages, et ainsi recouvrent souvent les couches de charbon (Heckel, 1988; Fleck, 2001; Fleck et al., 2001; Izart et al., 2005; Schäfer, 2011).

II.2.1.2.3 Les plaines d'inondation

Le faciès de plaine d'inondation, dont l'épaisseur peut atteindre plusieurs mètres, se caractérise par des sédiments argileux massifs, riches en matière organique soit sous forme de fragments végétaux soit sous forme de couches de charbon. Dans le détail, il est composé d'une alternance de grès très fins, de siltites et d'argilites, variant du gris clair au gris foncé en fonction de la teneur en matière organique. Certains horizons montrent des traces de racines. Les argilites plus ou moins silteuses sont parfois massives, parfois laminées. Le litage présente la plupart du temps une lamination horizontale parallèle. Les argilites montrent parfois des traces de bioturbation de petite taille (Izart et al., 2005) qui ont tendance à déformer la lamination originelle. Des paléosols à stades de développement variés se rencontrent dans ces faciès, notamment des paléosols hydromorphes (Pruvost, 1934; Heckel, 1988; Izart et al., 2005).

II.2.1.2.4 Les marécages à "couches de charbon"

Les zones de marécages sont le lieu de dépôt des couches de charbon (Heckel, 1988) dans le bassin sarro-lorrain. Il est défini ici en tant que composant caractéristique des tourbières, marécages et marais Cet élément architectural, occupé par des eaux stagnantes permanentes, constitue donc une partie distincte de la plaine d'inondation. Ici, sur la base du simple faciès lithologique, il n'est pas possible de faire la distinction entre tourbière au sens strict, marécage ou marais (Diessel, 1992; Thomas, 2002). Le faciès type correspond au charbon, roche sédimentaire combustible formée par l'accumulation de débris végétaux supérieurs dans des conditions de faible profondeur d'eau.

Le charbon constitue l'unité la plus fréquente et riche en matière organique dans le bassin lorrain, formant des ensembles allant de quelques centimètres à des dizaines mètres de puissance (Donsimoni, 1981; Heckel, 1988; Schäfer, 1989; Palain, 1995; Fleck, 2001; Izart et al., 2005). Selon l'épaisseur de la couche de charbon et le mode de dépôt, on peut attribuer cet élément architectural à différents environnements de dépôt. Par exemple, dans les systèmes en tresses, les couches de charbon peuvent atteindre jusqu'à 10 mètres de manière discontinue, regroupées en faisceaux situés au sommet des séquences chenalisantes de taille hectométrique. En revanche, ces couches de charbon dans les systèmes en méandres sont très réduites, continues et régulières latéralement sur de vastes surfaces (Frère, 1984). Ces couches de charbon peuvent également être associées aux systèmes palo-lacustres, où un mélange de végétaux transportés et de végétaux *in situ* reposent sur un substrat à Stigmaria (Pruvost, 1934; Fleck et al., 2001).

II.2.1.3 Synthèse de paléo-environnements de dépôts dans le bassin lorrain

Le remplissage du bassin houiller lorrain est caractérisé par des dépôts fluvio-lacustres. De l'amont vers l'aval, différents processus assurent le transfert des matériaux des zones bordières du bassin, caractérisées par les cônes alluviaux, vers les zones de dépôt des matériaux détritiques, caractérisées par des dépôts palo-lacustres, en passant par les systèmes fluviatiles et deltaïques qui relient les deux zones de production et de dépôt (Figure II.2.6).

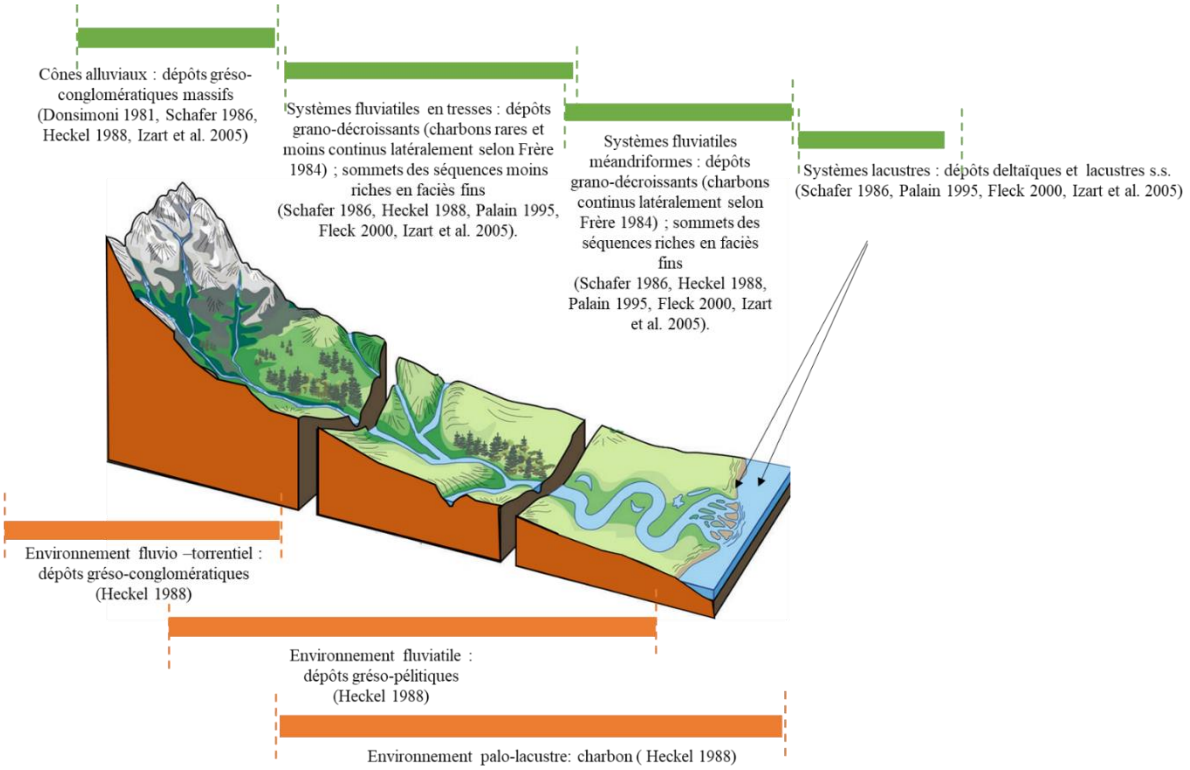


Figure II.2.6: Reconstitution paléogéographique des environnements de dépôt fluvio-lacustres du bassin carbonifère lorrain selon Heckel (1988), Schäfer (1989), Palain (1995), Fleck (2001) et Izart et al. (2005).

Le remplissage du bassin évolue dans l'espace et dans le temps. La variabilité sédimentaire dans le bassin peut être influencée par des changements du régime de subsidence, du taux d'apport sédimentaire, des variations du niveau de base, ainsi que par des modifications locales des conditions de sédimentation (Fleck, 2001; Izart et al., 2005).

La zone de production de la sédimentation silicoclastique se fait à partir des cônes alluviaux situés dans les zones bordières multiples (Heckel, 1988; Palain, 1995) le long du bassin. Ces édifices conglomératiques se forment principalement le long d'escarpements de failles, comme par exemple la marge nord du bassin en Sarre, avec la faille de Sud Hunsrück. L'extension des dépôts vers le bassin est souvent relativement faible, de 0,5 à 1 km (Schäfer, 2011).

Dans la plaine alluviale, les principaux agents de transport du matériel détritique sont les systèmes fluviatiles en tresses ou méandriformes (Donsimoni, 1981; Heckel, 1988; Schäfer, 1989; Palain, 1995; Fleck, 2001; Izart et al., 2005; Schäfer, 2011). En lorraine, la zone lacustre est décrite par Donsimoni (1981) seulement dans le Westphalien D de la Houve.

Il est difficile de décrire un seul sens d'écoulement de ces rivières, d'après les apports sédimentaires, car le bassin est subdivisé en plusieurs sous-bassins structuralement caractérisés

par leur propre sens local d'écoulement (M. Mombo, communication personnelle). En fait, ces rivières devraient s'écouler de manière parallèle à l'axe du bassin (SW-NE) tout en recevant des apports latéraux en provenance des cônes alluviaux (Heckel, 1988). Néanmoins, des mesures d'azimuts démontrent un sens d'écoulement souvent perpendiculaire à la structure du bassin et avec des approvisionnements détritiques provenant du nord en Sarre (zone Rhénohercynienne) durant le Permo-carbonifère (Schäfer, 1989) confirmés par les zircons détritiques (Figure II.2.7). Le transfert des sédiments se fait via les environnements décrits précédemment. On peut caractériser des assemblages faciologiques spécifiques, où les faciès lithologiques, couvrant toute l'échelle granulométrique (des conglomérats aux argiles, et aux charbons), reflètent les variations d'énergie au sein du milieu de dépôt. On peut reconnaître quatre éléments architecturaux principaux : les chenaux fluviatiles, les lobes de crevasse, les plaines d'inondation et les marécages à couches de charbon.

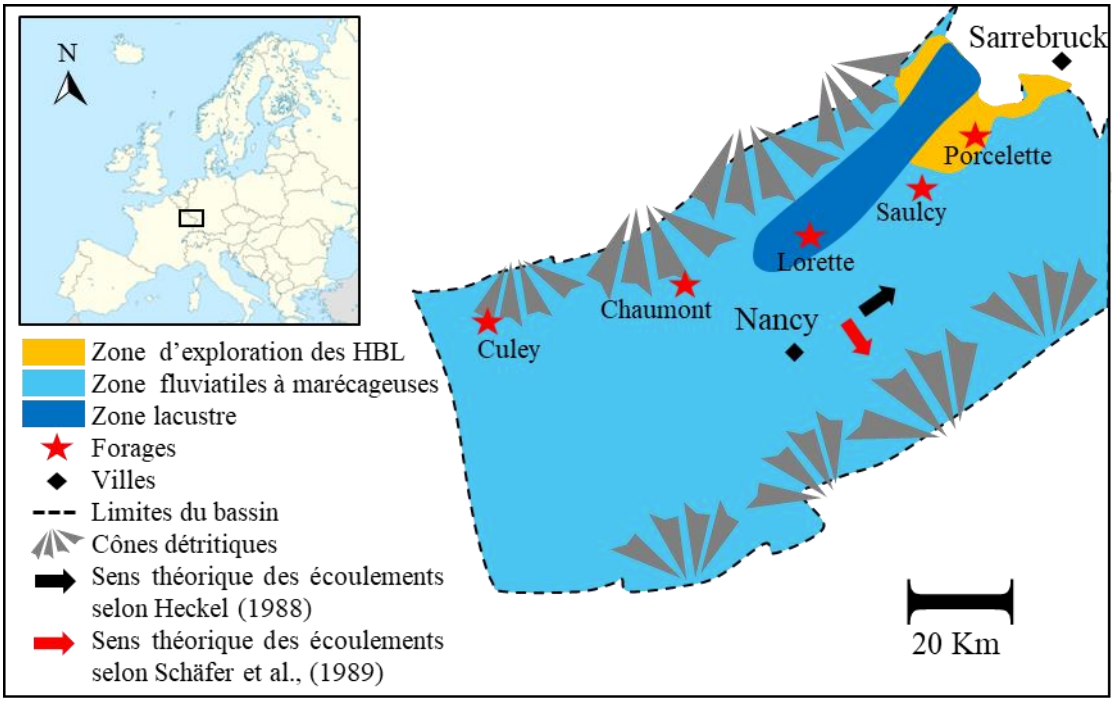


Figure II.2.7: Organisation du bassin lorrain au Carbonifère : zones d'alimentation et le sens d'écoulement théorique, conformément à Heckel (1988) et à Schäfer (1989), modifié d'après Fleck (2001).

II.2.2 Le charbon comme roche source

Le charbon représente le faciès prédominant parmi les éléments architecturaux des marécages, émergeant de la transformation d'anciennes accumulations de débris végétaux dans des

conditions de faible profondeur d'eau. Défini comme une roche combustible, il se forme dans des zones humides comparables à celles actuelles produisant de la tourbe (Stach et al., 1982).

Ce faciès, le plus riche en matière organique parmi tous les environnements de dépôt dans les bassins continentaux, peut être classé selon plusieurs critères, tels que sa morphologie, son type de végétation, son degré et son type de dégradation de la biomasse, son degré d'humification, ses changements de niveau de base et son apport de sédiments clastiques. En tenant compte de tous ces critères, il devient possible de distinguer diverses types, telles que les marais, les forêts marécageuses, les marécages, etc. (Diessel, 1992; Thomas, 2002).

II.2.2.1 Formation des tourbes et processus de transformation de la matière organique

Le processus débute par la formation de dépôts où les débris végétaux s'accumulent. Un premier produit, la tourbe, se forme par la fossilisation de ces débris dans des milieux humides anaérobies, communément appelés tourbières (Thomas, 2002). Les tourbières prospèrent principalement dans des zones constamment gorgées d'eau, mais appauvries en oxygène pour réduire l'activité de dégradation des débris végétaux par les micro-organismes (Diessel, 1992). Étant donné que la masse de matière organique produite excède celle qui peut être dégradée, les sols ou tourbes sont saturés de matière organique, avec des teneurs avoisinant les 80 à 90 %, et constituent ainsi les futurs gisements de charbon. Selon Taborin (1999), ces accumulations doivent contenir au moins 20 % à 30 % de matière organique pour être considérées comme des tourbières.

Ces accumulations de débris riches en matière organique subissent ensuite des changements chimico-physiques (sous l'influence d'activités biochimiques telles que celles des bactéries, de la température, de la pression, et du temps) pour former différents types de charbons combustibles (Tissot et Welt, 1984; Seidle, 2011).

Avant l'enfouissement des tourbières, ces dernières subissent une houillification biochimique en deux parties. La première concerne la partie supérieure des tourbières, appelée acrotelme, et implique la cellulose, la lignine, ainsi que d'autres composés. Ce processus est contrôlé par des facteurs tels que l'oxygène, les bactéries aérobiques, les champignons, etc. La seconde partie concerne la partie profonde de la tourbière, appelée catotelm, où la décomposition est effectuée par des bactéries anaérobiques (Bouska, 1981; Stach et al., 1982; Tissot et Welt, 1984). Cette première étape a pour effet de libérer le carbone des tourbières dans des conditions climatiques chaudes.

Avec l'augmentation de l'enfouissement, les accumulations de tourbe subissent une houillification géochimique au cours de laquelle les processus biochimiques initiaux arrêtent de jouer leurs rôles. Cette phase, s'étalant sur plusieurs stades, donne lieu à différentes catégories de combustibles. Ces transformations se manifestent par des modifications physico-chimiques à l'échelle macro et microscopique des matières organiques accumulées (Tissot et Welt, 1984; Heckel, 1988; Thomas, 2002)

Les divers stades du processus de houillification géochimique sont désignés comme des niveaux de rang, et les types de combustibles associés à chaque niveau sont classés en fonction de plusieurs caractéristiques telles que la teneur en carbone, la matière volatile, etc. Ces classifications reposent généralement sur des paramètres déterminés par différentes méthodes, telles que les analyses proximales ou des approches pétrographiques comme la mesure de la réflectance de la vitrinite. Tous ces paramètres sont liés aux modifications chimiques et physiques induites par l'enfouissement de la matière organique. Plusieurs classifications des combustibles charbonneux ont été établies en reliant ces paramètres, allant de la tourbe au lignite, puis des sub-bitumineux aux bitumineux, et enfin aux anthracites (Table II.2.1)

II.2.2.2 Classification des charbons lorrains

Les investigations menées sur le bassin lorrain indiquent de manière conséquente que le charbon enfoui dans les formations, principalement exploité dans le Carbonifère supérieur, est largement composé de charbon classé dans la catégorie houille. C'est cette prédominance qui a conduit à l'appellation de bassin houiller pour l'ensemble du bassin carbonifère. Ces observations sont particulièrement valables pour les couches exploitées dans le secteur minier, étant donné que la profondeur moyenne maximale atteint environ 800 mètres (Donsimoni, 1981).

II.2.2.2.1 Le rang du charbon lorrain et les analyses immédiates

Comme mentionné précédemment, la classification du charbon ne se fait pas sur la base d'un seul paramètre, mais en utilisant la combinaison de plusieurs paramètres. Ainsi, le rang des charbons dépendra de la valeur calorifique, de la teneur en matière volatile et de la teneur en eau (humidité), déterminées par des analyses immédiate (Proximate analyses) (Table II.2.1). Finalement, le paramètre le plus largement utilisé est le pouvoir réflecteur de la vitrinite, qui indique également la maturité de la matière organique (Meissner, 1987; Kalaydjian and Cornot-Gandolphe, 2008; Seidle, 2011).

Rang (Mastalerz et al., 2011)	Rang (France)	Pourcentage de carbone (daf)	Pourcentage de la matière volatile	Pourcentage d'humidité	Réflectance vitrinite (Diessel, 1992)
Peat	Tourbe	60	>60	75	0.26
Lignite	Lignite	71	52	30	0.38
Sub bituminous	Flambant sec	80	40	5	0.42 - 0.65
High volatile bituminous	Flambant gras	86	31	3	0.65 - 1.1
Medium volatile bituminous	-	90	22	<1	1.5
Low volatile bituminous	Gras	91	14	1	1.92
Semi anthracite	-	92	8	1	2.58
Anthracite	Anthracite	95	2	2	5

Table II.2.1: Les valeurs maximales des paramètres des analyses immédiates (proximate analysis) de charbon et ses rangs associés d'après Mastalerz et al. (2011). L'équivalence du rang du système CEE et du système français est établie à partir des classifications CEE/ONU, tirée de Kalaydjian and Cornot-Gandolphe (2008).

Selon Donsimoni (1981), le charbon extrait par les HBL est caractérisé par un pourcentage riche en matières volatiles, variant de 39 à 42 %. En conséquence, la majeure partie de la production de charbon se compose de flambants gras, correspondant à la classification CEE du Bitumineux High Volatiles (73 %). Les flambants secs, équivalant à la classification CEE Sub-bitumineux, représentent 17 % de la production, tandis que les flambants gras, équivalant à la classification CEE du Bitumineux low Volatile, constituent 10 % de la production du bassin. En effet, plusieurs études ont été réalisées sur les charbons du bassin lorrain, notamment des analyses immédiates, dans le but d'explorer les possibilités d'utilisation du charbon lorrain pour la production de coke alimentant l'industrie sidérurgique régionale. Selon Marcel (1954), le pourcentage de matières volatiles dans les couches de charbon de la zone d'exploitation des

HBL variait entre 20 % et 41 % (Table II.2.2), indiquant ainsi un rang allant de flambant sec à gras (Sub-bitumineux, Bitumineux High Volatiles).

Couche	Pourcentage de cendre (%)	Pourcentage de carbone fixe (%)	Pourcentage d'humidité (%)	Pourcentage de la matière volatile %
La Houve	6.75	46.3	5.85	41.1
Simon	6.94	49.75	3.21	40.1
Gargan	5.18	50.47	3.15	41.2
Saint charles	6.6	52.69	2.51	38.2
Reden	5	58.01	1.19	35.8
Bergmannsgluck	8.05	69.72	1.43	20.8

Table II.2.2: Analyses immédiates des charbons du bassin houiller lorrain (carbonifère supérieure) dans la zone des Hbl (le charbon de Reden est un charbon sarrois) d'après Marcel (1953).

D'autres mesures issues des analyses immédiates de pourcentage ont été réalisées par ConocoPhillips dans les forages de Saulcy et Lorette. Elles indiquent également une gamme similaire de variations du pourcentage de matières volatiles avec une moyenne de 20%, confirmant ainsi le caractère Sub-bitumineux, Bitumineux High Volatiles des charbons du Westphalien B et C (Figure II.2.8).

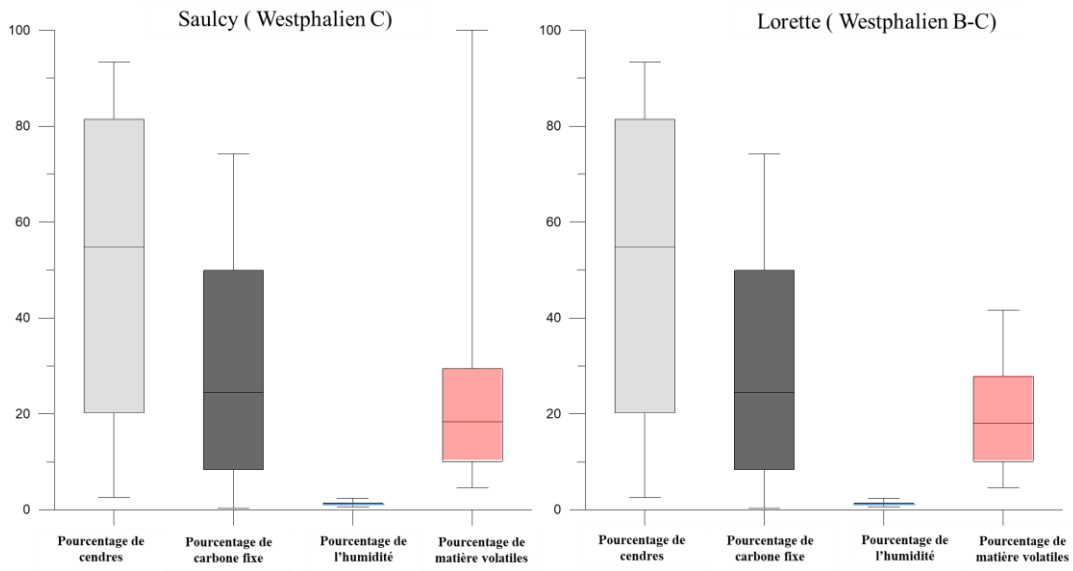


Figure II.2.8: Analyses immédiates des charbons du Bassin Houiller Lorrain (Carbonifère supérieur) provenant des forages de Saulcy et Lorette (Rapport confidentiel FDE).

II.2.2.2.2 Caractéristique pétrographique du charbon lorrain :

La description des charbons repose en générale sur une classification microscopique qui vise à évaluer la diversité de la matière organique conservée par les environnements de dépôts. En utilisant la pétrographie organique, la microscopie optique est employée pour visualiser les microstructures et décrire la morphologie des composantes organiques. Cette visualisation révèle différentes entités organiques possédant des propriétés physico-chimiques distinctes, qui peuvent influencer les propriétés des matières organiques solides. (Stach et al., 1982; Tissot et Welt, 1984; Thomas, 2002; Suárez-Ruiz et Crelling, 2008; Seidle, 2011).

Ces macéraux sont classés en trois groupes distincts (Table II.2.3): i) la vitrinite, issue des structures ligneuses du bois, se présente sous forme de gels ayant la capacité d'agir comme un ciment pour les autres macéraux, ii) l'exinite (liptinite), dérivée des spores, des cuticules et des produits de sécrétion de végétaux supérieurs, tels que les huiles, les résines, les tanins, et les lipides résistants à la biodégradation. Ces composants présentent une faible réflectance, une apparence en relief marquée, et une fluorescence prononcée. Les algues sont incluses dans ce groupe en raison de leurs propriétés optiques similaires. iii) l'inertinite forme une famille de macéraux oxydés à l'air libre, résultant de la forte altération et dégradation des composants végétaux. Elle se présente sous forme de débris ligneux avec une réflectance notable dans les tons plus clairs (Stach et al., 1982; Thomas, 2002; Tissot et Welt, 1984; Suárez-Ruiz et Crelling, 2008; Seidle, 2011).

La caractérisation microscopique des charbons dans le bassin lorrain, telle qu'effectuée par Fleck (2001) à partir des données de trois forages (Saulcy, Lorette et Chaumont), a mis en lumière la présence de trois familles de macéraux majeures, à savoir l'exinite, la vitrinite et l'inertinite. Ces macéraux proviennent principalement de débris végétaux supérieurs. Il convient de noter que la fraction minérale peut également être présente de manière significative dans les charbons, souvent associée à la matière organique amorphe. Certains minéraux semblent être spécifiquement liés à la matière organique, parmi lesquels la pyrite framboidale, la kaolinite et la sidérite dans le cadre des premières analyses pétrographiques approfondies, entreprises dans le cadre de l'interprétation des environnements de dépôts par Fleck (2001) Sur le faisceau charbonneux de Steinbesch du Westphalien D, Heckel (1988) a décrit une composition macérale présentant un pourcentage de vitrinite dépassant les 80 %, avec des teneurs en exinite et en inertinite du même ordre de grandeur, environ 10 %. Dans cette étude, une distinction a été établie entre les macéraux principaux et les macéraux accessoires en fonction de leurs pourcentages respectifs. La collinite, la sporinite et la semifusinite ont été considérées comme des macéraux principaux (avec un pourcentage supérieur à 2,5 %), tandis que la fusinite, la sclérotinite, l'inertodétrinite, la macrinite, la micrinite, la résinite, la cutinite et la télinite ont été catégorisées comme des macéraux accessoires. Divers facteurs peuvent influencer les variations de composition macérale entre la base et le sommet de la couche, notamment l'énergie du milieu de sédimentation, le mode de transport des macéraux et le type de végétation, mais il n'existe pas de règle générale de répartition des macéraux pour toutes les couches de charbon (Heckel, 1988).

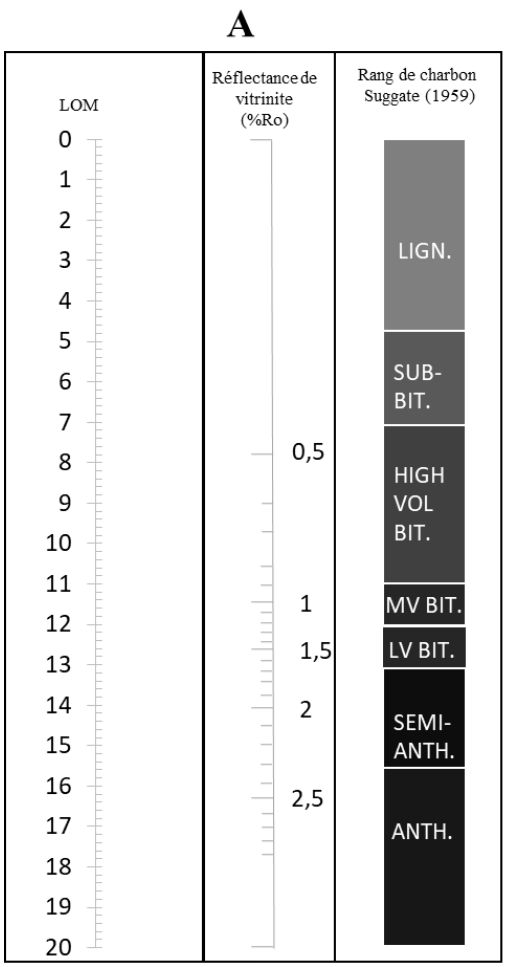
Groupe de Macéraux	Sous-groupe de Macéraux	Macéraux
Vitrinite	Texto-ulminite	Telovitrinite
		Eu-ulminite
		Telocollinite
	Detrovitrinite	Attrinite
		Densinite
		Desmocollinite
	Gelovitrinite	Corpogelinite
		Porigelinite
		Eugelinite
Liptinite		Sporinite
		Cutinite
		Resinite
		Liptodetrinite
		Sclerotinite
		Alginite
		Suberinite
		Fluorinite
		Sclerotinite
		Bituminite
Inertinite	Telo-inertinite	Fusinite
		Semifusinite
		Sclerotinite
	Detro-inertinite	Inertodetrinite
		Micrinite
	Gelo-inertinite	Macrinite

Table II.2.3: Classification macérale des charbons selon la norme de Standard Association of Australia (1998).

II.2.2.2.3 Pourcentage de réflectance de la vitrinite (%Ro)

Un autre paramètre qui, conjointement avec les paramètres pétrographiques et analytiques précédemment décrits, contribue à la classification des charbons, est le pourcentage de réflectance de la vitrinite. Cet indicateur est également utilisé pour évaluer la maturité thermique de la matière organique présente dans ces charbons (Vandenbroucke et al., 1993). La réflectance des macéraux évolue de manière continue, mais non linéaire, en corrélation avec la diminution des rapports atomiques H/C et O/C. En conséquence, la réflectance varie de 0,2 % à 10 % en fonction du degré d'évolution de la matière organique (Bertrand et al., 1993). Cette variation peut également indiquer les fenêtres de génération des hydrocarbures : i) Au cours des premières étapes de la diagenèse thermique, le taux de réflectance (%Ro) augmente jusqu'à atteindre 0,6 %. ii) À la phase finale de la catagenèse (fenêtre à huile), le taux (%Ro) peut s'étendre jusqu'à 1,3 %. iii) À la fin de la métagénèse (fenêtre à gaz), le taux (%Ro) peut augmenter pour atteindre 10 % aux stades les plus avancés. En parallèle de ce paramètre, une

autre échelle compatible permet également l'évaluation du degré de maturité thermique, connue sous le nom de LOM (Level of Organic Maturity). Cette échelle de métamorphisme de la matière organique, appliquée selon la définition de Hood et al. (1975) aux grains fins sédimentaires, propose une transition de la réflectance de la vitrinite vers cette échelle par une équivalence. De plus, elle fournit des indications sur le rang des échantillons riche en matière organique (Figure II.2.9). L'ensemble de tous les travaux de mesure de la réflectance de la vitrinite est résumé dans la section II.2.2.3, où toutes les données de maturité et leurs implications sur l'histoire géologique du bassin houiller lorrain sont décrites.



B

$$\text{LOM} = 0.0989 * Ro^5 - 2.1587 * Ro^4 + 12.392 * Ro^3 + 29.032 * Ro^2 + 32.53 * Ro - 3.0338$$

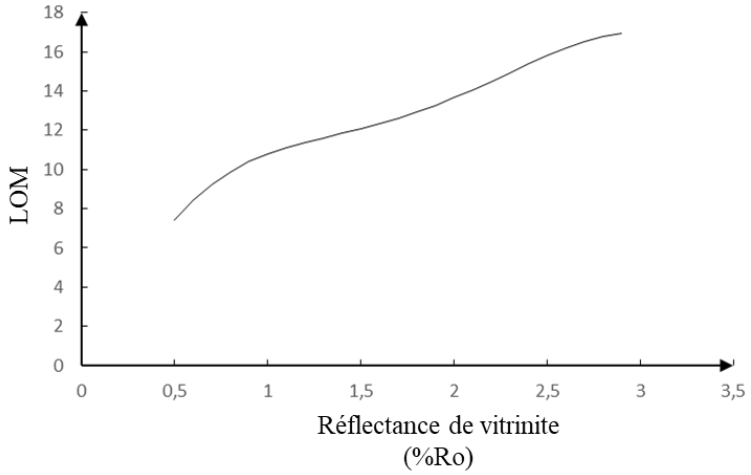


Figure II.2.9: Relation entre le degré de maturité organique et la réflectance de la vitrinite : A) Schéma modifié d'après Hood et al. (1975). B) Équation du LOM déterminée à partir de la numérisation de la charte de Hood et al. (1975).

II.2.2.3 Thermicité et paléo-enfouissement dans le bassin houiller lorrain

L'histoire thermique et diagénétique du bassin lorrain a été principalement étudiée à partir des indicateurs de paléo-maturité organique. Les indicateurs minéraux de la paléo-température, tels que les inclusions fluides ou les illites, ont été peu exploités. Des reconstructions de l'histoire de l'enfouissement et de la subsidence ont été réalisées à l'échelle locale dans des secteurs miniers par Alpern (1966, 1969), puis par Heckel (1988) et Courel et Liu (1991). Parallèlement, du côté allemand, dans le bassin houiller de la Saar-Nahe, prolongement du bassin lorrain, des modèles paléo-thermiques calibrés sur les données de réflectance de la vitrinite ont été élaborés (Littke et al., 2000). Les travaux d'Izart et al. (2016) constituent les dernières synthèses de l'histoire de l'enfouissement à l'échelle 1D tous les forages du bassin houiller lorrain (Figure II.2.10), où ils ont reconstitué l'évolution thermique de la matière organique au cours du Paléozoïque et du Mésozoïque, ainsi que ses conséquences sur la génération des gaz et les scénarios de migration dans un système pétrolier.

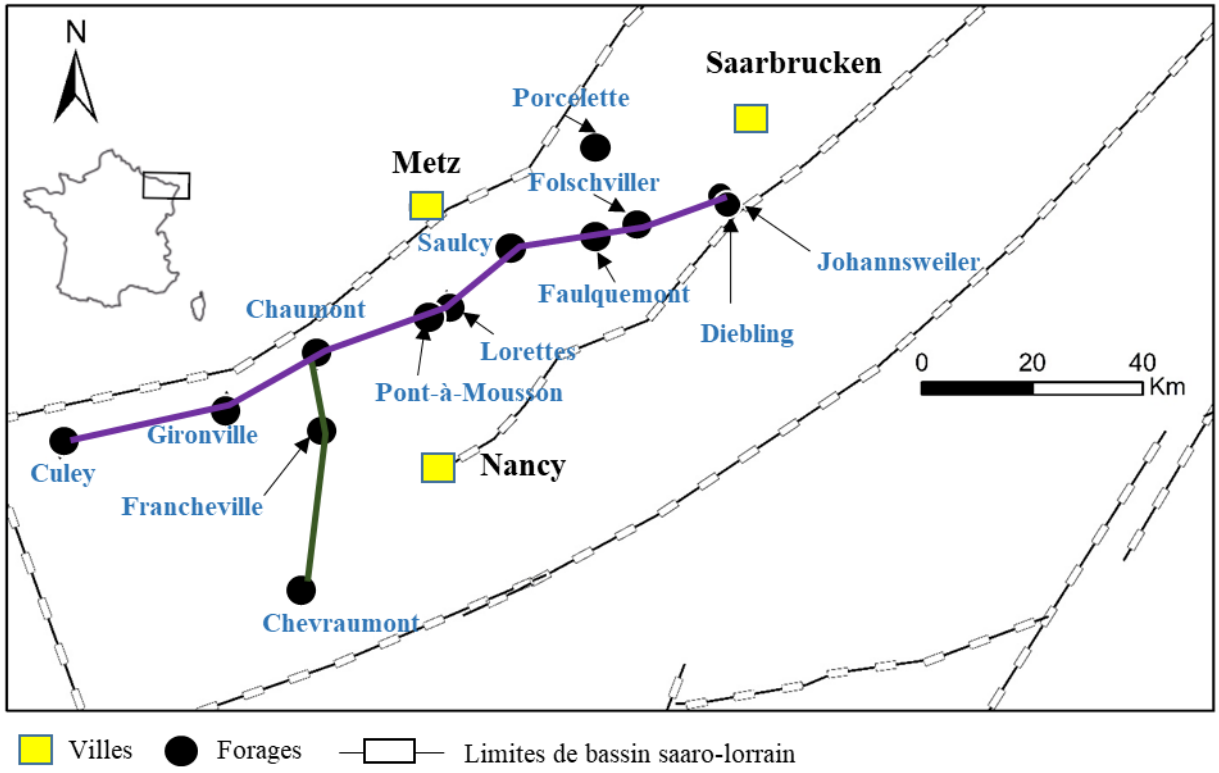


Figure II.2.10: Transect est-ouest et nord-sud où les données de la maturité organique sont disponibles, et les données relatives au forage sont présentées dans la Figure II.2.11.

Les indicateurs organiques les plus utilisés dans le bassin sont la réflectance de la vitrinite et la Tmax, qui correspond à la température du maximum de production des hydrocarbures, mesurée par le Rock-Eval. Ces paramètres permettent d'évaluer la maturité des roches-mères,

notamment le charbon. Ils servent aussi à estimer les paléo-températures en les intégrant dans des modèles thermiques 1D et 2D. Ces modèles permettent de faire varier des paramètres et de tester plusieurs hypothèses sur le flux de chaleur dans le bassin, ainsi que sur les taux d'érosion, afin d'ajuster les températures simulées au modèle d'indicateur thermique actuel. De plus, ces modèles de maturité thermique sont indispensables pour définir un scénario de génération de gaz de charbon. Ils peuvent aussi indiquer la température maximale subie par une roche-mère au cours de son enfouissement, ainsi que le degré de transformation de la matière organique en hydrocarbures.

Des modèles paléo-thermiques ont été réalisés en Sarre (Littke et al., 2000) et en Lorraine (Izart et al., 2016) montrant des différences dans le régime de paléo-température, les taux d'érosion estimés, et le timing de carbonisation. Ces modèles de bassin sont des outils permettant de simuler numériquement, à partir de données géologiques, le cycle de sédimentation et d'érosion des formations géologiques dans le temps et l'espace (Peters and Wygrala, 2009). Deux étapes importantes pour ces modèles sont (1) la construction du modèle, qui implique de créer un modèle structural et d'identifier la chronologie des dépôts, leurs faciès lithologiques, ainsi que les propriétés pétrophysiques de chaque couche, et (2) une phase de modélisation où l'on simule l'enfouissement, les variations de température, la maturation du kérogène, et l'expulsion, la migration et l'accumulation des hydrocarbures. Durant l'étape de calibration, les résultats du modèle sont comparés aux données des puits, puis une correction des paramètres d'entrée est effectuée (flux de chaleur, épaisseurs érodées). En Lorraine, les informations relatives à la maturation organique, telles que collectées par Izart et al. (2016), proviennent d'une série de mesures de réflectance de la vitrinite effectuées sur l'ensemble du bassin (Figure II.2.11).

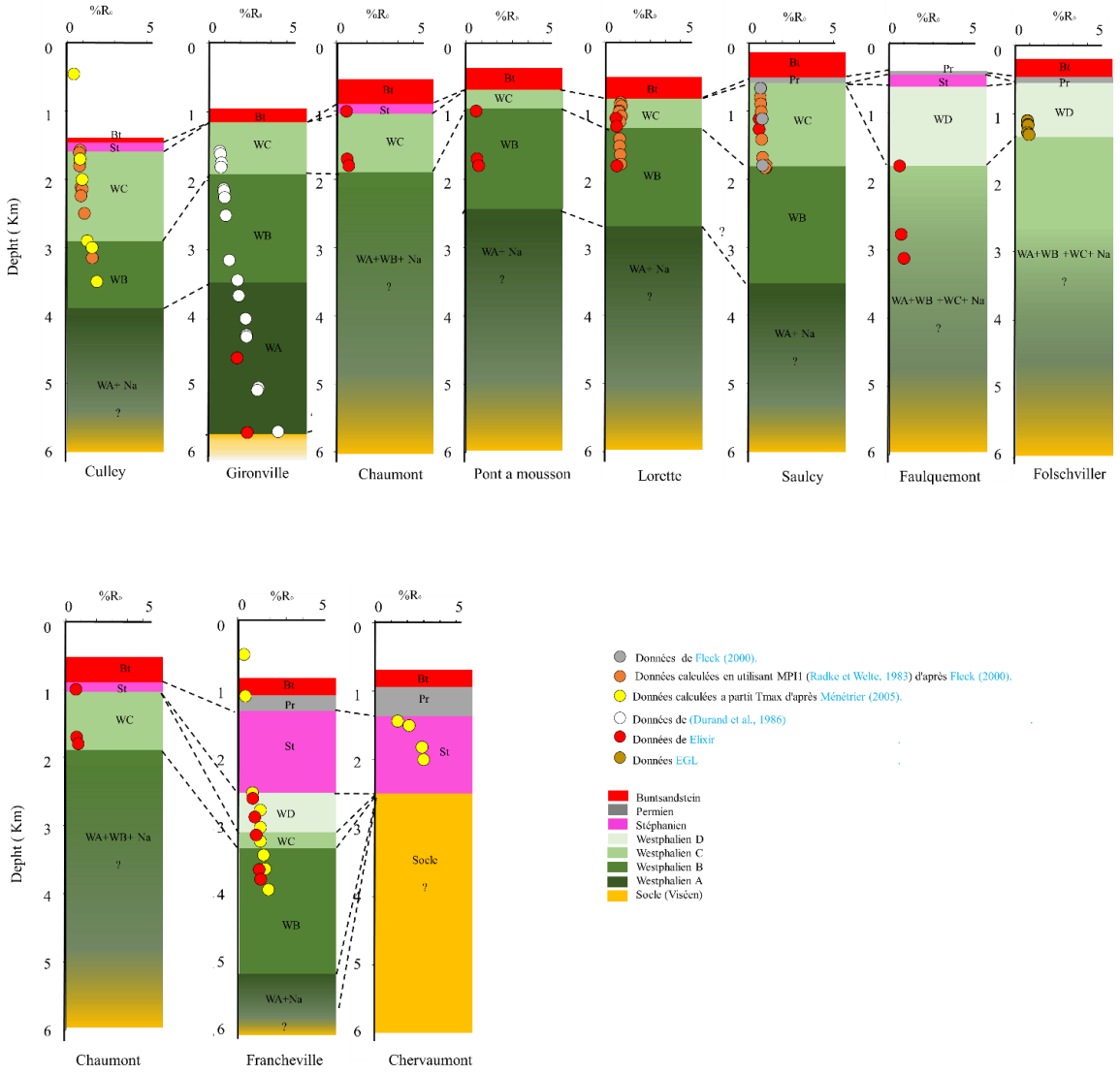


Figure II.2.11: Récapitulatif des valeurs de réflectance de la vitrinite dans les forages du bassin houiller lorrain utilisées par Izart et al. (2016).

L'histoire de l'enfouissement en Lorraine s'est déroulée en deux périodes distinctes : à la fin du Paléozoïque, lorsque la région constituait un bassin houiller limnique déposé dans le contexte de la chaîne hercynienne et au Mésozoïque, lorsque la Lorraine faisait partie du Bassin intracontinental. L'histoire thermique du bassin houiller lorrain est intégrée à l'histoire du bassin parisien qui représente sa couverture mésozoïque (Donsimoni, 1981; Izart et al., 2016, Blaise et al., 2014).

II.2.2.3.1 Thermicité pendant le Mésozoïque

Les modélisations thermiques pour simuler l'enfouissement du mésozoïque a l'actuel ont montré un flux de chaleur de 60 mW/m^2 au début du Permien, diminuant progressivement à 40 mW/m^2 actuels. La calibration a été faite sur la réflectance de la vitrinite des plantes du Trias et les biomarqueurs. Une variation de l'épaisseur érodée du Crétacé est observée d'ouest en est, avec des implications sur la distribution des dépôts crétacés. L'épaisseur érodée du Mésozoïque varie de 500 m à 2000 m, augmentant d'ouest en est au-dessus de la surface érodée. (Izart et al., 2016, Blaise et al., 2014).

II.2.2.3.2 Thermicité pendant le Paléozoïque

Les modélisations thermiques ont été réalisées pour le Paléozoïque par Izart et al. (2016) basées sur les nouveaux modèles tectoniques d'Averbuch et al. (2012) et Hemelsdaël et al., 2023, avec une phase de compression pendant le Westphalien D et une extension pendant le Stéphanien, suivie d'une compression saalienne entre l'Autunien et le Saxonien au Permien (Donsimoni, 1981). Ces modélisations intègrent les mesures de réflectance de la vitrinite provenant des travaux d'Alpern (1969), Durand et al. (1986), Blaise et al., 2014, Littke et al. (2000), Izart et al. (2016) et Fleck (2001).

D'après (Courel et Liu, 1991; Littke et al., 2000; Izart et al., 2016), les valeurs de la réflectance de la vitrinite dans le bassin de Lorraine et de la Sarre-Nahe varient entre 0,80/0,60 % et 2,45/2,30 % pour des profondeurs allant de 1700 m à 5640 m respectivement. Ce critère de maturité croît avec la profondeur d'enfouissement actuelle, comme le montre, par exemple, localement dans le faisceau de Steinbesch, les mesures du pouvoir réflecteur de la vitrinite de part et d'autre de la faille de Diesen, indiquant une houillification post-orogénique (Heckel, 1988). Dans la même région, un gradient de 0.022 %Ro pour 100 mètres est semblable à celui observé dans la partie occidentale des HBL dans le forage de Niedervise 2, étudié par Alpern (1966, 1969). Dans le secteur de la Houve Vernéjoul, une épaisseur comprise entre 1400 et

1800 mètres de la couverture sédimentaire a été érodée du faisceau de Steinbesch attribué au Permo-Mesozoïque (Heckel, 1988).

En Lorraine, pour la même formation, la VR est plus élevée dans les synclinaux (forage de Francheville) que dans l'anticlinal (les autres forages). Cette différence peut être liée aux épaisseurs maximales du Stéphanien et du Westphalien D dans le synclinal (Izart et al., 2016).

Le flux de chaleur égal à 50 mW/m^2 pendant le Westphalien et 60 mW/m^2 pendant le Stéphanien et le Permien inférieures sont simllaires à celles déterminées dans le bassin houiller de la Sarre (Littke et al., 2000; Hertle and Littke., 2000).

Les valeurs flux de chaleur du Bassin houiller de Lorraine correspondent à une plage de (40 à 80 mW/m^2), caractéristique des ceintures de collision, et sont inférieures aux valeurs de flux (60 à 100 mW/m^2) observées dans les bassins extensifs (Allen et Allen, 1990).

Les implications sur les épaisseurs érodées confirment les phases d'érosion reconnues, avec une estimation de 1200 m d'érosion maximale des séries Westphalien-Stéphanien-Permien dans le Bassin Houiller Lorrain contre 1800-2800 m de sédiments érodés dans le Bassin Houiller de la Sarre. L'épaisseur érodée du Paléozoïque varie de 200 m à 1200 m dans la modélisation 1D, dépendant de l'emplacement du forage sur un synclinal ou un anticlinal, ainsi que du stade d'érosion pour l'anticlinal. Selon Izart et al. (2016), l'érosion paléozoïque est difficile à mesurer en raison de la courte durée entre le dépôt du Westphalien et l'érosion du Stéphanien ou du Permien.

Selon Heckel (1988), le degré de houillification des galets de charbon contenus dans les bancs gréso-conglomératiques est inférieur par rapport aux couches charbonneuses de leur contact, expliqué par les variations de conductivité thermique des faciès de l'encaissant.

La distribution spatiale des valeurs de réflectance de la vitrinite révèle des niveaux plus élevés dans les synclinaux par rapport aux anticlinaux pour une même formation (Courel et Liu, 1991; Littke et al., 2000; Izart et al., 2016). De plus, l'étude de Courel et Liu (1991) démontre que les iso-valeurs de la réflectance de la vitrinite sont alignées avec les structures tectoniques. Dans le bassin de la Sarre-Nahe, Littke et al. (2000) indique que les valeurs de la réflectance de la vitrinite sont plus intenses dans les synclinaux, et les courbes iso-valeurs de la réflectance de la vitrinite recoupent la stratification, soulignant clairement une houillification attribuée à une sédimentation intense dans les synclinaux accompagnants la formation des plis-failles.

L'impact de l'histoire thermique du bassin carbonifère lorrain sur la conversion de la matière organique et la génération de gaz a été étudié par Izart et al. (2016), en utilisant la cinétique de type III (Burnham, 1989) et les données de géochimie organique de Fleck (2001), incluant les paramètres de Rock Eval tels que la température maximale (Tmax) et l'indice d'hydrogène (HI). Sept niveaux de maturité ont été définis, en fonction des valeurs de réflectance de la vitrinite (%Ro) (Figure II.2.11). Cette étude révèle la présence de roches matures à très matures dans le bassin houiller lorrain, démontrant un potentiel significatif d'adsorption de méthane dans le charbon. Cependant, ce potentiel diminue avec la profondeur. Selon les modèles thermiques établis par Izart et al. (2016), la %Ro maximale est observée au début du Crétacé dans tous les forages cas étudiés. La maturation du charbon du Westphalien présente une augmentation progressive de cette période jusqu'au Crétacé (Figure II.2.12). Les données sur les réserves en hydrocarbures sont abordées dans la section II.2.3.3.

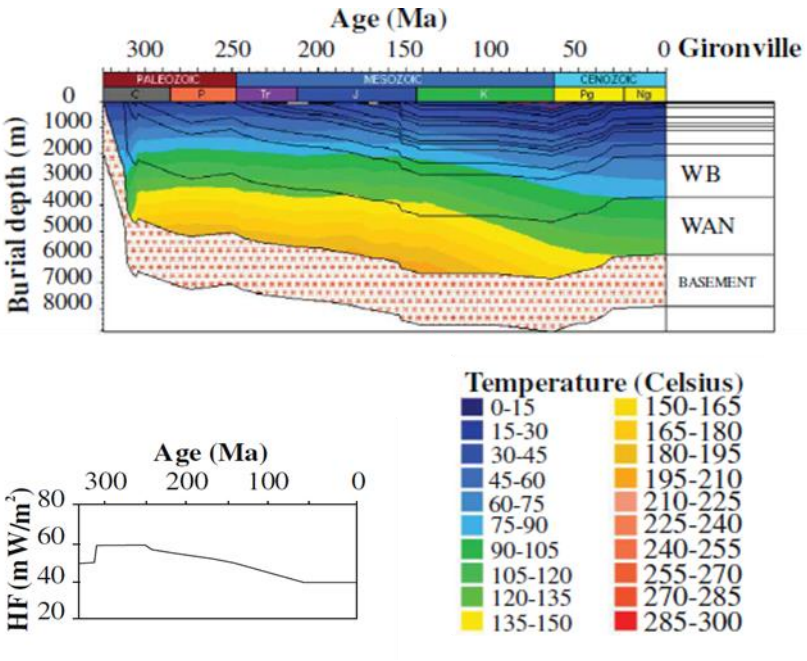


Figure II.2.12: Le profil de flux thermique utilisé pour les modélisations dans le bassin houiller lorrain par Blaise et al. (2014), Izart et al. (2016).

II.2.2.4 Génération de gaz de charbon:

Comme expliqué précédemment dans la section II.2.2.1, les transformations physicochimiques au cours de l'enfouissement sont induites par la compaction, l'activité biologique et la cinétique thermique. Ces trois facteurs sont complexes et interdépendants et peuvent agir tout au long de l'histoire de d'un bassin sédimentaire, induisant la génération d'hydrocarbures de manière efficace dans le cadre de la houillification (Suárez-Ruiz et Crelling, 2008). La génération de

gaz à partir du charbon implique des processus complexes tout au long de son évolution, depuis la formation de la tourbe jusqu'au stade anthracite. Dans la phase de la tourbe, la matière organique subit des transformations en termes de volume et de composition. En surface, les bactéries aérobies et les champignons dominent en métabolisant les composés cellulosiques. Avec la profondeur, les bactéries aérobies sont progressivement remplacées par des bactéries anaérobies. La tourbe s'enrichit en lignite, produisant des quantités importantes de méthane (gaz des marais), d'acides humiques et d'eau. L'augmentation de la charge des matières végétales entraîne une compaction, provoquant l'expulsion de ces composés.

La transformation de la tourbe en lignite se déroule généralement entre 200 et 400 mètres de profondeur (Suárez-Ruiz et Crelling, 2008). Elle se caractérise par une diminution de la teneur en humidité en dessous de 75%, une teneur en carbone dépassant environ 60%, et l'absence de cellulose libre (Stach et al., 1982). En évoluant à travers les classes de lignite et de sous-bitumineux, la lignine et les composés cellulosiques restants se transforment en composés humiques, gagnant progressivement en poids moléculaire et perdant de l'acidité. Les transformations thermiques-cinétiques deviennent de plus en plus significatives, libérant principalement de l'eau et du CO_2 (Suárez-Ruiz et Crelling, 2008). Cependant, Stach et al. (1982) a souligné la génération possible de petites quantités de méthane par la réduction des groupes méthoxyle dans la lignine, et a noté que le pétrole peut être produit à partir du kérogène sapropélique dans le sédiment, avec une réflectance vitrinite (%Ro) aussi basse que 0,35%, correspondant à la classe de la lignite (Paterson et al., 1997). La dévolatilisation est le processus principal pour le charbon de classe sub-bitumineuse, qui ne génère pas ou très peu d'hydrocarbures par voie thermogénique (Suárez-Ruiz et Crelling, 2008). Le charbon évolue ensuite vers les classes bitumineuses et anthracitiques, traversant la fenêtre d'huile thermogénique. Hunt (1979) situe le début de cette fenêtre à la transition entre le sub-bitumineux et le bitumineux, avec le pic de génération d'huile au rang bitumineux à haut volatile B et A (Ro = 0.7% à 1.0%) (Figure II.2.13). Des études ont montré que la génération d'huile à partir du charbon peut se poursuivre jusqu'au rang anthracitique (Ro > 2.0%) et à des températures plus élevées, d'après l'analyse Rock-Eval (Petersen, 2006). Le charbon de rang bitumineux à haut volatile C commence à libérer de faibles quantités de gaz thermogène (Scott, 1993). La génération thermogénique majeure d'hydrocarbures gazeux débute à la limite entre les rangs bitumineux à haut volatile B et A (%Ro = 0.8) et se termine à la limite entre le bitumineux à faible volatile et le semi-anthracite (%Ro = 2.0). La majorité de la génération thermogénique d'hydrocarbures gazeux se produit entre 100°C et 225°C, avec une libération

importante d'azote entre 100°C et 150°C (Hunt, 1979). Le craquage thermique est un mécanisme clé dans cette gamme de rang, et avec l'augmentation de la maturité thermique et de la libération d'hydrogène de la structure du charbon, les hydrocarbures à longue chaîne sont transformés en structures à courte chaîne, comme le méthane. Au rang semi-anthracite, le taux de génération de gaz diminue fortement car le carbone restant est piégé dans le réseau aromatique. La génération d'hydrocarbures se termine au rang anthracite (%Ro > 3.0) (Suárez-Ruiz et Crelling, 2008) (Figure II.2.13).

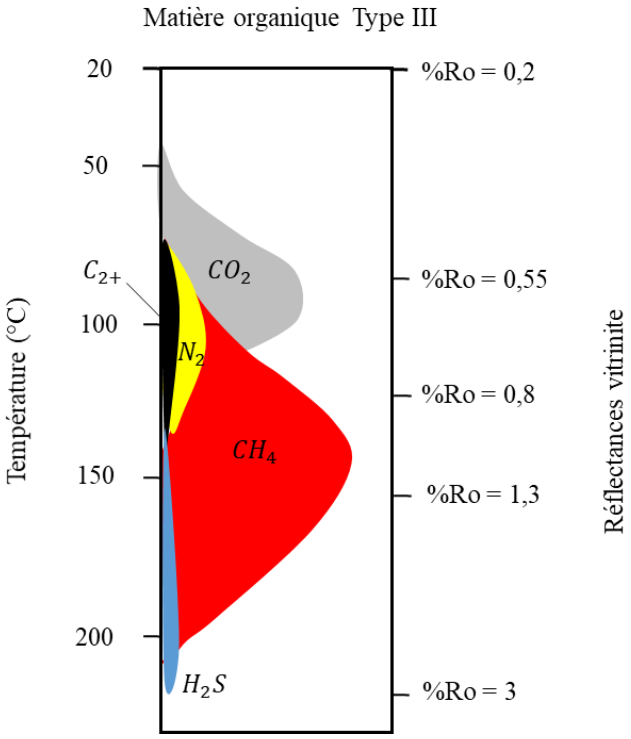


Figure II.2.13: Diagramme montrant les proportions des gaz thermogènes générés à partir de matière organique de type III en fonction de la température et de la maturité thermique modifié d'après Hunt (1979) et Suárez-Ruiz et Crelling (2008).

II.2.3 Ingénierie des réservoirs de gaz de charbon

L'ingénierie des réservoirs de gaz de charbon se révèle complexe, se distinguant nettement des approches conventionnelles en termes de propriétés et de méthodes d'évaluation et d'exploitation. La clé de cette ingénierie appliquée au CBM réside dans l'identification et la compréhension de paramètres spécifiques au charbon tels que la porosité, la perméabilité, et la capacité d'adsorption de gaz, en tenant compte des caractéristiques uniques des pores et des fractures.

Les couches de charbon assument un double rôle en tant que source et réservoir de gaz générés par la matière organique, familièrement désignées dans le domaine pétrolier comme "self Source-Reservoir rock" (Seidle, 2011; Ouyang, 2018). Les couches productrices, présentes à travers toutes les périodes géologiques, se manifestent dans divers environnements de réservoir, allant de 3000 m à 30 m de profendeur (Seidle, 2011).

Le charbon est défini comme un réservoir naturellement fracturé, se caractérisant par un ensemble de fractures naturelles appelées Cleat system. Ces fractures, perpendiculaires les unes aux autres, représentent des conduits principaux de circulation des fluides dans les couches de charbon et sont essentielles pour la production de gaz (Seidle, 2011). Les propriétés de ces systèmes varient, avec des espacements entre fractions de millimètre à centimètres, et des hauteurs de fracture allant de microscopiques à l'épaisseur de la couche de charbon. Les ouvertures des fractures influencent la perméabilité de la couche de charbon. La direction des fractures est influencée par divers facteurs, notamment l'orientation des paléostress, et peut varier stratigraphiquement (Close, 1993; Seidle, 2011).

Les propriétés de ces systèmes de fractures sont étroitement liées à la maturité et au rang du charbon. En effet, les lignites présentent un système de fractures moins développé, tandis que les charbons bitumineux se caractérisent par un système bien défini. Les anthracites sont souvent peu fracturés en raison de la cicatrisation des fractures pendant leur métamorphisme (Close, 1993).

Selon Close (1993), le système de fractures dans les charbons résulte probablement de l'interaction de plusieurs facteurs, tels que les paléo-stress, mais également du processus de houillification au fil des âges géologiques. Pendant ces phases, le charbon expulse une quantité significative d'eau, en particulier à de faibles maturités, faisant ainsi de la dessiccation l'un des mécanismes de clivage. Au cours de la maturation, les hydrocarbures du charbon sont évacués, provoquant la dévolatilisation, un processus au cours duquel des changements structurels à l'échelle microscopique contribuent à la formation des fractures. À des rangs très élevés, lorsque le charbon devient de plus en plus aromatique, le réarrangement moléculaire intervient pour consolider les fractures.

II.2.3.1 Étude de la porosité dans les couches de Charbon

Dans les formations de charbon, la porosité totale est le somme de la porosité de la matrice et celle des fractures (Fu et al., 2009; Dawson et Esterle, 2010). La porosité effective du charbon

est principalement représentée par l'espace vide dans le charbon contenant de l'eau, capable de s'écouler à travers les fractures en réponse à une pression différentielle appliquée (Seidle, 2011). Cette porosité, essentiellement associée aux porosités du Cleat system, joue un rôle dans l'écoulement du gaz et de l'eau vers le forage, régi par la loi de Darcy avec les perméabilités relatives gaz-eau en deux phases (Reiss, 1980).

Les porosités de fracture, estimées à environ 1% ou moins, caractérisent les réservoirs naturellement fracturés, tandis que la porosité de la matrice du charbon est constituée de vides dans la matrice organique. Cette porosité de la matrice résulte de la décomposition de la matière végétale et du processus de houillification, créant des pores irréguliers (Seidle, 2011)

L'évaluation des porosités de Cleat system se fait généralement à partir de modèles de simulations à partir des diagraphies, tandis que les porosités de la matrice sont déterminées de manière indirecte par des mesures pétrophysiques (Jie et al., 2014; Baouche et Wood, 2020).

La prise en compte de la porosité est important pour d'autres lithologies lors de l'étude des réservoirs du bassin houiller lorrain, telles que les grès et les argilites. Dans le contexte du bassin houiller lorrain, aucune étude n'a été réalisée sur les paramètres pétrophysiques des sédiments. En termes d'analogie, les porosités moyennes se situent généralement entre 6 et 8% du Namurien au Permien dans le bassin de Sarre-Nahe (Littke et al., 2000). Cependant, aucune information n'est fournie quant à l'origine de ces données.

II.2.3.2 Méthodes de mesure et comportement des réservoirs de gaz de charbon:

La détermination du volume de gaz retenu dans un bassin charbonneux revêt une importance pour l'exploitation économique de ce gaz et, initialement, pour évaluer les dangers liés au gaz dans les mines de charbon. Les unités utilisées sont (cm^3/g) ou (scf/ton). Deux grandes catégories de méthodes de mesure des volumes de gaz sont employées : i) Les méthodes directes consistent à collecter des échantillons de charbon à partir des forages et à mesurer le gaz émis sur des semaines ou des mois au laboratoire (The U.S. Bureau of Mines direct method, la méthode de Smith and Williams, les méthodes de fit curve). ii) Les méthodes indirectes reposent sur des corrélations, des équations ou des isothermes de laboratoire, utilisés ensuite pour établir des corrélations avec la capacité d'adsorption maximale du charbon.

La détermination des contenus de gaz en place dans les couches de charbon se fait soit par des mesures in situ dans les forages, soit par des méthodes indirectes utilisant des corrélations entre

les diagraphies et les mesures immédiates (Mullen, 1989; Mullen, 1989; Mavor et al., 1990). Le comportement du réservoir de charbon avant et après l'exploitation du CBM est régi par la capacité à stocker du gaz par sorption, où les molécules de gaz s'attachent à la surface solide de la matrice de charbon. En effet, la quantité de gaz adsorbé dépend de la pression, de la température, de la nature du gaz et des paramètres physico-chimiques du charbon tels que la surface spécifique d'adsorption et la taille des pores (Seidle, 2011).

Dans le monde, les teneurs en gaz des couches de charbon présentent des variations significatives, allant de 0,2 à 36 cm^3/g de roche. La perméabilité du charbon, variant de 0,1 md à plus de 1 000 md, est étroitement liée au système de fractures anisotropes. Ces couches de charbon, souvent considérées comme des aquifères, renferment à la fois du gaz et de l'eau, agissant comme des réservoirs à forte pression maintenant le gaz adsorbé à la matrice de charbon. Pour exploiter ce gaz, il est nécessaire d'effectuer la déshydratation du gisement en procédant au pompage de l'eau de ces réservoirs, afin de réduire la pression et déclencher la désorption. À mesure de la déshydratation, plus de gaz se désorbe des fractures, augmentant la saturation et la mobilité du gaz, entraînant une augmentation des débits atteignant un pic avant de décroître. Le débit initial d'eau diminue avec la désorption du gaz, comme illustré dans le champ gazier de Drunkard's Wash dans le bassin de Uinta (Montgomery et al., 2001; Seidle, 2011) (Figure II.2.14).

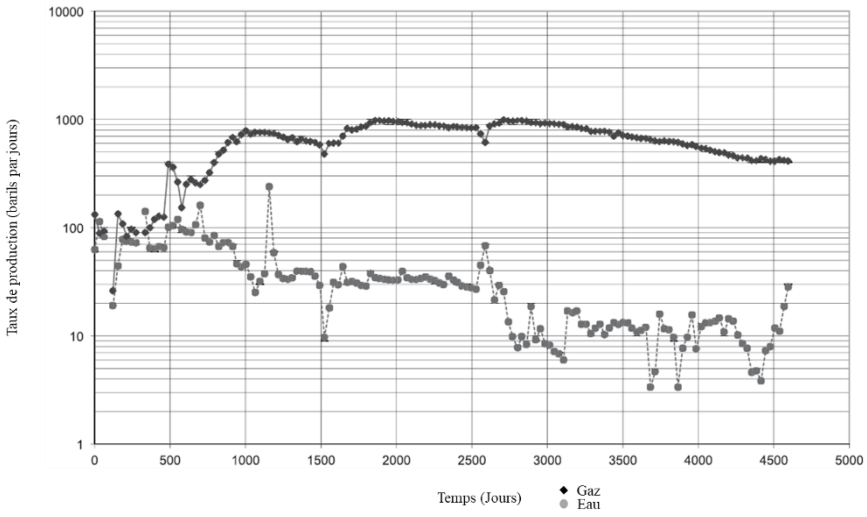


Figure II.2.14: Évolution de la production de gaz et d'eau lors de la dépressurisation du gisement de charbon : Exemple du champ de Drunkard's Wash, Uinta Basin D'après Seidle (2011).

Selon Mavor et al. (1994) et Arri (1992), le gaz adsorbé sur le charbon est souvent un mélange, généralement de méthane et de CO_2, et la composition du gaz varie tout au long de l'exploitation

du réservoir. Les mesures en laboratoire indiquent que le charbon libérera préférentiellement le méthane par rapport au CO_2 à mesure que la pression diminue. Ainsi, le flux de gaz devient de plus en plus appauvri en méthane et plus riche en CO_2 au cours de la déplétion (Figure II.2.15).

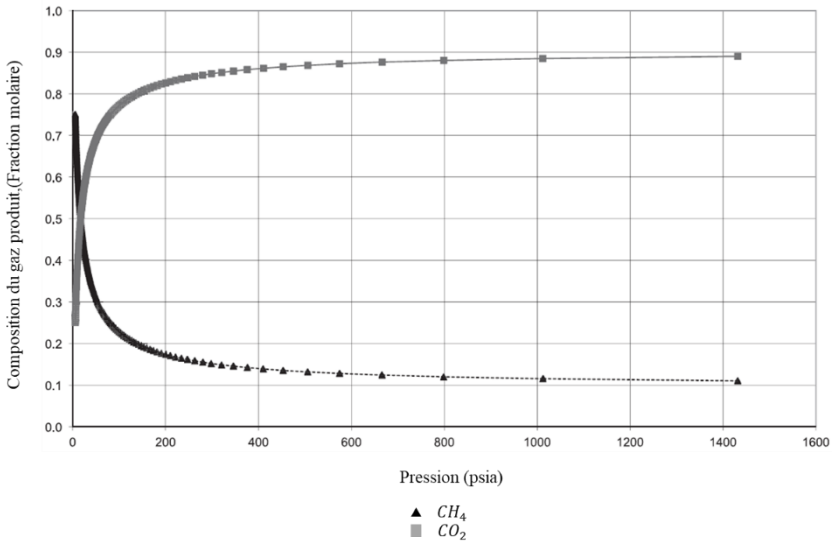


Figure II.2.15: Évolution de la Composition du Gaz en fonction de la Déplétion du Réservoir de Charbon Exemple d'un forage du bassin de San Juan. D'après Seidle (2011).

II.2.3.3 Évaluation de la Capacité d'Adsorption du Charbon et de Réserves du Gaz dans le Bassin Houiller Lorrain

Dans le bassin houiller lorrain, l'isotherme d'adsorption du charbon de La Houve, avec un %Ro de 0,74, révèle une quantité maximale de gaz adsorbé de 12 cm³/g de roche (Franlab, 2015; Izart et al., 2016). Izart et al. (2016) ont utilisé un modèle dépendant de la maturité et de la température avec PetroMod 1D et ont démontré que la capacité d'adsorption diminue de 20 à 17 cm³/g de charbon dans le Westphalien C des forages de Gironville et Saulcy, ainsi que dans le Westphalien D du forage de Folschviller de la zone d'exploitation de la Française de l'Énergie. Dans cette dernière, des mesures de 11 à 13 cm³/g de gaz désorbé sont observées et sont inférieures à la capacité maximale de stockage (20 m³/tonne de roche) (Izart et al., 2016). Des études en tomographie sur le système de Cleat ont démontré que le charbon de Folschviller se caractérise avec une bonne connectivité offrant des preuves d'une possible exploitation du CBM dans ce bassin sans fracturation hydraulique (Privalov et al., 2020).

La quantité de la ressource exploitable est d'environ 371 milliards de m³, confirmée par la Française de l'Énergie et l'IFPEN dans leur permis d'exploration (Gunzburger, 2019). La Française de l'Énergie utilise actuellement une méthodologie de forage horizontal dans les

couches de charbon pour améliorer la surface de désorption du gaz. Elle procède à la déshydratation du charbon pour diminuer la pression et augmenter la désorption du gaz.

II.2.3.4 Utilisation des diagraphies pour l'ingénierie et l'Exploration du gaz de charbon :

II.2.3.4.1 Les diagraphies

Les diagraphies sont des enregistrements sous forme de courbes de divers paramètres physiques en fonction de la profondeur des formations géologiques traversées par les forages, tels que la radioactivité ou la densité. Les valeurs des paramètres physiques mesurés dépendent de la composition minéralogique, de la texture et de la structure des roches rencontrées (Serra, 1984; Rider, 1986).

Les diagraphies sont utilisées pour identifier les différentes lithologies dans les environnements de dépôt fluviatile, mesurer l'épaisseur des couches estimer leurs propriétés pétrophysiques, telles que la densité, la porosité et la perméabilité. Les diagraphies les plus utiles pour les réservoirs de gaz de charbon, et qui sont utilisées dans cette étude (Table II.2.4), comprennent le caliper, le gamma ray, le log de densité, le log de sonique et la résistivité électrique.

Propriété diagraphique	Réponses
Densité	0.70 -1.80 g/cm^3
Gamma Ray	20-25 API
Caliper	Variable
Porosité neutron	>50 %
lenteur sonique	95-135 µs/ft
Résistivité	Variable

Table II.2.4: Intervalles de variation des réponses des lectures diagraphiques pour les couches de charbon selon Hollub et Schafer (1992), modifié d'après Seidle (2011).

- La diagraphie de diamètre du trou de forage (Caliper) est utilisée comme outil de contrôle qualité pour les autres diagraphies. Elle permet d'identifier les zones de charbon friable où les lectures du Gamma Ray et de la densité peuvent être erronées, ce qui entraînerait des erreurs dans l'estimation des paramètres pétrophysiques basées sur ces deux diagraphies.
- Le Gamma Ray est une diagraphie qui mesure la radioactivité gamma (γ) naturelle des formations géologiques traversées. Les unités de mesure sont données en API (American Petroleum Institute). Dans les roches sédimentaires, la radioactivité gamma est principalement due à la présence de trois éléments: le potassium (K), l'uranium (U) et le thorium (Th). Les principales roches sédimentaires naturellement radioactives en

raison de la présence de ces éléments incluent les argiles (K : illite, micas ; Th : kaolinite, U en moindre quantité), les roches riches en matière organique (U), les évaporites riches en sels de potasse (K) et les phosphates (K, U), ainsi que les sables et les grès riches en feldspaths (K) et micas (K), ou en minéraux résistants (Th, U) tels que le zircon, la monazite et le sphène. Dans les bassins charbonneux, la diagraphie de Gamma Ray a été utilisée comme un indicateur des roches sources, notamment les argilites riches en matière organique qui présentent des concentrations significatives d'uranium. Une étude menée par Schmoker et al. (1981) a appliqué cette méthode pour identifier et quantifier la teneur en matière organique dans ces intervalles riches en matière organique en raison de la forte concentration d'uranium, notamment dans les shale marins. En effet, l'uranium est adsorbé par la matière organique dans des conditions réductrices favorisées par les bactéries, ce qui entraîne des valeurs élevées de Gamma Ray dans les argilites riches en matière organique (Rider et Kennedey, 2011). Dans les environnements de dépôt continentaux, l'uranium n'est pas adsorbé dans les zones marécageuses dépourvues d'argile, d'où des valeurs faibles de Gamma Ray dans les charbons purs (Christoffel et Kayal, 1989).

- La diagraphie de densité globale (Bulk density) est largement employée dans l'ingénierie des réservoirs de gaz de charbon. Son utilisation consiste à identifier les couches de charbon, à déterminer l'épaisseur nette de charbon, et à établir des corrélations entre la densité et les teneurs en cendres et en gaz in situ (Mullen, 1989). La densité du charbon, inférieure à celle des roches de réservoir conventionnelles, dépend du rang et de la pureté du charbon. En ordre croissant de rang, la densité varie, par exemple, de 0,7 à 1,5 g/cm3 pour les lignites, de 1,2 à 1,75 g/cm3 pour les sub-bitumineux, de 1,2 à 1,5 g/cm3 pour les bitumineux, et de 1,4 à 1,8 g/cm3 pour les anthracites (Seidle, 2011).
- La diagraphie sonique, également appelée diagraphie acoustique, repose sur la mesure de la vitesse de propagation des ondes sonores. Cette vitesse dépend du temps mis par les ondes acoustiques pour parcourir la roche après l'émission d'un train d'ondes. Le paramètre utilisé dans cette mesure est la lenteur sonique, exprimée en microsecondes par pied (µs/ft). Les logs soniques sont des outils pour l'identification des couches de charbon (Rider et Kennedey, 2011; Seidle, 2011). Le temps de transit des ondes soniques dans le charbon se situe entre celui du grès et de l'argile. Bien que les logs soniques soient utiles pour évaluer la qualité du charbon, leur application à l'ingénierie des réservoirs de gaz de charbon est limitée par certaines contraintes telles que les

phénomènes de breakout et de washout. Néanmoins, combinés avec les outils précédemment mentionnés, les logs soniques peuvent servir d'indicateur du contenu en kérogène (Passey et al., 1990 ; Meyer and Nederlof, 1984).

- Les diagraphies de résistivité électrique repose sur la mesure de la résistivité des formations traversées après l'application d'un courant électrique. Elles sont généralement subdivisées en fonction de leur diamètre d'investigation, comprenant les diagraphies de résistivité du champ lointain qui permettent de déterminer la résistivité de la formation vierge (Rt) ainsi que celle des fluides présents dans la formation (Rw). Leur résolution verticale est généralement moyenne. D'autre part, les diagraphies de résistivité du champ proche se concentrent sur la zone immédiatement adjacente au puits (Rxo) ainsi que sur les propriétés de la boue de forage (Rmf) pour les formations poreuses et perméables. Leur résolution verticale est excellente. Enfin, les diagraphies de résistivité du champ moyen permettent de déterminer la résistivité de la zone envahie par les fluides de forage, ainsi que celle du mélange entre le filtrat de la boue de forage et les fluides de la formation. Les couches de charbon présentent des valeurs élevées (Keskinsezer et al., 2019). présentant une résistivité très basse pour le lignite et l'anthracite, tandis que le charbon subbitumineux et bitumineux affiche une plage de valeurs de résistivité s'étendant de faible à élevée (Mavor et al., 1994; Thomas, 2002). La résistivité de l'argilite est également sensible à la teneur en kérogène. De plus, la résistivité peut être influencée par des facteurs tels que la salinité et le volume de l'eau, ainsi que la quantité d'argile ou de minéraux conducteurs tels que la pyrite (Sondergeld et al., 2010) et doit donc être combinée avec d'autres outils pour déterminer la teneur en matière organique .

Plusieurs approches multi-diagraphiques offrent une analyse approfondie des propriétés des couches de charbon, essentielle pour l'identification, la caractérisation précise des réservoirs, le calcul du rang de charbon, l'évaluation des volumes de gaz, et l'estimation des taux de carbone organique total (TOC) responsable de la génération de ces gaz. Ces approches ont été développées au cours des dernières années (Table II.2.5). Chaque diagraphie contribue à l'évaluation complète de ces formations, allant de leur composition à leurs propriétés physiques.

Evaluation	Diagraphies
Identification des couches de charbon	Densité Gamma Ray Caliper Lenteur sonique Porosité neutron Résistivité
Calcul des épaisseurs des couches	Densité Porosité neutron
Calcul de densité de charbon	Densité Porosité neutron
Analyses de composition de charbon	Densité Gamma Ray Porosité neutron
Rang de charbon	Lenteur sonique
Evaluation des volumes de gaz	Densité Gamma Ray Porosité neutron
Calcul des teneurs en matière organiques	Densité Gamma Ray Porosité neutron Lenteur sonique Résistivité

Table II.2.5: Utilisation des diagraphies pour les différents types d'évaluation dans l'exploration et l'exploitation du gaz de charbon, modifiées d'après Seidle (2011), Hollub et Schafer, 1992 et Mavor et al. (1994)

II.2.3.4.2 Évaluation des réservoirs de gaz de charbon (CBM)

Ces dernières années, l'attention mondiale s'est de plus en plus tournée vers le développement des réservoirs de CBM (Paul et Chatterjee, 2011; Moore, 2012). Les diagraphies ont été largement utilisées pour l'exploration des réservoirs de CBM en fournissant des workflows pour évaluer la qualité du charbon, ainsi que les paramètres du réservoir tels que la fracturation, la perméabilité et la teneur en gaz (Chatterjee et Paul, 2013; Meng et al., 2013; Sutton et al., 2014; Ghosh et al., 2016; Su et al., 2018). La combinaison de diagraphies telles que la densité globale, l'analyse spectrale, l'imagerie sonique et de résistivité, ainsi que les mesures de propriétés mécaniques, a été largement testée et calibrée avec des carottes contribuant à l'ingénierie des réservoirs de charbon.

Dans l'évaluation des réservoirs de CBM, l'accent principal est mis sur l'identification des couches de charbon et l'estimation des paramètres du réservoir de CBM. Contrairement au gaz

naturel conventionnel, l'évaluation du CBM implique l'analyse proximale, la teneur en gaz, la porosité et la perméabilité. Diverses méthodes de diagraphie géophysique ont été utilisées pour identifier et évaluer les réservoirs de CBM (Kim, 1977; Chatterjee et Paul, 2013; Seidle, 2011; Ma et al., 2011; Thararoop et al., 2012).

Le charbon est constitué de carbone fixe, de cendres, d'humidité et de gaz, (Figure II.2.16) contribuant chacun à des propriétés distinctes de la diagraphie (Flores, 1998, 2013; Reddy, 2010). Des recherches ont été menées pour prédire et estimer ces composants, s'appuyant souvent sur l'application de modèles de volume et de techniques d'analyse de régression (Bond et al., 1969; Jie et al., 2014; Baouche et Wood, 2020).

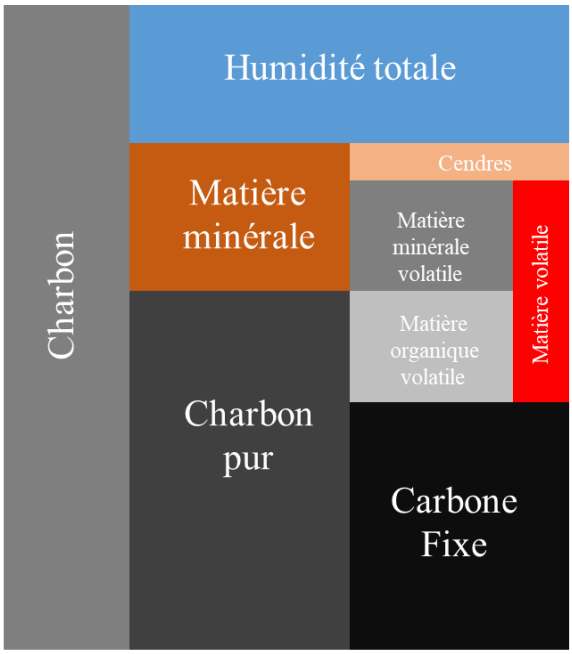


Figure II.2.16: La composition de charbon selon les analyses proximales modifié d'après Ward (1984).

La complexité du stockage et de l'écoulement du gaz naturel dans les couches de charbon découle de leur faible porosité et perméabilité. Trois séquences distinctes d'écoulement de fluide, résultant des interactions eau-gaz, sont observées : la désorption du gaz de la matrice de charbon, l'écoulement à travers le réseau de porosité de la matrice et le transport à travers les fractures ouvertes (système de cleats) principalement remplies d'eau (Levine, 1993; Jie et al., 2014; Liu et al., 2015).

Pour le Bassin lorrain, dans un premier temps, une analyse par histogramme des propriétés diagraphiques a été réalisée pour identifier les lithologies prédominantes. Ensuite, une analyse

de cross-plots a été utilisée pour interpréter les caractéristiques des éléments architecturaux dans le bassin. L'estimation des volumes de gaz absorbés dans les réservoirs porteurs de charbon a été réalisée à l'aide d'un workflow (section II.3.2), dont la méthodologie impliquait :

- Le calcul des volumes d'argile dans différentes faciès, y compris les grès, les conglomérats, les intervalles riches en argile et les formations de charbon.
- La détermination de la porosité effective des faciès non charbonneux en utilisant la porosité totale du log de densité.
- L'estimation de la porosité effective au sein des couches de charbon, qui est un conducteur de l'écoulement des fluides et du gaz dans les couches de charbon.
- La détermination des équations empiriques pour l'analyse proximale ont été formulées pour prédire différentes composantes, englobant la teneur en humidité, la teneur en cendres, la teneur en matières volatiles et la teneur en carbone fixe.
- L'estimation de quantité de gaz adsorbé sur le charbon en utilisant des normes internationalement reconnues et des équations développées dans l'ingénierie des réservoirs de CBM.

II.2.3.4.3 Détermination du contenu en carbone organique total (COT)

La détermination du carbone organique total (COT) à partir des diagraphies a été développée pour les roches-mères pétrolières marines (Nixon, 1973; Meissner, 1987; Meyer and Nederlof, 1984; Mendelzon et Toksoz, 1985; Mann et Muller, 1986,1988; Passey et al., 1990; Bessereau et al., 1991). Schmoker (1979, 1981) fait partie des premiers chercheurs à proposer une méthode de calcul du contenu en TOC à partir des propriétés physiques de la roche. Schmoker (1979) a proposé une relation linéaire entre le TOC et le log de densité. Généralement, la densité de la matrice minérale des argiles présente une valeur moyenne de 2,7 g/cm^3, tandis que les valeurs pour la matière organique varient de 1,2 à 1,4 g/cm^3. La présence de la matière organique influence fortement la densité globale et donc le COT est calculé à partir des logs de densité. Meyer et Nederlof (1984) ont proposé d'utiliser une combinaison d'outils géophysiques. Ils décrivent les roches-mères pétrolières dans un modèle de roche mère immature et mature (Figure II.2.17), où les roches-mères matures se distinguent par leur faible densité, leur vitesse de propagation des ondes sonores réduite et leur forte résistivité électrique. Par conséquent, la teneur en carbone organique total (TOC) peut être calculée (Mendelzon et Toksoz, 1985).

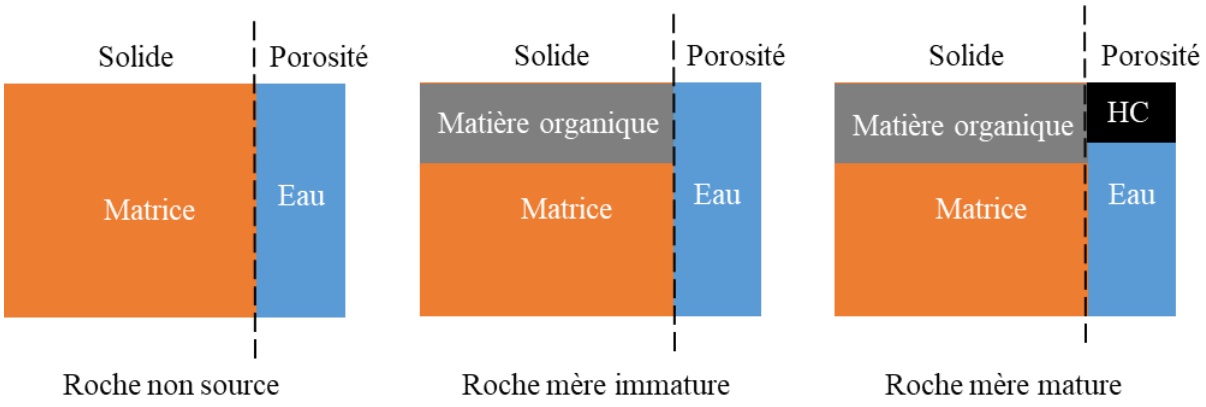


Figure II.2.17: Modèle schématique des constituants d'une roche mère mature et immature, modifié d'après Mendelzon et Toksoz (1985) et Passey et al. (1990).

Pour améliorer l'évaluation du TOC, Passey et al. (1990) ont proposé d'utiliser une combinaison de diagraphies et ont développé la technique du Δ log R qui consiste en la superposition de la porosité (sonique, densité, neutron) aux logs de résistivité (Figure II.2.18). Dans les sédiments riches en matière organique, les deux signaux géophysiques sont distincts et l'amplitude de séparation des deux signaux est proportionnelle au TOC. Un problème avec cette méthode est que la technique du Δ log R nécessite la sélection arbitraire d'une ligne de base qui varie considérablement d'un puits à l'autre en fonction des réponses lithologiques (Yu et al., 2017; Wang, 2022) et de la maturité thermique du kérogène (Sun et al., 2013).

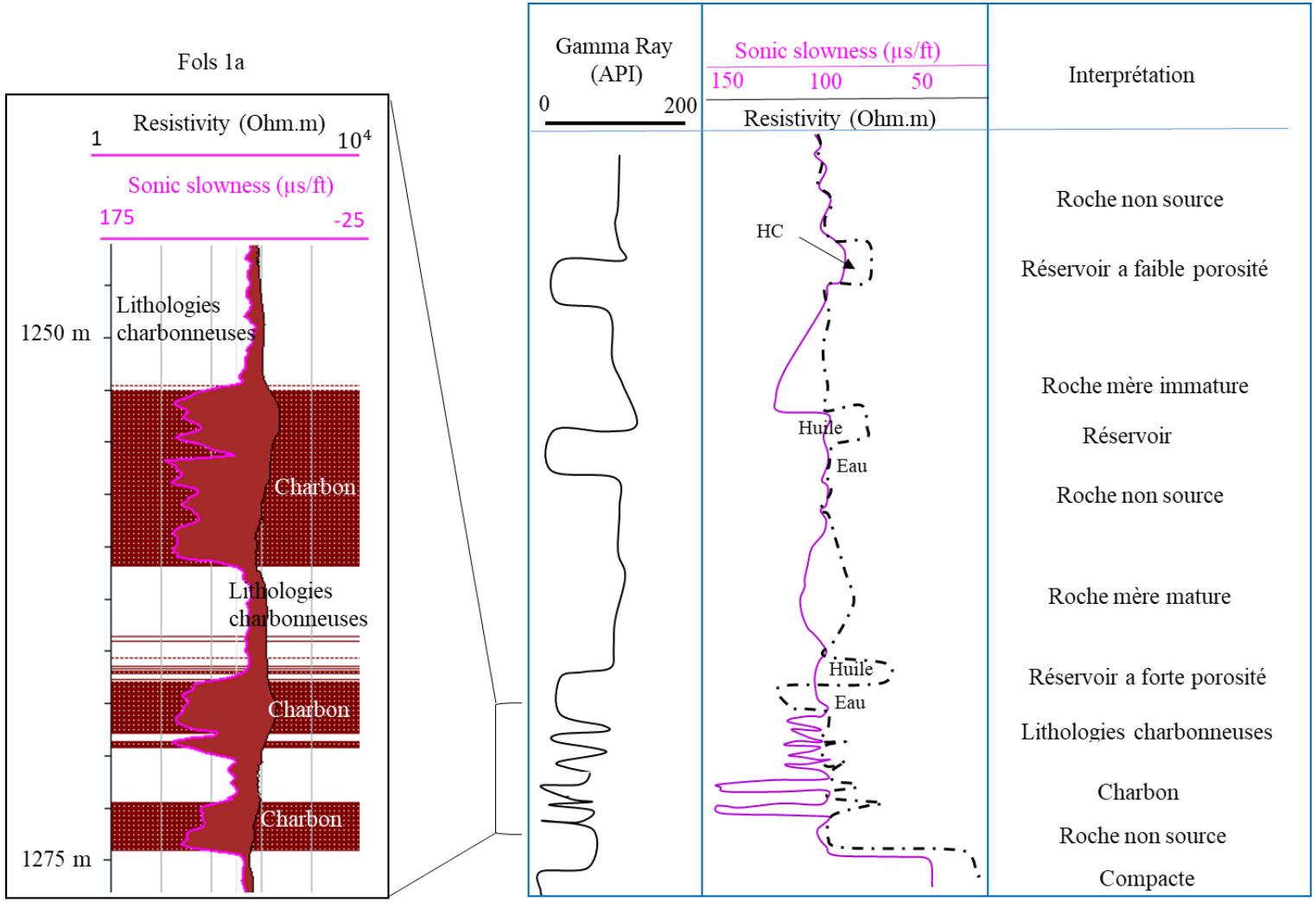


Figure II.2.18: Schéma d'interprétation des variations réponses delta R tel que proposé par Passey et al. (1990), avec un exemple de diagraphies combinées dans le forage Fols 1a.

Bessereau et al. (1991) ont introduit la méthode CARBOLOG, qui utilise la lenteur sonique et les logs de résistivité en tenant compte de la composition de la roche, y compris la matrice, l'eau, l'argile et la matière organique (Figure II.2.17). La méthode définit le diagramme CARBOLOG, où la racine carrée de la résistivité est tracée en fonction de la lenteur sonique. Cependant, il est à noter que l'étalonnage de cette technique nécessite des mesures de TOC en laboratoire.

D'après Bessereau et al. (1991), La diagraphie de la lenteur sonique permet de distinguer les argiles, leurs eaux interstitielles, et la matière organique, qui se distinguent par une faible vitesse de propagation d'onde sonique, des minéraux de la matrice autres que les argiles, caractérisés par une forte vitesse de propagation d'onde sonique. Étant donné que la matière organique présente des résistivités infiniment élevées par rapport aux argiles et à leurs eaux interstitielles conductrices, la diagraphie de résistivité est utilisée pour séparer ces deux types de signature (Figure II.2.19).

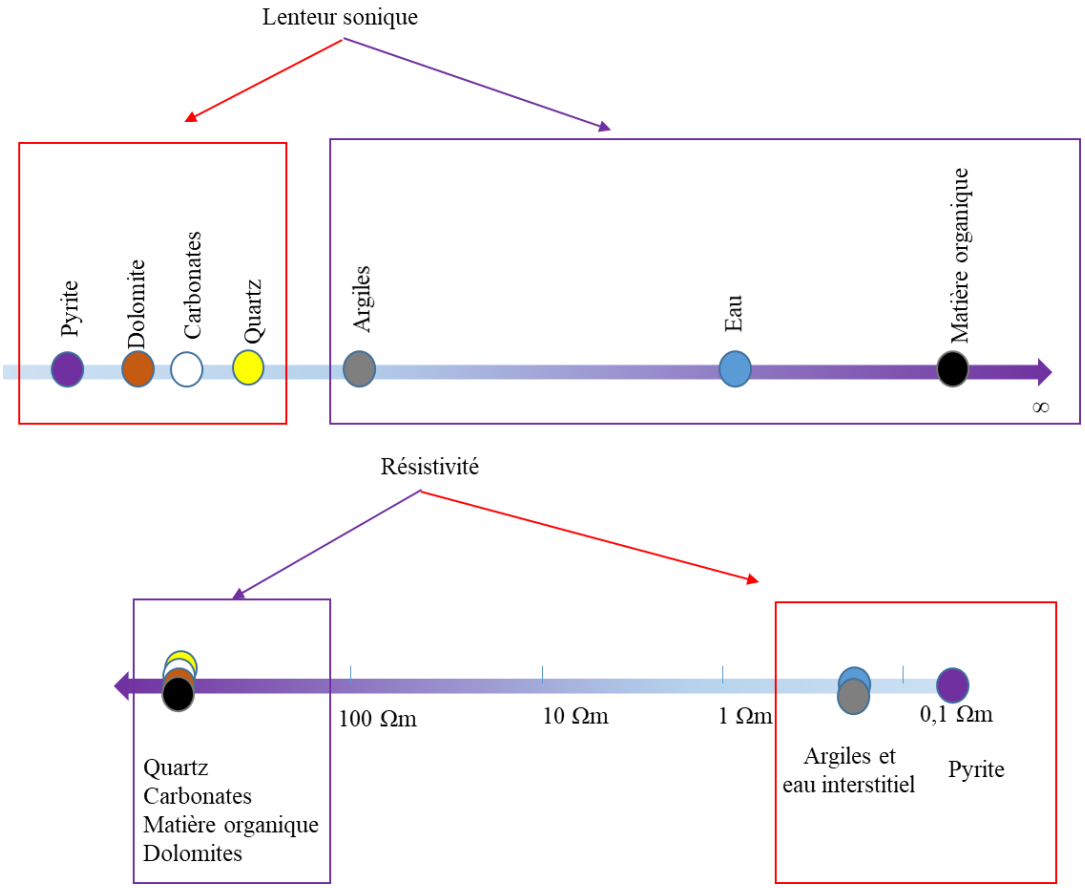


Figure II.2.19: Réponse des diagraphies soniques et de résistivité aux principaux composants des roches sédimentaires modifiées d'après Bessereau et al. (1991).

La théorie des deux méthodes de Schmoker et Δ log R, ainsi que leurs cas d'application, est clairement expliquée dans la section III.2.3.2. Actuellement, la méthode la plus avancée pour calculer le TOC à l'aide de données de diagraphie de puits est l'application de méthodes de réseau neuronal artificiel (ANN). Cependant, il n'existe actuellement aucun algorithme standardisé disponible pour le calcul du TOC à partir de diagraphies, principalement en raison de l'hétérogénéité des formations lithologiques (Chan et al., 2022). Par conséquent, il est nécessaire de sélectionner des logs diagraphiques appropriés s à la formation pour générer un modèle. À l'avenir, on s'attend à ce que des modèles plus précis soient développés pour quantifier le TOC dans des contextes non conventionnels, étant donné l'augmentation des activités de production à l'échelle mondiale, ce qui entraîne une croissance des publications de prévision du TOC à l'aide de machine learning (Tan et al., 2015; Bolandi et al., 2017; Mahmoud et al., 2017, 2019; Nezhad et al., 2018; Elkatatny, 2019; Wang et al., 2019; Zhu et al., 2023).

Très peu de publications ont exploré l'application de la géophysique des puits pour déterminer la teneur en carbone organique total (TOC) dans les systèmes lithologiques continentaux riches en charbon, tel que l'étude menée par Li et Zhang (2023). Dans leurs recherches, ils ont proposé une modification des équations développées par Passey et al. (1990) qui impliquait l'incorporation de la diagraphie de spectroscopie gamma naturel et l'intégration des données de densité dans l'équation. Cependant, l'indisponibilité de la spectrométrie gamma dans notre zone d'étude, ainsi que certains puits ayant uniquement des logs de résistivité et sonique, tandis que d'autres n'avaient que des logs de densité, nous ont contraints à rechercher et à proposer des équations pouvant s'adapter à la disponibilité des différentes diagraphies (section III.2).

II.3 Matériel, outils et stratégie méthodologique

Sommaire

II.3 Matériel, outils et stratégie méthodologique ---------- 93
II.3.1 Matériel 94
II.3.1.1 Carottes et échantillons de roches 94
II.3.1.1.1 Etude des carottes et collecte d'échantillons. 94
II.3.1.1.2 Préparation des échantillons : 98
II.3.1.2 Diagraphies 98
II.3.1.2.1 Disponibilité des enregistrements diagraphiques : 98
II.3.1.2.2 Format et traitement des données : 99
II.3.2 Méthodologie globale 99
II.3.2.1 Les analyses de la matière organique 103
II.3.2.1.1 Le Rock Eval 103
II.3.2.1.2 Analyses élémentaires 105
II.3.2.1.3 Pétrographie organique 105
II.3.2.1.4 Analyses cinétiques de genèse d'hydrocarbures 108
II.3.2.1.5 Maturation artificielle par pyrolyse confinée 108
II.3.2.1.6 Analyses des gaz par thermodésoprtion couplée à la chromatographie multidimensionnelle (TDMDGC) 111
II.3.2.2 Les analyses minéralogiques par diffraction des rayons X 113
II.3.2.2.1 Analyse de roche totale 113
II.3.2.2.2 Analyse de la fraction argileuse 113

II.3 Matériel, outils et stratégie méthodologique

Pour cette étude, 8 forages différents (Figure II.3.1) ont été sélectionnés le long d'un transect est-ouest, s'étendant depuis la zone de concession pour l'exploitation du gaz de charbon de La française de l'Énergie (à l'est du bassin) jusqu'à la limite ouest du bassin carbonifère (Table II.3.1).

Forages	Abréviation	Type de données	Mise à disposition par	Foré Par
Folschviller 1A	FOLS 1A	Carottes	La Française de l'Energie	La Française de l'Energie
		Diagraphies		
Diebling Str 1	DBL S1	Carottes	La Française de l'Energie	La Française de l'Energie
		Diagraphies		
Johannsweiler 1	JHS 1	Diagraphies	La Française de l'Energie	La Française de l'Energie
Coume	CUM	Carottes	Université de Lorraine	Houillères du Bassin de Lorraine
Saulcy 1	SUY 1	Carottes	La Française de l'Energie	ConocoPhillips
		Diagraphies		
Lorettes 1	LRT 1	Carottes	La Française de l'Energie	ConocoPhillips
		Diagraphies		
Chaumont 1	CMN 1	Carottes	La Française de l'Energie	ConocoPhillips
		Diagraphies		
Gironville 101	Grt-101	Carottes	TotalEnergies	Société Nationale des Pétroles d'Aquitaine
		Diagraphies	Bureau de Recherches Géologiques et Minières	

Table II.3.1: Types de données utilisées et sociétés ayant accordé l'accès aux données du sous-sol par forage dans l'étude du bassin houiller lorrain. La localisation des forages et les unités stratigraphiques traversées sont mentionnées dans la Figure II.3.1.

Les carottes ont été utilisées pour obtenir des informations sur la caractérisation de l'environnement de dépôt et du calage, en utilisant les signatures diagraphiques. Cela nous a permis de développer un protocole de reconnaissance de l'environnement de dépôt et de lithologie pour les forages ne disposant pas de carottes. De plus, la comparaison avec les données sur la composition des charbons a permis de générer des modèles pour le calcul des taux de cendres et des volumes de gaz in situ. De même, la comparaison avec les données de porosité sur échantillons (M. Mombo, communication personnelle) a permis de valider les méthodes de calcul des porosités à partir des diagraphies utilisées dans cette étude (Section III.1).

Les échantillons analysés par approche organique au laboratoire (Rock Eval) et le calage avec les signaux géophysiques ont été utilisés pour développer des méthodes permettant d'estimer en continu les teneurs en matière organique le long des forages (Section III.2).

De plus, ces échantillons ont permis de caractériser les paramètres organo-pétrographiques et chimiques des charbons, ainsi que l'état de maturité de la matière organique dans les échantillons du bassin lorrain (Sections III.3 et IV).

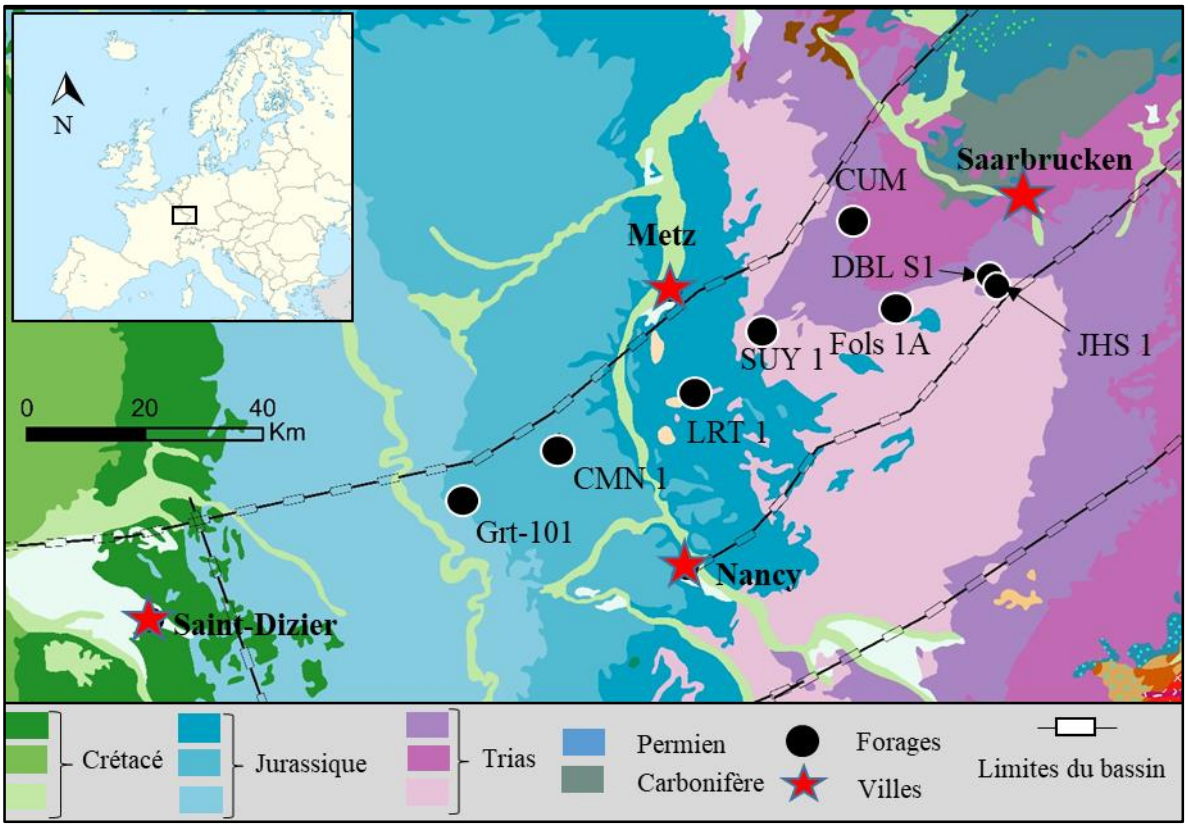


Figure II.3.1: Carte indiquant les positions des forages exploités dans les travaux cette étude dans les limites du bassin houiller lorrain.

II.3.1 Matériel

II.3.1.1 Carottes et échantillons de roches

II.3.1.1.1 Etude des carottes et collecte d'échantillons.

Les carottes de forage (Figure II.3.2) provenant des puits Fols 1A et Dbl S1, qui traversent le Carbonifère supérieur à l'est du bassin, ont été examinées pour les études lithologiques et sédimentologiques. Les autres carottes, précédemment étudiées par Palain (1995), Fleck (2001) et Izart et al. (2016), sont réexaminées dans la présente étude selon les besoins.

L’inventaire des échantillons de carotte prélevés est présenté dans la Table II.3.2. Parmi cette collection, certains échantillons ont été extraits des forages Fols 1A et Dbl S1 à l'est du bassin, d’autres ont été prélevés dans les forages de Saulcy, Lorette et Chaumont, dans le but de compléter l'étude de Fleck (2001) selon un transect est-ouest. Les autres échantillons proviennent du forage de Gironville, qui traverse l'ensemble de la pile sédimentaire du Carbonifère, et ont été collectés à la carothèque de Boussens. Les emplacements et les niveaux stratigraphiques des échantillons sont représentés dans la Figure II.3.2.

Forages	Analyses Rock Eval			Analyses Macerales	Pouvoir de réflectance de la vitrinite	Analyses élémentaires	Analyses cinétiques	DRX	
								RT	FA
	Grès et conglomérats	Argiles et silites	Charbons et faciès charbonneux	Charbons et faciès charbonneux	Charbons et faciès charbonneux	Charbons et faciès charbonneux	toutes lithologies	Toutes lithologies	Toutes lithologies
FOLS 1A	6	9	15 *	8	9	5	3	19	19
DBL S1	5	3	12	6	5	6	0	15	15
CUM	0	0	4	4	4	4	0	0	0
SUY 1	13 *	24 *	58 *	6	10	10	0	0	0
LRT 1	0	7	0	0	0	0	0	0	0
GRT 1	1	14	23	4	17	0	0	0	0
Neunkirchen (Affleurement)	0	0	1	1	0	1	0	0	0
BURBACH (Affleurement)	0	0	1	1	1	1	0	0	0

*Table II.3.2: Répartition des échantillons par lithologie et méthode analytique dans le bassin lorrain : (DRX - Diffraction des rayons X, Rt -Roche Totale, Fa - Fraction Argileuse) *Inclut des échantillons prélévés dans le cadre de la thèse de Fleck (2001).*

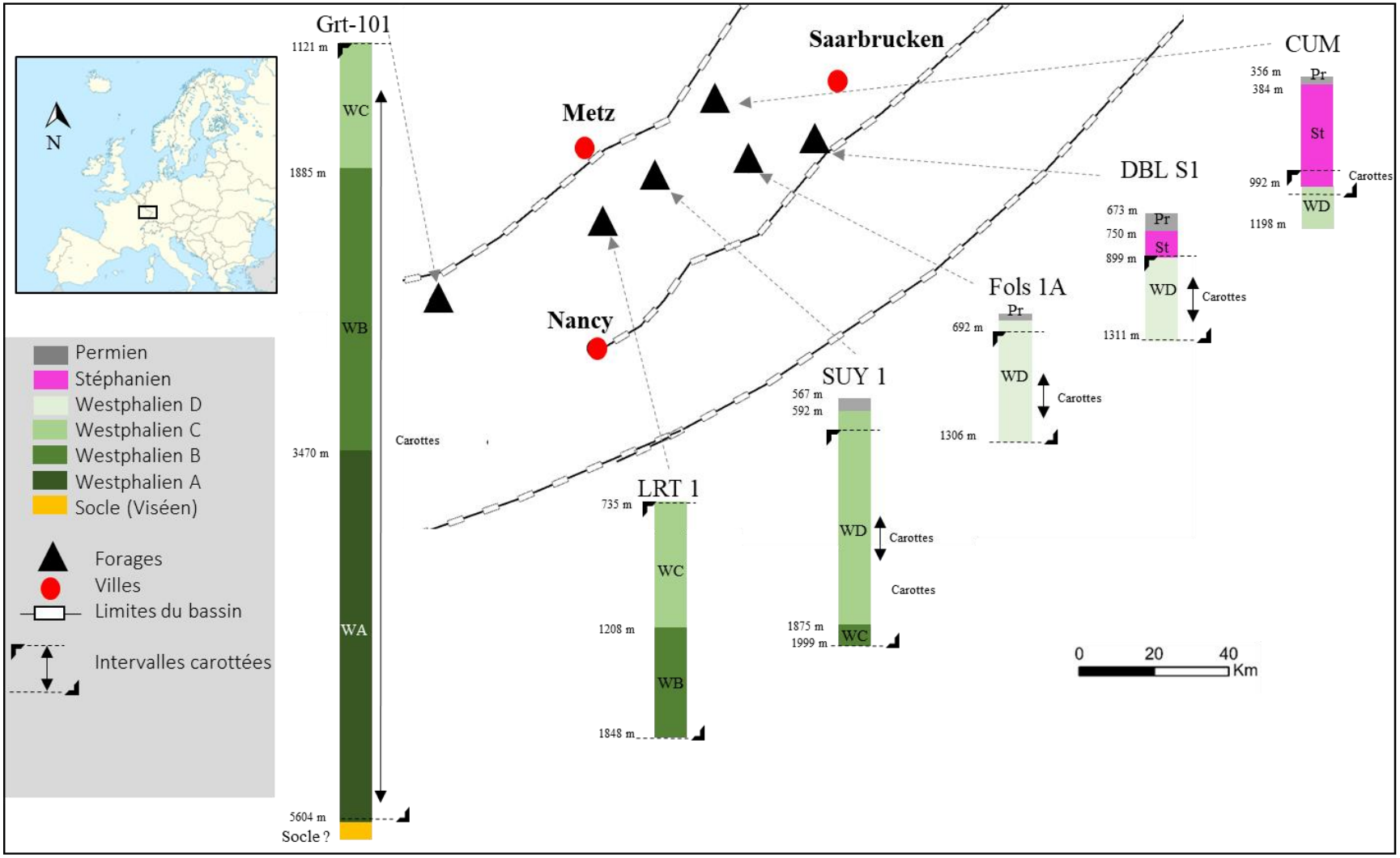


Figure II.3.2: Carte du bassin lorrain indiquant les emplacements des forages exploités dans le cadre de cette étude et présentant les sections stratigraphiques carottées.

.

II.3.1.1.2 Préparation des échantillons :

Les échantillons étudiés au cours de cette étude proviennent de carottes et d'affleurements géologiques. Les échantillons issus de différentes carottes (La Française de l'énergie, Conco Philips) ont été préparés selon un protocole identique. Chaque échantillon a été prélevé en tenant compte de son état de préservation. Le stockage des échantillons s'est effectué sous forme de roche intacte, enveloppée dans du papier aluminium pour éviter tout contact avec des sacs en plastique et prévenir de la contamination par des produits hydrocarbonés. Une partie des échantillons a ensuite été broyée à l'aide d'un broyeur à mâchoires, tandis que la partie grossière a été conservée dans de grands flacons en verre en vue des analyses de la fraction argileuse, avec une nomenclature indiquant le nom du forage et la profondeur du prélèvement. Les échantillons broyés ont été porphyrisés pour obtenir une granulométrie inférieure à 400 micromètres et stockés dans de petits flacons en verre de couleur rouge brique en vue des analyses de la matière organique et de la diffraction des rayons X sur la roche totale. Il est à noter que lors du prélèvement des échantillons sur les carottes, des échantillons témoins ou des carottes fantômes ont été laissés sur les caisses lorsque cela était possible, afin de conserver une trace de l'échantillonnage.

II.3.1.2 Diagraphies :

II.3.1.2.1 Disponibilité des enregistrements diagraphiques :

Les diagraphies de forage mises à disposition dans le bassin sarro-lorrain se répartissent comme suit : à l'est du bassin, on retrouve les diagraphies de forage de Fols 1A, DBL S1 et JHS 1 fournies par la Française De l'Energie. À l'ouest du bassin, les diagraphies acquises par Conoco sont converties au format LAS pour traitement. Ces données concernent les sites de Saulcy, Lorette et Chaumont. Les diagraphies de forage de Gironville ont été acquises auprès du BRGM.

Dans la Table II.3.3, on peut constater qu'un jeu complet de données est disponible pour certains forages. Ces données comprennent le Gamma Ray, le log de densité, le log sonic et les résistivités électriques. Les forages Fols 1A, DBL S1 et JHS 1 correspondent à cette catégorie. En revanche, d'autres forages ne fournissent que des données de densité seules, ou des données combinées de sonic et de résistivité. Les forages Lorette, Chaumont, Saulcy et Gironville (Table II.3.3) entrent dans cette catégorie. Selon les combinaisons d'outils diagraphiques disponibles, certaines évaluations pétrophysiques ou géochimiques n'ont pas pu être réalisées.

Forages	Gamma Ray	Densité Globale	Résistivité électrique	Lenteur sonique	Porosité neutron	Evaluation Pétrophysique et calcule et volumes des gaz in situ	Calcul de la teneur en carbone organique total
Folschviller 1A	Oui	Oui	Oui	Oui	Oui	Oui	Oui
Diebling Str 1	Oui	Oui	Oui	Oui	Non	Oui	Oui
Johannsweiler 1	Oui	Oui	Oui	Oui	Non	Oui	Oui
Saulcy 1	Oui	Non	Oui	Oui	Non	Non	Oui
Lorettes 1	Oui	Non	Oui	Oui	Non	Non	Oui
Chaumont 1	Oui	Non	Oui	Oui	Non	Non	Oui
Gironville 101	Oui	Problème de saturation de signal	Non complet	Non Complet	Non	Non	Problème de saturation de signal

Table II.3.3: les ensembles de données de diagraphies disponibles par forage. Selon leurs disponibilités certaines évaluations pétrophysiques ou géochimiques n'ont pas pu être réalisées. Les informations concernant leur disponibilité et les données stratigraphiques sont fournies dans les sections III.1 et III.2.

II.3.1.2.2 Format et traitement des données :

L'étude est basée sur l'analyse de données principalement au format LAS (Log ASCII Standard), qui est un format de fichier texte utilisé pour stocker et partager des données de diagraphies et de forage. Ce format permet de présenter les données de diagraphie sous forme de colonnes de valeurs numériques, accompagnées d'en-têtes de colonne détaillant chaque paramètre.

Le traitement des données a été effectué à l'aide du logiciel ©Techlog de Schlumberger, permettant de nettoyer, corréler et préparer les données en vue de leur interprétation et de visualisation. Tous les calculs ont été réalisés pour obtenir une visualisation avancée des données (Log View, des graphiques croisés (cross plots), des histogrammes et des boîtes à moustaches (box plots).

II.3.2 Méthodologie globale

Un workflow basé sur différentes méthodologies a été suivi dans le cadre de cette étude. Les objectifs étaient les suivants :

- Étude stratigraphique : Cette phase consistait en l'analyse des données provenant de l'ensemble des puits disponibles dans le but de comprendre la nature, la répartition et les environnements de dépôt des différentes lithologies présentes dans le bassin houiller lorrain. De plus, des paramètres pétrophysiques ont été calculés pour décrire les lithologies dominantes et estimer les volumes de gaz in situ dans les couches de charbon (Figure II.3.3).

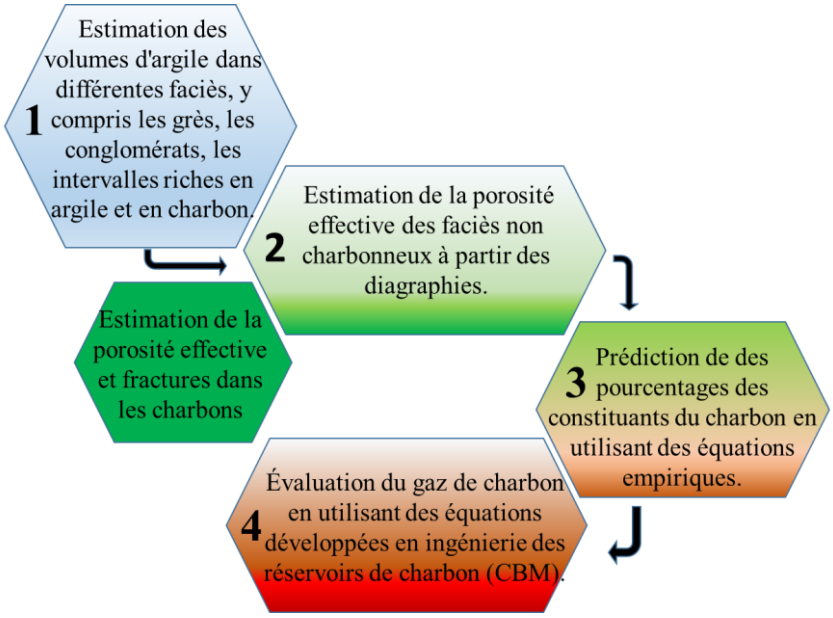


Figure II.3.3: Schéma illustrant les étapes et la méthodologie adoptée pour estimer les paramètres pétrophysiques et les volumes de gaz de charbon dans la section III-1.

- Une méthodologie systématique a été développée pour quantifier les teneurs en carbone organique (TOC) dans ces différentes lithologies, en se concentrant sur chaque puits individuellement.
- Une étude des caractéristiques de pétrographie et de géochimie organiques des charbons a été menée dans le but d'identifier la variabilité des roches-mères et de leurs potentiels gaziers.
- Des expériences de maturation artificielle en laboratoire ont été réalisées afin de quantifier et de caractériser les compositions isotopiques des constituants des gaz.
- Étude de l'histoire géologique : Cette phase consistait à examiner l'histoire d'enfouissement et la thermicité du bassin. La modélisation de bassin a été utilisée pour documenter l'évolution de la maturité thermique des roches-mères au fil du temps.

- Pour mettre en œuvre le plan de travail, les diagraphies et les carottes ont été utilisées comme données d'entrée, passant par différentes méthodes expérimentales et analytiques (traitement des signaux, notamment), afin d'obtenir les données de sortie Ces données contribuent à l'estimation du potentiel pétrolier du bassin houiller lorrain, dont les démarches suivies sont représentées dans le schéma de la Figure II.3.4.

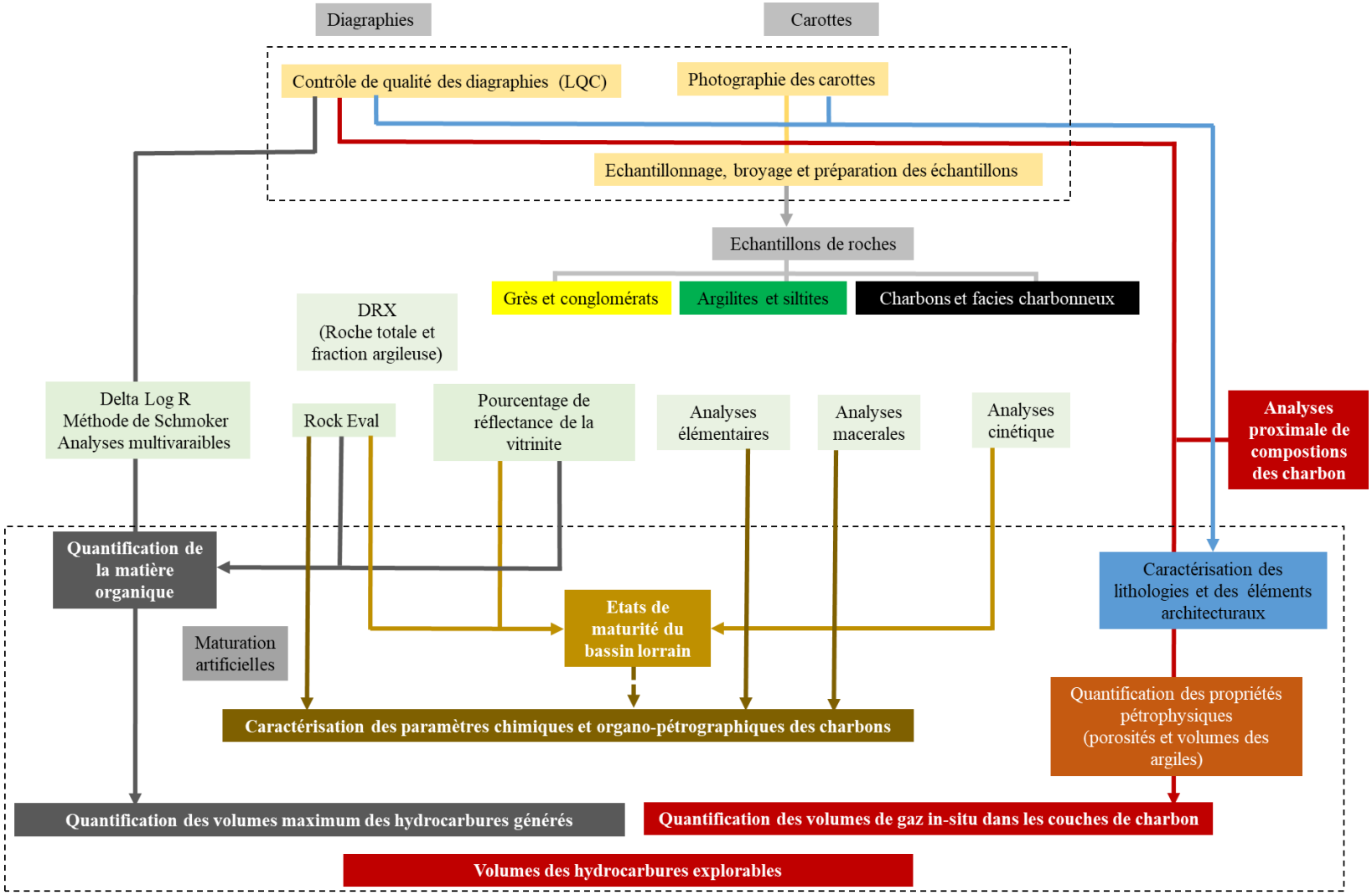


Figure II.3.4: Estimation du potentiel pétrolier du bassin houiller lorrain : mise en œuvre méthodologique.

II.3.2.1 Les analyses de la matière organique

II.3.2.1.1 Le Rock Eval

La méthode de pyrolyse Rock-Eval est une technique d'analyse thermique permettant d'étudier la composition organique des échantillons en système ouvert (Espitalié et al., 1985). Cette méthode repose sur un chauffage progressif d'environ 60 mg d'échantillon réduit en poudre, selon un programme de température contrôlé, sous une atmosphère inerte de diazote (N_2) pour les versions récentes (Rock-Eval® 6) ou d'hélium pour les versions antérieures (Baudin, 2024). Lors de la première phase, appelée pyrolyse, l'échantillon est chauffé dans un four spécifique, provoquant la dégradation thermique de la matière organique. Les molécules libérées, principalement des hydrocarbures gazeux et liquides, ainsi que d'autres gaz (CO, CO_2, H_2S, SO_2, etc.), sont transportées par le flux de gaz vecteur vers des détecteurs. Parmi ceux-ci, le détecteur à ionisation de flamme (FID) permet de quantifier les hydrocarbures (HC), tandis que des détecteurs spectrophotométriques infrarouges (IR) et ultraviolets (UV) enregistrent en temps réel les concentrations en CO, CO_2 et SO_2 (Baudin, 2024). Après cette étape, l'échantillon résiduel est transféré dans un second four pour subir une oxydation contrôlée sous un flux d'air pur (sans CO_2 ni eau). Cette combustion commence généralement à 300 °C et se termine autour de 850 °C (1 200 °C pour le Rock-Eval® 7S), avec une montée en température de 20 °C/min. Les produits issus de cette combustion, tels que H_2O, CO, CO_2 et SO_2, sont analysés pour quantifier la fraction organique restante (Baudin, 2024). Les analyses Rock-Eval des échantillons de cette étude ont été réalisées au laboratoire de l'Institut des Sciences de la Terre d'Orléans (ISTO) en France (Le Meur et al., 2021).

- Les résultats sont représentés sous format de quatre pics :

S_1 (mgHcs/g roche) : hydrocarbures libres (gaz et huiles de C_1 –C_{35} volatilisée durant le palier de température entre 40°C et 300 °C

S_2 (mgHcs/g roche) : ce pic correspond aux composées hydrocarbonées provenant du craquage du kérogène de 300°C à 650°C. C'est la quantité totale d'huile et de gaz que le kérogène peut produire pendant l'analyse. Le S_2 est appelé aussi le potentiel pétrolier.

S_3 (mgCO_2/g roche) : ce pic correspond aux quantités de CO et CO_2 produits durant l'analyse de kérogène.

S_4 (mgCO_2/g roche) : ce pic correspond au CO_2 et CO produit par oxydation de la matière organique résiduelle pendant 7 minutes à 800°C.

- Quelques indices déterminés à partir des résultats Rock Eval utilisés dans ce travail (Figure II.3.5) :

- COT : Le Carbone Organique Total est calculé en intégrant la quantité d'hydrocarbures libres (pic S_1), les hydrocarbures générés par la pyrolyse du kérogène (pic S_2), ainsi que les pics S_3CO et S_3CO_2 produits par la dégradation du kérogène sous gaz inerte, et enfin les pics S_4CO et S_4CO_2 issus de l'oxydation et de la pyrolyse du carbone résiduel sous air.

- Tmax : Correspond à la température à laquel est mesuré le maximum du pic S_2. Ce paramètre est couramment utilisé pour évaluer le niveau de maturité thermique.

- HI=(S2/COT) * 100 : indice d'hydrogène exprimé en (mgHC/gCOT) est proportionnel à la teneur en hydrogène du kérogène. Cet indice est notamment utilisé pour déterminer la qualité du kérogène et son potentiel pétrolier.

- IO=S3/COT)*100 : indice d'oxygène exprimé en (mgO_2/gCOT) est proportionnel à la tenur en oxygène du kérogène. Il est notamment utilisé avec l'Indice Hydrogène afin d'identifier le type de matière organique pour les échantillons immatures.

-IP : Indice de Production utilisé pour évaluer le niveau de génération des hydrocarbures. Il peut également être employé pour évaluer la présence d'hydrocarbures dans les réservoirs ou détecter d'éventuelles pollutions des échantillons, (IP= S1/ (S1+S2)).

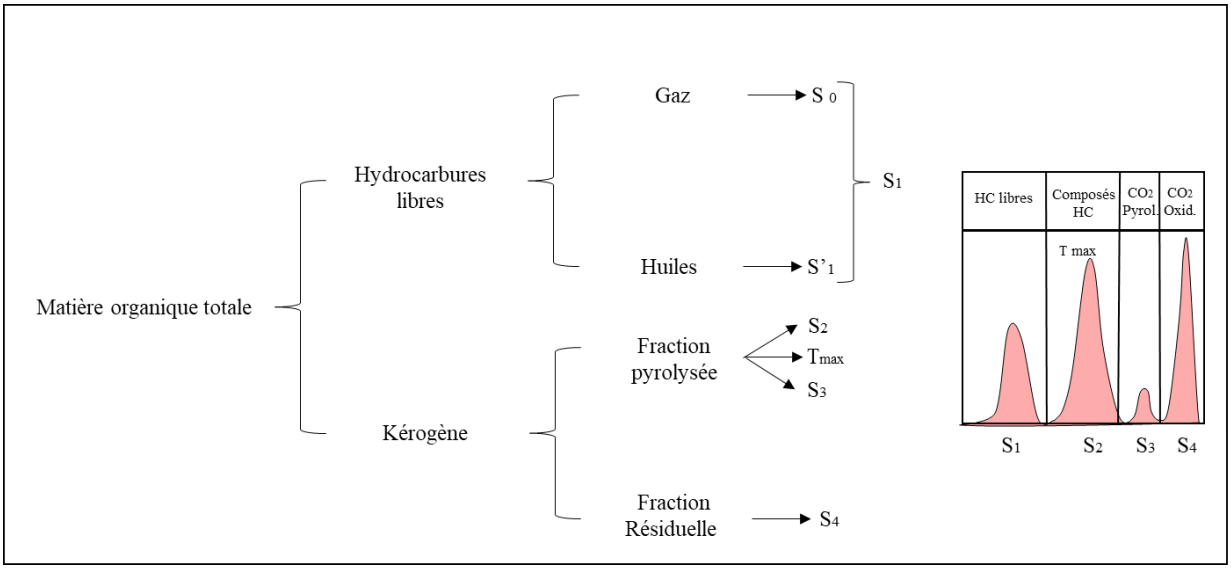


Figure II.3.5: Diagramme présentant les diverses fractions de la matière organique des roches analysées par l'analyse Rock-Eval ainsi que les paramètres mesurés (modifié d'après Lafargue et al. (1998).

II.3.2.1.2 Analyses élémentaires

Une sélection d'échantillons de charbons ont fait l'objet d'une caractérisation par des analyses élémentaires afin de déterminer leur contenu total en carbone (C), hydrogène (H), azote (N), soufre (S) et oxygène (O) au laboratoire de Mesures Physiques à Montpellier, en France. Après le broyage des échantillons à une granulométrie inférieure à 180 µm, ils ont été soumis à deux lignes de mesure indépendantes :

Pour les éléments C, H, N et S : l'échantillon a été préparé dans une capsule en étain, introduit dans un passeur automatique de 120 positions, puis envoyé dans un système SAS d'inertage (zéro blanc) sous un flux d'hélium. Ensuite, la capsule et l'échantillon ont subi une combustion catalytique à une température de 1150°C dans un premier four, suivie de la réduction des gaz de combustion sur du cuivre chauffé à 850°C dans un deuxième four. Les gaz résultant de l'analyse, à savoir N_2, CO_2, H_2O et SO_2, sont demeurés dans un courant de gaz porteur d'hélium. Le mélange gazeux ainsi obtenu a été séparé dans une colonne de désorption à température programmable (TPD, brevet d'Elementar), également connue sous le nom de "colonnes de désorption à température programmable". Le signal a été détecté à l'aide d'un catharomètre TCD (détecteur à conductivité thermique) pour les noyaux C, H et N, et à l'aide d'un détecteur infrarouge pour le soufre.

Pour l'oxygène (O), l'échantillon a été préparé dans une capsule en argent, introduit dans un échantillonneur automatique de 120 positions, puis envoyé dans un système d'analyse séquentiel (SAS) d'inertage (zéro blanc) sous un flux d'hélium. Ensuite, la capsule et l'échantillon ont subi une pyrolyse sous un flux d'hélium à une température de 1150°C, suivie de la conversion des gaz de pyrolyse en CO, de la séparation chromatographique, et enfin du signal détecté par un catharomètre TCD (détecteur à conductivité thermique).

II.3.2.1.3 Pétrographie organique

- **Analyse des macéraux :**

La pétrographie organique, une étude de la fraction organique des roches, utilise principalement la microscopie optique (Combaz., 1980) comme un outil de base. Cette méthode permet l'observation de microstructures et la description morphologique des composants organiques présents dans nos échantillons. Plusieurs entités organiques distinctes, appelées macéraux, sont identifiées. Ces macéraux, qui possèdent des propriétés physiques et chimiques différentes et influent sur les caractéristiques de la matière organique solide. Quelques groupes majeurs de

macéraux sont : i) Les vitrinites, dérivées de tissus ligneux (bois), se présentent sous forme de gels, parfois capables de cimenter d'autres macéraux. ii) Les exinites ou liptinites, issues des spores, des cuticules et des produits de sécrétion des végétaux supérieurs (huiles, résines, tanins, etc.), possèdent des lipides résistants à la biodégradation, une faible réflectance, un fort relief et une fluorescence marquée. iii) Les inertinites, provenant de la dégradation et de l'altération importante des constituants des plantes, se présentent sous forme de débris ligneux oxydés à l'air libre et se caractérisent par leur faible réflectance.

La caractérisation des macéraux et la mesure de réflectance de la vitrinite ont été effectuées sur les échantillons de charbons et des sédiments charbonneux du Westphalien de lorraine par le laboratoire Egs-ploration Organic Petrology (Rueterswil, Suisse) (Figure II.3.6). Ce type d'observations et d'analyses a été conduit sur des sections polies de charbons et de roches.

La méthode utilisée implique l'identification visuelle et le comptage du nombre des macéraux dans un échantillon de charbon. Les résultats de l'analyse des macéraux sont rapportés en pourcentage volumique. L'analyse des macéraux des charbons est réalisée à l'aide de la microscopie optique avec un pointeur-compteur Swift couplé à la platine du microscope. Une méthode hybride combinant les protocoles ASTM D2799-12 et ISO 7404 partie 4 est adoptée pour standardiser la méthode analytique. La platine est déplacée à des intervalles fixes d'environ 1000 points par échantillon, avec l'identification du macéral sous les réticules ou le micromètre enregistrée après chaque avancée. Cette opération est effectuée en lumière blanche incidente à 546 nm, avec des objectifs à immersion dans l'huile (grossissement de 40x) et des oculaires de 12x, dont l'un contient un œilleton réglable avec un micromètre. Des observations supplémentaires en mode fluorescence sont utilisées pour mieux contraindre la teneur en liptinite. Chaque analyse de comptage de points est répétée 2 à 3 fois par échantillon pour assurer la reproductibilité. La composition en pourcentage est calculée à partir des résultats du comptage des points et comparée à une méthode interne utilisant un logiciel d'analyse d'images informatisé. Après avoir déterminé que la reproductibilité est satisfaisante entre les deux méthodes, l'analyse d'images est adoptée comme méthode préférée.

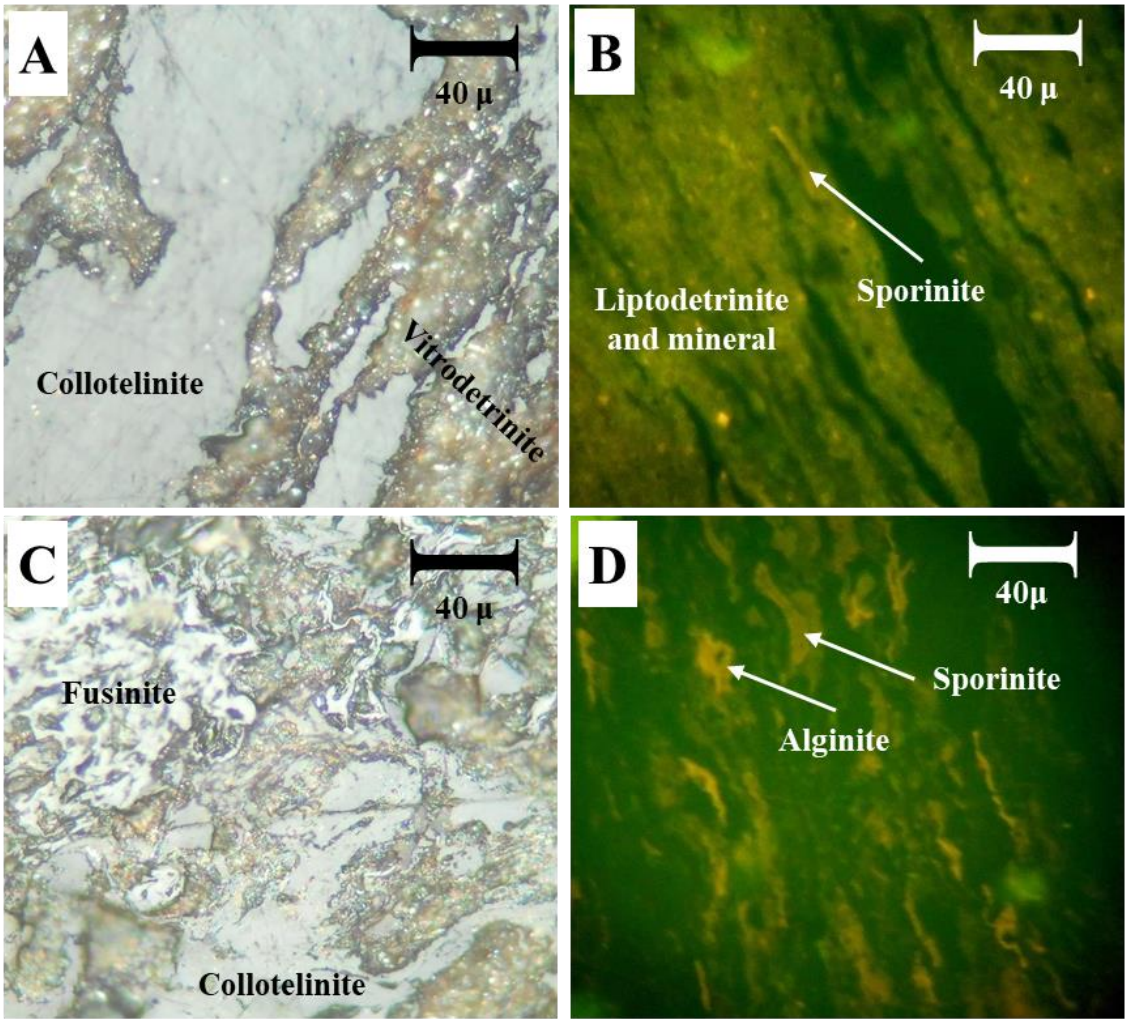


Figure II.3.6: Exemples d'observations de sections polies de roches totales en lumière blanche réfléchie et en lumière bleue, illustrant les groupes de macéraux comprenant la vitrinite, les liptinites et les inertinites (Egs-Ploration). A. Observation en lumière blanche réfléchie d'un échantillon de charbon argileux prélevé à 1528,6 m dans le forage de Gironville, mettant en évidence les macéraux de Collotelinite et de vitrodetrinite du groupe de vitrinite. B. Observation en lumière bleue d'un charbon argileux provenant du même prélèvement à 1528,6 m dans le forage de Gironville, révélant les macéraux sporinites et de Liptodetrinite du groupe des liptinites. C. Observation en lumière blanche réfléchie d'un échantillon de charbon carotté à 1828 m dans le puits de Gironville, agrandie pour montrer un macéral de Fusinite du groupe des inertinites et un macéral de Collotelinite du groupe des vitrinites. D. Observation en lumière bleue d'un charbon argileux provenant du même prélèvement à 1828,6 m dans le forage de Gironville, montrant les macéraux sporinites et d'alginites du groupe des liptinites.

- **Pouvoir Réflecteur de la Vitrinite (PRV, VRo ou %Ro)**

Les analyses de pourcentage de réflectance (%Ro) ont été menées par le laboratoire Egs-ploration organic petrology (Rueterswil, Suisse). En suivant les normes publiées par l'Organisation Internationale de Normalisation (ISO 7404-2, ISO 7404-3 et ISO 7404-5).

Parmi les propriétés distinctives du charbon, l'une des plus manifestes et directement quantifiables réside dans le pourcentage de réflectance de la vitrinite. Cette mesure est fréquemment utilisée pour évaluer la maturité thermique du charbon (Teichmüller et Teichmüller, 1979; Teichmüller et Durand., 1983; Vandenbroucke et al., 1993; Mukhopadhyay et Dow., 1994). La réflectance des composants organiques présente une évolution graduelle. Par conséquent, le pourcentage de réflectance de la vitrinite est employé pour établir des critères de classement. Cette valeur fluctue entre 0,2 % et 10 % en corrélation avec le degré de transformation de la matière organique (Bertrand et al., 1993) : au début de la diagenèse thermique, le pourcentage de réflectance (%Ro) augmente pour atteindre 0,6 % ; à la fin de la catagenèse (fenêtre à huile), le %Ro augmente pour atteindre 1,3 % ; au cours de la métagenèse (fenêtre à gaz), le %Ro augmente pour atteindre 10 % aux stades les plus avancés.

II.3.2.1.4 Analyses cinétiques de genèse d'hydrocarbures

Des analyses cinétiques ont été réalisées sur une sélection d'échantillons au laboratoire GEOS4 (Michendorf, Allemagne). Les trois échantillons ont été broyés avant d'être analysés par pyrolyse en système ouvert non isothermal à quatre taux de chauffage différents (0,7, 2,0, 5,0 et 15 K/min), en utilisant le Rock Eval 6. Les courbes de génération des hydrocarbures obtenues ont été utilisées comme données d'entrée pour le modèle cinétique, qui comprend une distribution d'énergie d'activation et un seul facteur de fréquence. L'objectif de ces analyses était de déterminer les paramètres cinétiques de génération des hydrocarbures. Les résultats de ces expériences seront intégrés dans le modèle @Petromod. Ces nouvelles données cinétiques remplaceront celles du bassin de Ruhr précédemment utilisées par Izart et al. (2016) pour le modèle 1D de Gironville, en adoptant celles spécifiques au charbon lorrain (Annexe 1)

II.3.2.1.5 Maturation artificielle par pyrolyse confinée

La maturation artificielle par pyrolyse confinée vise à reproduire en laboratoire les phases de transformation du kérogène en accord avec les les conditions observées dans le milieu naturel (Monthioux et al., 1985, 1986, 1988; Monthioux et Landais, 1987, 1988, 1989a, 1989b; Benkheda et al., 1992; Landais et al., 1994). Cette technique implique la pyrolyse sous pression hydrostatique contrôlée d'un échantillon enfermé dans une capsule d'or. Le protocole analytique suivi dans le cadre de cette thèse permet la génération d'hydrocarbures à partir d'échantillons immatures de roches-mères sur une large gamme de maturité thermique.

- **Préparation et remplissage des capsules en or**

L'ensemble des expériences de pyrolyse confinée a été réalisé au laboratoire Georessource. Les trois échantillons ont été broyés (<180 µm) avant d'être introduits dans des capsules en or. Un protocole interne Georessources de préparation des capsules en or, comprenant les étapes de soudure avant et après le remplissage, a été suivi :

- À partir de tubes en or découpés aux diamètres de 5 mm et 10 mm, des capsules de 5 cm de longueur sont créées.
- Ces capsules sont chauffées à 700 °C pendant 45 minutes pour les rendre faciles à manipuler, en vue des étapes suivantes de soudure.
- Une fois refroidis, les tubes subissent un sertissage suivi d'une soudure à chaud à l'extrémité, utilisant un poste à souder PUK 4 (Lampert) et une électrode au tungstène.
- Les soudures sont ensuite marquées d'un code d'identification permettant de remonter à l'information sur la lithologie et les températures de pyrolyse.
- La deuxième extrémité des tubes est élargie pour faciliter le remplissage ultérieur. Après rinçage à l'eau distillée et séchage sous étuve pendant environ quinze minutes, les capsules sont pesées à vide.
- Les capsules sont ensuite remplies avec une quantité précise d'échantillon (jusqu'à 500mg dans cette étude)
- Placées sous vide dans une boîte à gants pendant 30 minutes, les capsules éliminent l'air résiduel et/ou l'eau adsorbée.
- Le vide est remplacé par un gaz inerte via une alternance de pompage et de remplissage à l'argon.
- Sous vide dans la boîte à gants, les capsules sont fermées et serties à l'aide d'une pince. La deuxième extrémité des capsules est ensuite soudée sous flux d'azote à froid pour éviter toute dégradation thermique potentielle de l'échantillon.
- Un dernier pesage des capsules est réalisé après cette étape.

- **Pyrolyse des capsules en or**

Après avoir effectué la préparation et le remplissage des capsules en or, l'étape suivante consistait en la pyrolyse des capsules sur la plateforme de haute pression du laboratoire Georessources. Le dispositif expérimental utilisé est décrit dans les travaux de Monthioux et al. (1985), Monthioux (1986, 1988) et Landais et al. (1994), et est représenté schématiquement dans la Figure II.3.7. Les capsules ont été soumises à une pyrolyse confinée à une pression de 300 bars, avec un palier de 24 heures et des températures de 250, 300, 330, 350, 400 et 450 °C.

Les capsules d'or ont été placées dans des autoclaves (AE Closure), puis de l'eau distillée a été ajoutée. Un thermocouple T-K, positionné dans l'enceinte de l'autoclave, au centre et en contact avec les capsules, a permis de surveiller la température tout au long de la pyrolyse. La pression hydrostatique a été contrôlée à l'aide d'une pompe hydraulique et d'un manomètre.

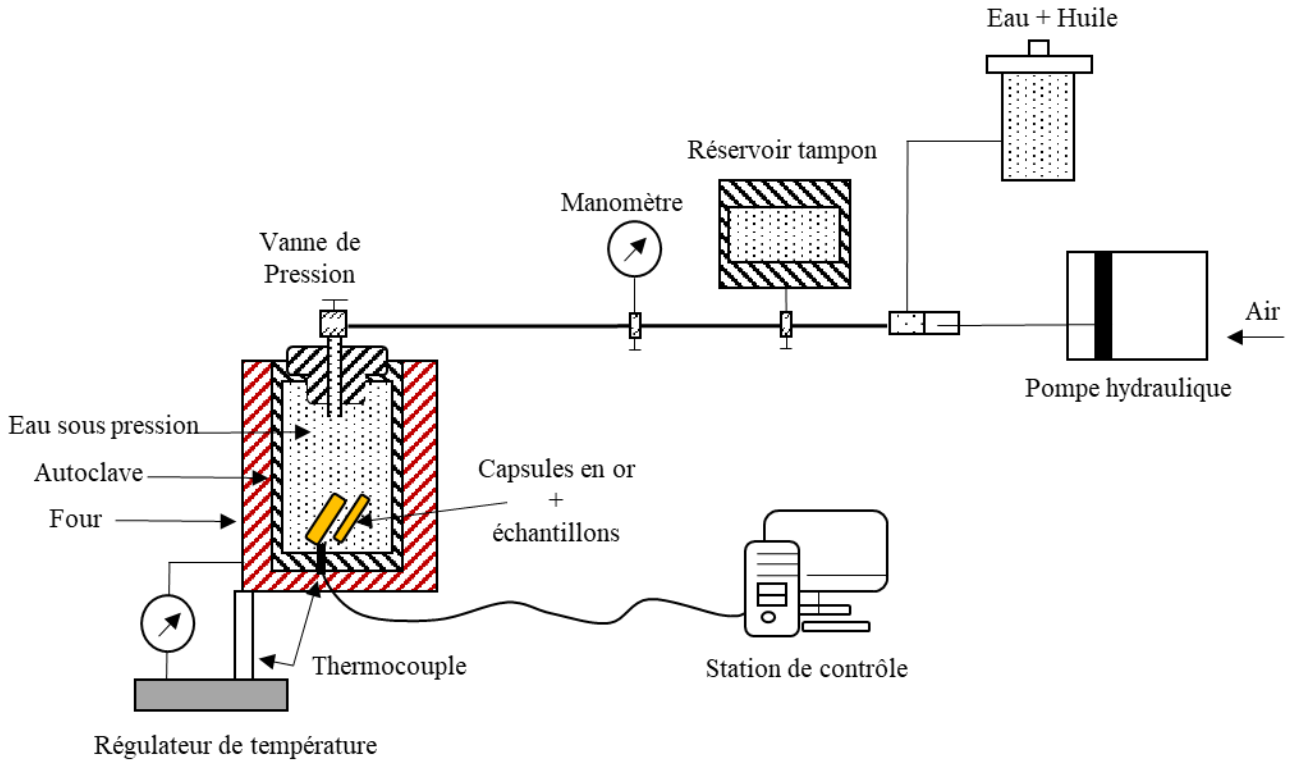


Figure II.3.7: Schéma de la configuration expérimentale de pyrolyse en milieu confiné, modifié d'après Elie (1994).

- **Perçage des capsules en or après pyrolyse**

Après la pyrolyse, les capsules sont extraites des autoclaves, nettoyées à l'éthanol, puis pesées pour confirmer l'absence de fuite ou de perte de gaz pendant la pyrolyse. Ensuite, les capsules intactes sont soumises à l'étape de perçage à l'aide d'un dispositif spécialement conçu, comme schématisé dans la Figure II.3.8. La capsule pyrolysée est introduite dans le percuteur, où la pression de perçage est mesurée, correspondante au volume de gaz généré pendant la pyrolyse. Les gaz produits sont ensuite recueillis dans des capacités où les pressions de gaz sont mesurées et envoyées pour analyse d'isotopie de gaz.

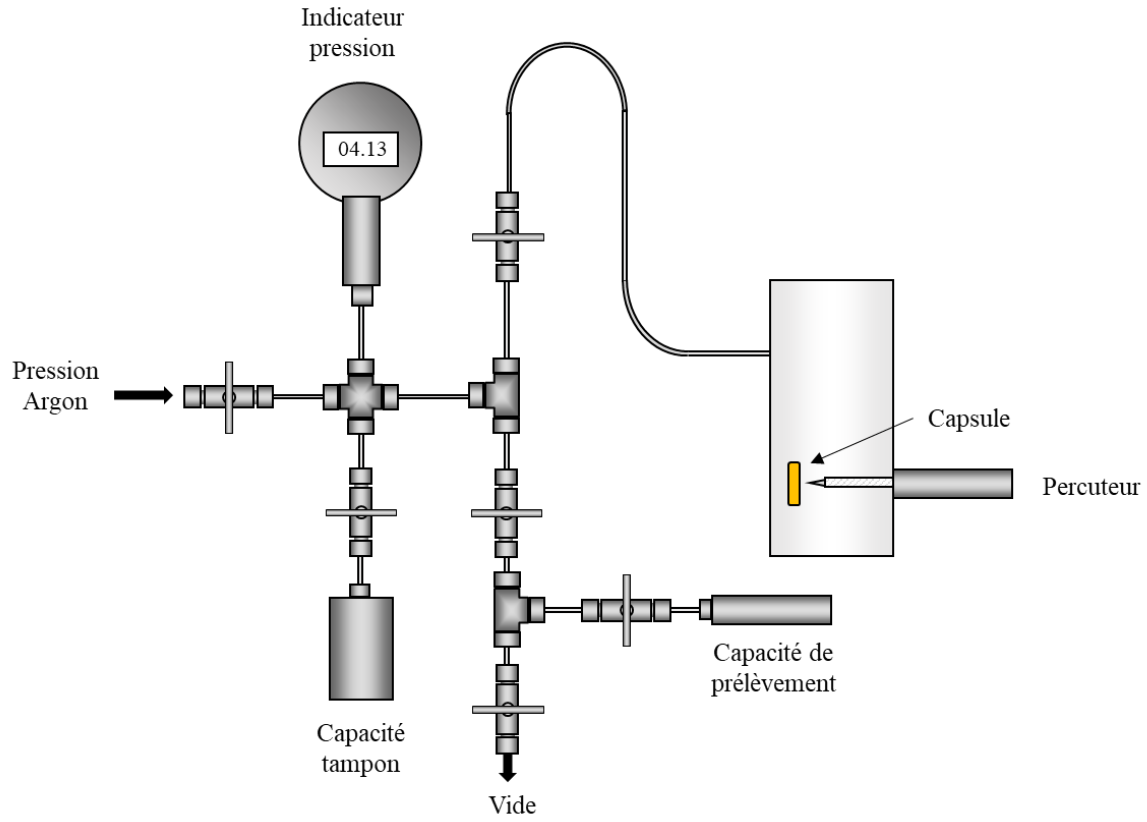


Figure II.3.8: Dispositif de perçage pour la mesure du volume de gaz généré lors de la pyrolyse des capsules après pyrolyse (A. Randi, communication personnelle).

II.3.2.1.6 Analyses des gaz par thermodésoprtion couplée à la chromatographie multidimensionnelle (TDMDGC)

Le protocole de caractérisation des gaz issus de la pyrolyse confinée en capsule d'or est réalisé au sein de la plateforme de géochimie organique du laboratoire GeoRessources à Nancy. Cette méthodologie vise à quantifier les gaz et hydrocarbures générés lors de la maturation artificielle des échantillons. Le dispositif analytique comprend un four de thermodésorption équipé d'un système de perçage des capsules en or sous vide, couplé à une chromatographie en phase gazeuse multidimensionnelle (TD-MDGC) (Figure II.3.9). Cette configuration permet l'analyse simultanée des gaz par un catharomètre (TCD) et des hydrocarbures par détecteur à ionisation de flamme (FID).

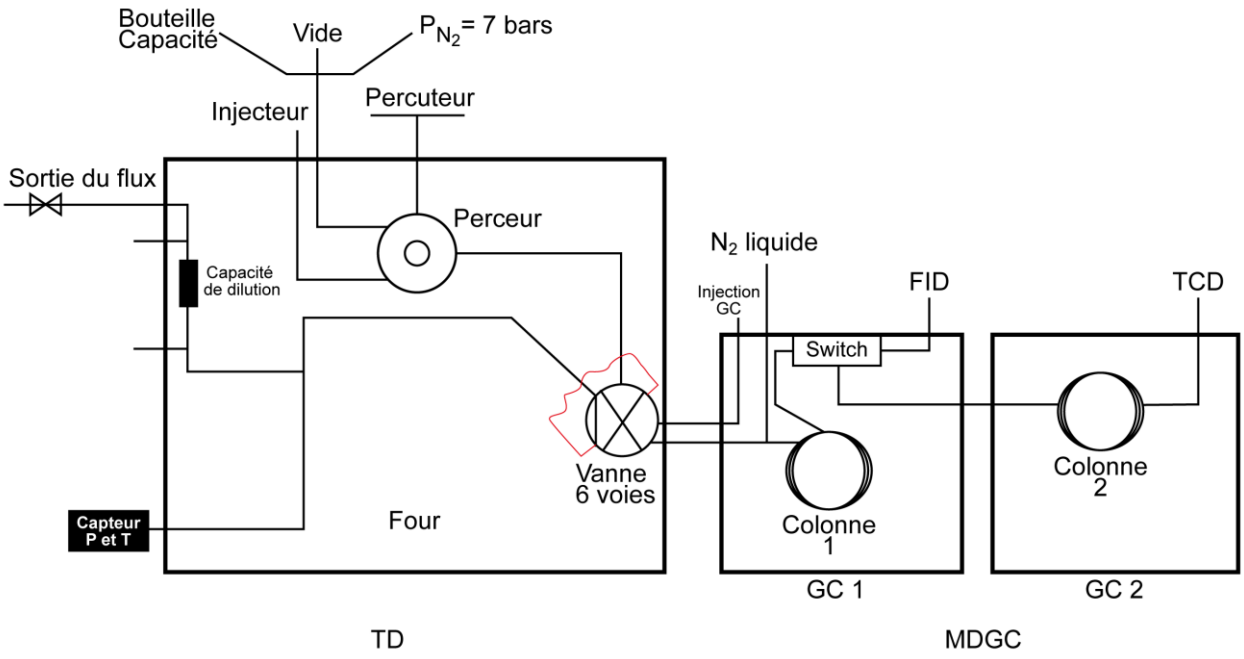


Figure II.3.9: Représentation schématique du système de thermodésorption (TD) couplé à la chromatographie gazeuse multidimensionnelle (MDGC) pour l'analyse des produits de pyrolyse d'après Tchang-Tchong (2023).

Pour l'analyse, le four de thermodésorption, d'un volume total de 28.98 cm^3, est chauffé à 250°C. Une électrovanne permet d'injecter 100µL de gaz dans le GC1 équipé d'une colonne DB5MS (60m x 0.25µm ID, 0.25µm ef). La cryogénisation en tête de colonne permet la séparation des hydrocarbures de C1 à C5 sur cette première colonne et leur détection sur le détecteur FID. Durant les 5 premières minutes d'analyses le flux de gaz vecteur en sortie de la colonne 1 est divisé, grâce au switch, et une partie est envoyée dans le GC2 équipé d'une colonne Poraplot-Q (25m, 0.32mm ID, 10µm) permettant l'analyse du CO_2, non retenu sur la colonne 1, sur le détecteur TCD.

La quantification des composés est réalisée grâce à des étalonnages spécifiques et l'application de la loi des gaz parfaits permettant un dosage des produits de pyrolyse en moles et en mg. Cette approche analytique est détaillée dans les travaux de Tchang-Tchong (2023).

Les étalonnages sont réalisés à l'aide de gaz étalons, seul ou en mélange, injectés à différentes pressions. Pour la calibration des composés C6+, une huile (Iran) préalablement calibrée par analyse élémentaire et GC/FID est utilisée. Un contrôle qualité (mélange des hydrocarbures gazeux) est injecté quotidiennement afin d'assurer la fiabilité des quantifications. Un échantillon de référence (charbon de la Mahakam) est pyrolysé et injecté régulièrement afin de suivre l'ensemble du protocole analytique.

II.3.2.2 Les analyses minéralogiques par diffraction des rayons X

La diffraction aux rayons X, également connue sous le nom de cristallographie aux rayons X, offre la possibilité d'identifier la composition minérale de l'échantillon analysé et d'évaluer l'état de cristallinité des minéraux, en particulier des minéraux argileux. Un exemple des résultats de cette analyse sont présentés sous forme de spectres de diffraction (Figure II.3.10).

Un faisceau de rayons X est dirigé vers la surface de l'échantillon, qu'il soit sous forme de poudre ou de lame mince, provoquant des perturbations dans le nuage électronique des atomes. Cette perturbation entraîne la réémission d'un rayonnement de même fréquence. Les rayons X ont une longueur d'onde de quelques angströms (distance interatomique), ce qui provoque des interférences au sein des ondes réémises. Ces interférences peuvent être constructives ou destructives, générant respectivement un flux important ou très faible de photons X. Les directions dans lesquelles ces interactions sont constructives sont déterminées par la loi de Bragg (1915) ($2d \sin \theta = n \lambda$), avec d représentant la distance entre deux plans cristallographiques, μ la moitié de l'angle entre le faisceau incident et la direction du détecteur, n l'ordre de réflexion, et θ la longueur d'onde des rayons X.

II.3.2.2.1 Analyse de roche totale

Cette méthode implique le broyage des échantillons en particules de moins de 2 μm. La poudre résultante, sans orientation particulière, est déposée sur un support. Un diffractomètre parcourt la surface de la lame à différents angles θ pour générer un spectre en 2θ des angles de diffraction. Chaque pic de diffraction est associé à une distance d correspondant à une famille de plans cristallins. L'identification des pics est réalisée en comparant les résultats avec une base de données. Les intensités des pics sont utilisées pour estimer de manière semi-quantitative les proportions minéralogiques.

II.3.2.2.2 Analyse de la fraction argileuse

Le principe de la séparation des minéraux argileux, dans le contexte minéralogique, repose sur une procédure dérivée du protocole présenté par Thiry et al. (2013) et axée sur la séparation granulométrique. Le processus peut être synthétisé comme suit : (i) une première étape consiste en un concassage initial, principalement pour les roches dures, suivi de la séparation des minéraux dans une cuve à ultrasons, (ii) des phases successives de centrifugation et de lavage sont entreprises jusqu'à l'obtention d'une suspension stable dans un flacon. Cette suspension

doit maintenir les particules fines en suspension sans une sédimentation immédiate au fond de la bouteille. Ce processus permet de prélever les 2 cm supérieurs de la suspension après 1h40 de décantation, éliminant ainsi la majeure partie des minéraux non argileux, (iii) après une nouvelle centrifugation de la suspension, une pâte principalement composée d'argiles est obtenue. Cette pâte est ensuite étalée sur des lames rainurées pour orienter les feuillets argileux, renforçant ainsi les réflexions selon les distances réticulaires (001) nécessaires à la reconnaissance des argiles, (iiii) la préparation est soumise au diffractomètre pour mesurer les distances réticulaires entre 30 et 2,3 Å dans trois conditions différentes: après séchage sans traitement (vert), après 24h dans saturée en glycol (bleu) et après chauffage à 490°C (rouge) (Figure II.3.10)

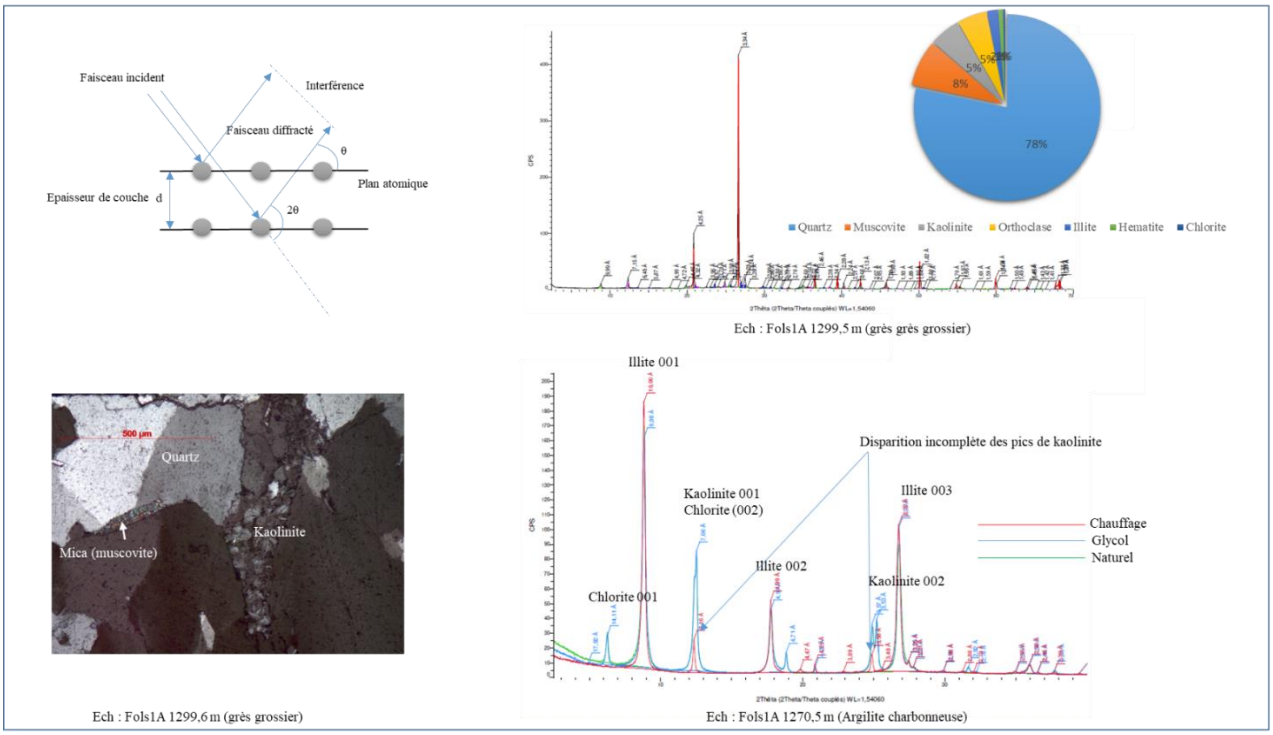


Figure II.3.10: Exemple de caractérisation des échantillons de forage Fols 1A par diffraction aux rayons X: A) Représentation géométrique de la loi de Bragg (1915) illustrant les phénomènes d'interférences constructives responsables des pics observés sur le spectre. B) Observation en lame mince d'un grès grossier à la profondeur 1299,6 m.C) Exemple de spectre de diffraction aux rayons X sur roche totale avec les résultats de semi-quantification sur le grès grossier à la profondeur 1299,6 m. D) Exemple de diagramme de diffraction aux rayons X sur lame orientée, présentant en vert un état naturel, en bleu après traitement au glycol, et en rouge après chauffage à 490°C de la fraction argileuse de l'échantillon d'argile à la profondeur 1270,5 m.

Troisième partie

Résultats

III.1 Caractérisation des environnements de dépôt et estimation des volumes de gaz in situ du Carbonifère supérieur du bassin lorrain

Sommaire

III.1 Caractérisation des environnements de dépôt et estimation des volumes de gaz *in situ* du carbonifère supérieur du bassin lorrain ---------- 119

III.1.1 Introduction 120

III.1.2 Geological context 121

III.1.3 Methods and Materials 124

III.1.4 Theory 126

III.1.4.1 Depositional environment based on well logs analysis 126

III.1.4.2 Petrophysical Evaluation of a Coal Bed Methane Reservoir using well log data 127

III.1.4.2.1 Shale volumes 127

III.1.4.2.2 Total and effective porosities 128

III.1.4.2.3 Proximate analysis and determination of gas content of coal from well logs data 129

III.1.5 Results 130

III.1.5.1 Sedimentary log analysis 130

III.1.5.1.1 Main architectural elements and related facies 132

III.1.5.1.2 Lithological Identification through well-log derived histograms. 137

III.1.5.1.3 Depositional Palaeoenvironments characterisation through cross plots 139

III.1.5.2 Petrophysical Evaluation using well log data 140

III.1.5.3 Proximate analysis and determination of gas content of Coal from Well logs Data 142

III.1.5.3.1 Proximate analysis 142

III.1.5.3.2 Gas Content Analysis 144

III.1.6 Discussion 148

III.1.7 Conclusion 150

III. Résultats

III.1 Caractérisation des environnements de dépôt et estimation des volumes de gaz *in situ* du carbonifère supérieur du bassin lorrain

Ce premier chapitre des résultats est rédigé sous la forme d'un article scientifique, en anglais, en vue de sa soumission à une revue scientifique.

Résumé en français

Les environnements fluviatiles des formations du Carbonifère supérieur du bassin lorrain (NE de la France) renferment d'importantes réserves de charbon, offrant une opportunité prometteuse pour l'extraction de gaz de charbon. Cette étude présente une approche utilisant des diagraphies pour évaluer le potentiel en gaz de charbon (Coal Bed Methane, CBM) en identifiant les environnements de dépôt, en estimant les volumes de gaz in situ des couches de charbon et en évaluant les porosités des réservoirs potentiels dans les grès. Les données diagraphiques des forages Folschviller 1A, Diebling S1 et Johannswiller ont été utilisées pour identifier diverses lithologies caractéristiques des environnements de dépôt fluviatiles, incluant les chenaux, les lobes de crevasse, les plaines d'inondation et les marécages. À partir des données diagraphiques, la porosité a été calculée pour les réservoirs gréseux, variant de 9,6 % dans le Westphalien D à 5 % dans le Westphalien C. Dans les couches de charbon, considérées comme des “self-source and self-reservoir CBM”, la porosité totale moyenne est d'environ 4,1 % dans le Westphalien D, comprenant principalement 3 % de porosité de fracture, utile pour l'écoulement des fluides et la dépressurisation au sein des formations charbonneuses, permettant la récupération du gaz. De plus, cette étude établit des relations empiriques entre les composants du charbon obtenus par analyse immédiate (proximate analysis) et les diagraphies de densité pour calculer la teneur en cendres, les matières volatiles, l'humidité et le carbone fixe. Les volumes de gaz adsorbés dans les couches de charbon ont été estimés à l'aide de relations empiriques établies, donnant des valeurs moyennes comprises entre 7 et 11 m^3/tonne de charbon dans les formations du Carbonifère supérieur.

Characterization of Upper Carboniferous Fluvial Environment Deposits in the Lorraine Basin and Estimation of their Gas-Bearing through Well Log Data and Core Analysis

Salim Allouti[1], Fabrice Malartre[1], Metzger Mombo Mouketo[1], Alain Izart[1], Yves Géraud[1], Romain Hemelsdaël[1], Fady Nassif[2], Raymond Michels[1].

1 CNRS, GeoRessources Lab, Université de Lorraine, BP 70239, F-54506 Vandoeuvre-lès-Nancy, France
2 La Française de l'Energie, Avenue du District, 57380 Pontpierre

Abstract

The Late Carboniferous fluvial deposits of Lorraine (NE France) contains substantial coal reserves, offering a promising opportunity for coal bed methane extraction. This study introduces an approach using well logs to assess coal bed methane (CBM) by identifying depositional environments, estimating gas volumes in coal, and evaluating porosity in potential reservoir sandstones and in coal layers. The well log data from Folschviller 1A, Diebling S1, and Johannswiller were used to identify various lithologies characteristic of the fluvial depositional environments including braided channels, crevasse splay, floodplain and swamps. Using the well log data, calculated sandstones porosity values range from 9.6% in the Westphalian D to 5% in the Westphalian C. In the coal layers, considered as self-sourced reservoir, the total porosity averaged approximately 4.1% in the Westphalian D, primarily comprising 3% fracture porosity, useful for fluid flow and depressurization within the coal formations, enabling CBM recovery. Additionally, this paper establishes empirical relationships between Proximate Analysis components and density logs to calculate ash content, volatile matter, moisture, and fixed carbon. Gas volumes adsorbed in the coal layers were estimated using established empirical relationships, yielding values ranging from 7 to 11 m^3/ton of coal in Upper Carboniferous formations. These estimates were derived from correlations between proximate analysis components, well log data, and laboratory measurements.

Keywords: Carboniferous, Lorraine Basin, Coal, Coal bed Methane Reservoir, Porosity, Gas Content, Organic Matter.

III.1.1 Introduction

In the context of global energy transition, there is a growing emphasis on reducing greenhouse gas emissions. European Union member states are actively seeking alternatives to energy

production from coal mines. As natural gas emerges as a transitional resource, coal bed methane provides a viable substitute for imported gas. The Lorraine Carboniferous Basin in France contains substantial coal reserves, presenting a promising opportunity for coal bed methane (CBM) extraction (Izart et al., 2016; Gunzburger, 2019). Indeed, CBM an unconventional gas resource generated during coalification, primarily adsorbed onto coal, is an alternative fossil fuel to conventional natural gas. Global attention has increasingly turned towards exploring and developing CBM reservoirs in recent years (Flores, 1998,2013; Reddy, 2010; Paul et Chatterjee, 2011; Moore, 2012; Baouche and Wood, 2020).

Using geophysical logging for the evaluation of CBM reservoirs, the primary focus lies in identifying coal seams and estimating coal seams reservoir parameters which include kerogen proximate analysis, gas content, porosity, and permeability. Various geophysical logging methods are available in literature for identifying and evaluating CBM reservoirs (Kim, 1977; Chatterjee et Paul, 2013; Seidle, 2011; Ma et al., 2011; Thararoop et al., 2012).

Coal is constituted of fixed carbon, ash, moisture, volatile matter and gas, each contributing to distinct well log properties (Flores, 1998, 2013; Reddy, 2010). Extensive research has been conducted to predict and estimate these parameters, often relying on the application of volume models and regression analysis techniques (Bond et al., 1969; Jie et al., 2014; Baouche and Wood, 2020). The complexity of natural gas storage and flow within coal seams arises from their low porosity and permeability. Three distinct fluid flow sequences, driven by water-gas interactions, are observed: desorption of gas from the coal matrix, flow through the matrix porosity network, and transport through open fractures (cleats system) predominantly filled with water (Levine, 1993; Jie et al., 2014; Liu et al., 2015).

III.1.2 Geological context

The late Variscan intramontane Lorraine Carboniferous Basin, spanning approximately 150 km by 75 km (Izart et al., 2016; Hemelsdaël et al., 2023) (Figure III.1.1) is the western continuity of the Saar-Nahe basin (located in Germany). This Carboniferous depocenter is bounded by the Metz-Hunsrück Fault to the north, a major SW-NE trending Variscan thrust (Henk, 1993; Schäfer, 2005, 2011) and delineated by geophysical anomalies to the south and west (Donsimoni, 1981). The basin fill comprises up to 8 km of Westphalian-Stephanian fluvio-lacustrine sediments, overlain by ~500 m of Permian and Mesozoic strata (Pruvost, 1934;

Barrabé and Feys, 1965). This sequence, deposited over ~19 Ma (319-300 Ma), correlates with the Moscovian to Kasimovian stages (Gradstein et al., 2020).

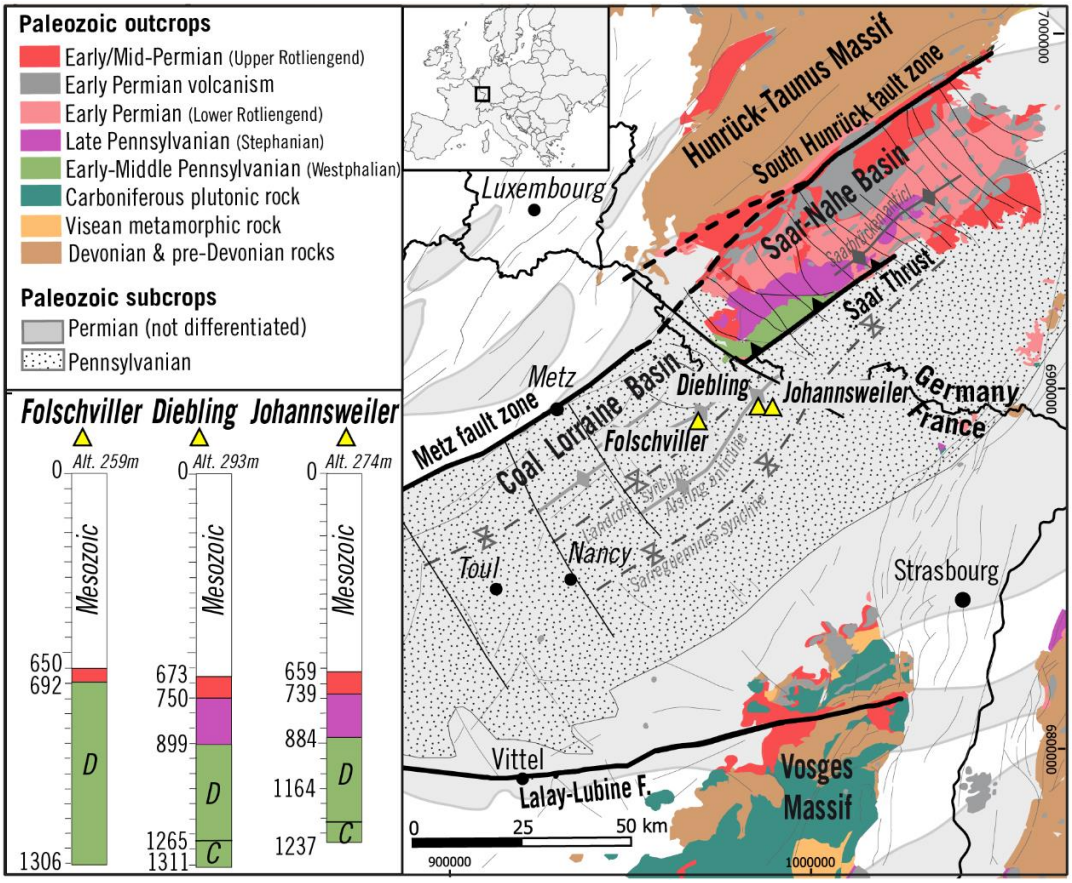


Figure III.1.1: Simplified geological map of the Saar-Lorraine Basin showing the location of Folschviller (Fols A), Diebling (Dbl s1) and Johannsweiler (Jhs-1) boreholes. The Carboniferous deposits are accessed by both boreholes at depths of 700 and 600 meters, respectively. Permian and Carboniferous outcrop in Germany. Modified after Pruvost (1934), Donsimoni (1981), Schäfer (2011), Izart et al. (2016) et Hemelsdaël et al. (2023).

On a lithostratigraphic point of view, towards the top of the Westphalian, a combination of climate change linked with the onset of a major interglacial and disruptive changes to basin structures due to the Variscan orogeny have made correlations difficult, and this has hindered the development of consistent regional chronostratigraphic scales in Europe. In France, each coal productive area (Nord-Pas de Calais, Lorraine, Saint Etienne) has its own local stratigraphic subdivisions. A specific characteristic is that Lorraine (and Saar-Nahe) basin is the only area in Western Europe where Stephanian strata overlie Westphalian strata (Knight et al., 2023). The base of Stephanian is represented by the Holz conglomerate (Jongmans and Pruvost, 1950), an interval with an unconformable contact that is widespread across the Lorraine-Saar-Nahe basin. Numerous continental basins formed in the interior of the Variscan Orogen without any marine influence. Their evolution was related to the dextral movement of

Gondwana relative to Laurussia along large-scale shear zones combined with the gravitational collapse of a thickened and unstable orogenic crust (Arthaud and Matte, 1977; Ziegler, 1990; Neubauer and Handler, 2000; Martínez Catalán 2011; Elter et al. 2020). These processes controlled the formation of more than 70 continental basins (Henk, 1993) among which the Lorraine Basin. These are typically graben or halfgraben filled with sediments, later folded, that rest on much older basement with angular unconformity. In Lorraine Carboniferous basin, the succession is subdivided into: 1) a ~4 km thick Westphalian series containing ~100 coal seams (centimeters to 25 m thick), and 2) a ~1.1 km thick Stephanian series with four major coal horizons (Pruvost, 1934; Alpern et al., 1969; Laveine, 1974). These coal-bearing units are intercalated within a heterogeneous siliciclastic succession, representing a continuum of terrestrial depositional settings ranging from proximal alluvial fans to distal anastomosing fluvial systems, associated with extensive floodplain and swamp environments (Fleck et al., 2001; Izart et al., 2005) (Figure III.1.2).

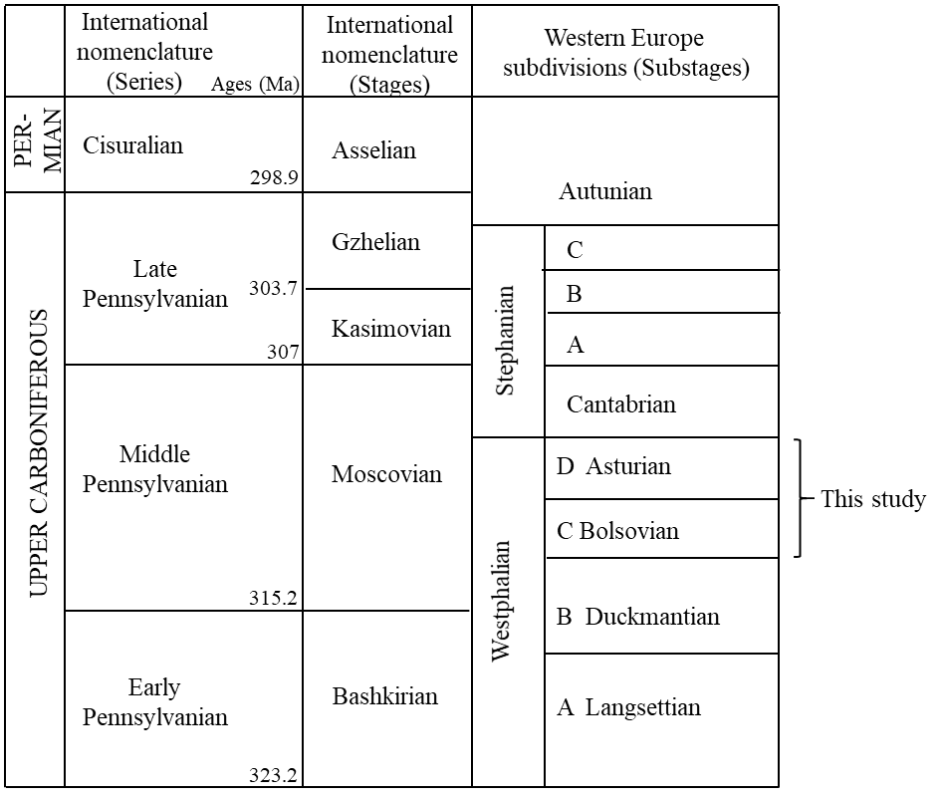


Figure III.1.2: tratigraphic chart of the Upper Carboniferous with international subdvisions and regional (Western Europe) nomenclature (adapted from Gradstein et al. (2020). Ages (in Ma): from International Chronostratigraphic Chart (2023/04 version), www.stratigraphy.org

III.1.3 Methods and Materials

This study focuses on three boreholes, Folschviller (Fols 1A), Diebling (Dbl S1), and Johannswiller (Jhs-1), which were drilled by "La Française de l' Energie". These boreholes specifically targetted the upper Carboniferous deposits, as illustrated in Figure III.1.1 and Figure III.1.3. Fols 1A borehole reached the Westphalian D interval from 690 to 1303 meters. Dbl S1 borehole penetrated both the Westphalian D interval (875-1265 meters) and the Westphalian C interval (1265-1440 meters) while Jhs-1 well drilled through Stephanian (740-884 meters), Westphalian D (884-1155 meters), and Westphalian C (1155-1237 meters) intervals. Core data is available for both Fols 1A and Dbl S1, enabling the characterization of depositional environments in these wells. The developed characterization methodology using well-logs was validated using their respective core data. Subsequently, the same methodology was applied to other wells, including Jhs-1 where core data was not available. Well logs were utilized for CBM reservoir characterization based on the following flowchart:

1. Histogram analysis of well logs conducted to identify dominant lithologies and their characteristics.
2. Crossplot analysis of different well logs was employed to interpret sedimentological architectural elements.
3. Estimation of absorbed gas volumes in coal-bearing reservoirs involved:
    - Calculating shale volumes across different facies, including sandstones, conglomerates, clay-rich intervals, and coal.
    - Determining Effective porosity of non-coal facies by utilizing total porosity from density logs and accounting for clay effects using the previously determined shale volume.
    - Estimation of effective porosity within the coal layers was calculated to explain fluid and gas flow within the coal beds.
    - Formolution of an empirical equation for proximate analysis to predict variables as moisture, ash, volatile matter content and fixed carbon.
    - Determination of the quantity of gas adsorbed on coal using internationally recognized standards and equations developed in CBM Reservoir Engineering.

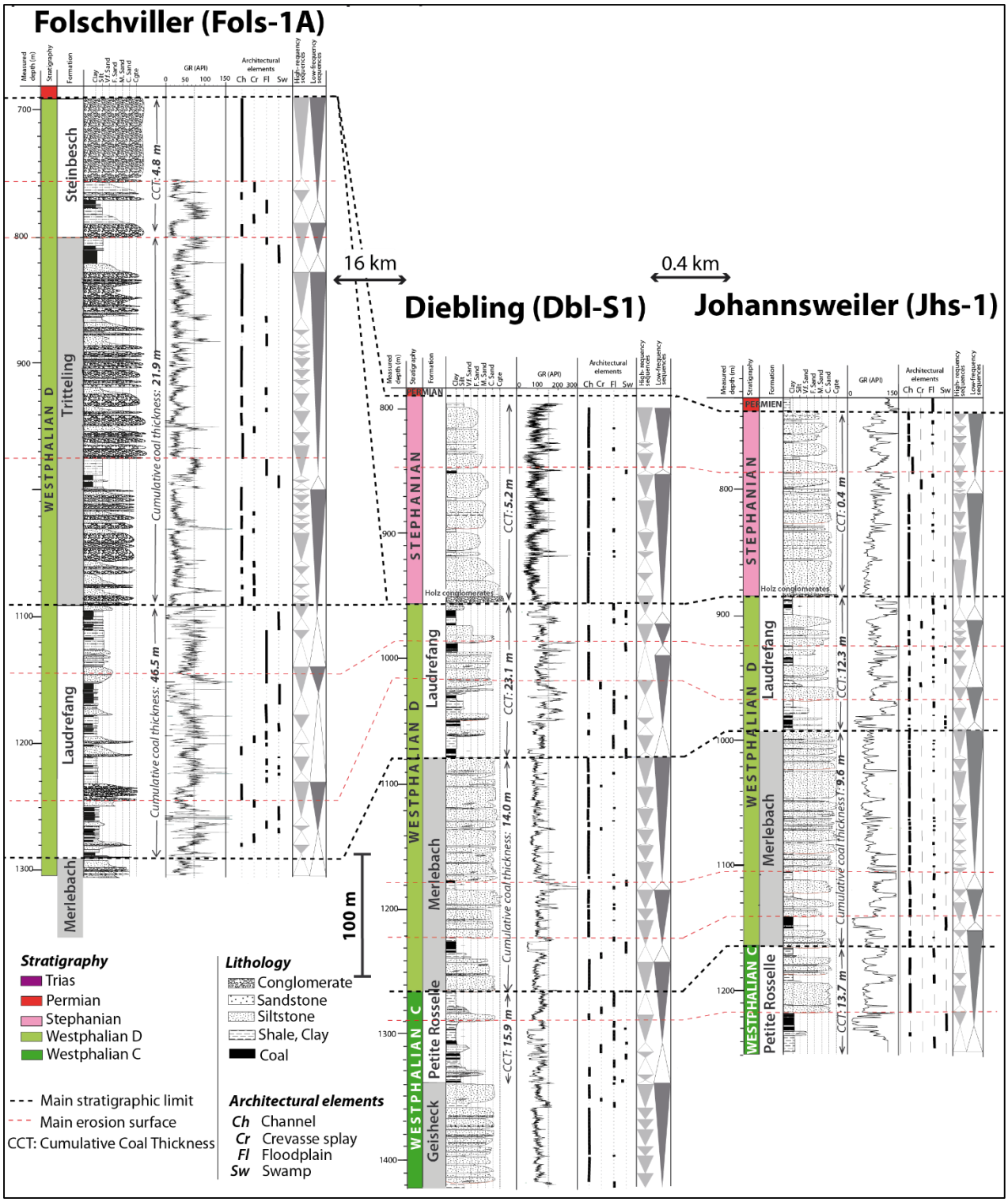


Figure III.1.3: Lithostratigraphic log correlations of the Folschviller well in the Merlebach Anticline, and the Diebling and Johannsweiler wells in the Alsting Anticline. Lithological logs are derived from core analyses with correlations based on gamma-ray signals and various well log data.

III.1.4 Theory

III.1.4.1 Depositional environment based on well logs analysis

Gamma ray and density well logs from Fols 1A and Dbl S1 wells were used in combination with sedimentological analysis of cores to characterize the architectural elements of the fluvial system. This methodology is intended to then be applied to other wells like Jhs-1 for which core data is not available.

The concept of electrofacies refers to a collection of log responses that uniquely characterizes a specific sedimentary bed and enables its differentiation from others (Serra, 1984). Initially, the spontaneous potential curve (SP) was used for sedimentological interpretation. However, in this study, gamma-ray response was employed as an alternative to the SP curve. The gamma-ray log records the natural radioactivity of a formation, originating from uranium, thorium, and potassium (Russell, 1941). The gamma-ray curve exhibits distinct variations in relationship to grain size, providing insights into the proportions of gravel, sand, silt and shale (Serra, 1984; Hollub and Schafer, 1992; Karacan, 2009; Seidle, 2011). Through the analysis of the gamma-ray curve, it is possible to interpret different sedimentological features such as the nature of layer contacts (abrupt or progressive) and specific shapes (e.g., cylindrical, funnel, bell, symmetrical, serrated) (Emery and Myers, 1996). Their vertical succession allows dynamic interpretation of depositional regimes through space and time including aggradation, progradation, and retrogradation patterns. In this study, the aim is to apply observations previously identified in similar investigations to a fluvial system encountered in the boreholes of the Lorraine Basin. The architectural elements within this system demonstrate significant variability, encompassing high-energy channels that indicate strong hydrodynamics, as well as distal areas characterized by swamps, including crevasse splay and floodplain deposits.

The gamma ray method is based on measuring the intensities of naturally occurring gamma rays in the surrounding environment. In coal deposits, gamma ray readings tend to be relatively low. However, in clay-rich formations, the gamma ray values are typically high. Conversely, in formations such as sandstones, conglomerates, and limestones, gamma ray values exhibit a gradual decrease (Keskinsezer et al., 2019). The gamma ray method has been used as an identifier for source rocks, such as organic-rich shales that exhibit significant uranium concentrations. (Schmoker et al., 1981) applied this method to identify and quantify organic matter contents in these organic-rich intervals due to the high uranium content, particularly in marine shales. Uranium is adsorbed by organic matter under reducing conditions facilitated by

bacteria, resulting in high gamma ray values in organic-rich shales (Rider and Kennedey, 2011). In continental depositional environments, uranium is not adsorbed in swampy areas lacking clay, hence pure coals exhibit low gamma ray values. However, salinity can act as a catalyst for surrounding clays in these coals, increasing the gamma ray values. It should also be noted that ultimately, low gamma ray values are recorded for only pure coals, whereas the gamma ray values vary depending on the volume of clays in porous coals and clay-rich coals (Christoffel and Kayal, 1989).

Density logging is an effective method for determining the lithological units. Within the range of geological units, coal exhibits the lowest density values, followed by claystone, sandstone, conglomerate, and limestone (Mavor et al., 1994; Zhou and Esterle, 2008; Keskinsezer et al., 2019). Low and high rank coals display densities ranging from 1.1 to 1.8 $g.cm^{-3}$, which are comparatively lower than the densities of the surrounding sediments (1.6 –2.9 $g.cm^{-3}$). Sedimentary rocks, characterized by their diverse composition, exhibit a wide range of density attributed to variations in porosity, nature of pore fluids, depth of burial, and mineralogical composition. Furthermore, density tends to increase with the degree of metamorphism, as recrystallization processes decrease pore space and lead to the formation of denser mineral forms (Thomas, 2002).

III.1.4.2 Petrophysical Evaluation of a Coal Bed Methane Reservoir using well log data

The petrophysical parameters of the Lorraine Basin, intersected by Fols 1A Dbl S1 and Jhs-1 wells, were assessed using well logs. This approach provided a comprehensive understanding of the petrophysical characteristics of sandstones and conglomerates as conventional reservoirs, coal seams as source-rocks and unconventional reservoirs and clay deposits as well.

III.1.4.2.1 Shale volumes

Shale Volume (VSH) represents the volumetric percentage of clay content within the reservoir rock. The clay content of formations is calculated using the responses from the Gamma Ray curve expressed as API units or from the response of the Spontaneous Potential (SP). The computation method employed in this study (using Techlog software) is based on equation (III.1.1) (Bassiouni et al., 1994).

$$VSH = \frac{GR - GRmin}{GRMax - GRmin} * 100 \quad \text{(III.1.1)}$$

GR : Gamma - Ray readings obtained from the log.

GRmin : Gamma - Ray readings obtained from the log in Coal or sandstone beds.

GR max : Gamma - Ray readings obtained from the log in clay rich intervals.

III.1.4.2.2Total and effective porosities

Porosity is defined as the ratio of the void volume to the total volume of the rock sample and is expressed as a percentage. Porosity is influenced by the size, shape, distribution, and arrangement of grains, as well as cementation and compaction. Generally, two definitions of porosity are commonly used: i) Total porosity (Φt) (equation (III.1.2)) which represents the sum of primary porosity (intergranular, intercrystalline) and secondary porosity (dissolution and fractures) and ii) Effective porosity (Φe) which excludes non-connected pores and water bound to clay minerals using (Serra, 1984) .

For sandstone reservoirs, correcting porosities from non-connected pores and water bound to clay minerals can yield an initial estimate of the effective porosity. However, this correction proves inadequate for estimating the effective porosity responsible for fluid flow in coal layers. In this study, "Corrected Total Density Porosity" (ΦTDC) is calculated using equation (III.1.3), which represents the effective porosity for sandstones and conglomerates, but not for coal beds, where fracture porosity is considered effective.

$$\Phi t = \frac{\rho b - \rho ma}{\rho f - \rho ma} * 100 \quad \text{(III.1.2)}$$

$$\Phi TDC = \Phi t - Vsh\ \Phi sh \quad \text{(III.1.3)}$$

ρb : Bulk density.

ρma : Apparent clean formation (sandstones or coal layers) obtained from crossplot well logs or from laboratory measurements.

ρf *:* formation fluid density.

Φsh : Total density porosity in clay intervals.

In coal formations, the total porosity is the sum of matrix porosity and fracture porosity (Fu et al., 2009). Coal is divided into many matrix blocks by fracture networks known as cleats which form flow channels for CBM (Dawson and Esterle, 2010). Previous studies by Jie et al. (2014) and Baouche and Wood (2020) have shown that fracture porosity in coal formations tends to be higher than matrix porosity, indicating that the predominant porosity facilitating fluid and gas flow is associated with the fractures within the coal beds.

Fractures in CBM reservoirs serve as fluid migration pathways and influence reservoir pressure. Fracture porosity is estimated using dual lateral log iteration and numerical simulation, assuming higher porosity than the matrix. According to Chatterjee et Paul (2013), the coal fractures in the original strata are presumed to be water-filled, while the slurry invades these fractures, displacing the formation water in the flushed zone, the fracture porosity (φf) can be calculated using equation (III.1.4).

$$\Phi f = 100 * \left(\frac{Rm}{Rs}\right)^{\frac{1}{m}} \quad \text{(III.1.4)}$$

Rm: mud resistivity.

RS: shallow resistivity.

m: cementation index (typically <1.60 in coal seams (Yang et al., 2006).

III.1.4.2.3Proximate analysis and determination of gas content of coal from well logs data

This analysis model consists of four components: moisture, ash, volatile matter, and fixed carbon contents which are determined accordingly to ISO 17246:2010 standard. The moisture content (VM) represents the percentage of water absorbed within coal, ash content (VAsh) represents the volume of residue remaining after coal combustion, expressed as a percentage, volatile matter (VV) represents the difference in mass of the coal before and after heating. Assuming the coal was saturated before combustion, fixed carbon content (VFC) represents the total percentage of coal excluding the other three components, namely volatile matter percentage, moisture content, and ash percentage. The sum of these four components equals to

1 (Jie et al., 2014). Estimation of proximate analysis components commonly involves the utilization of volume models and regression analysis between conventional well logs data and laboratory analyses (Bond et al., 1969). Jie et al. (2014) and Baouche and Wood (2020) proposed various relationships between ash content (VAsh) obtained from density logs and fixed carbon content (VFC) as well as correlations between moisture and ash content. In this study, the correlation equation specific to the Lorraine Basin will be presented in the results section.

Various empirical equations have been used in different basins to estimate the volume of sorbed natural gas in coals (Gc) in standard cubic feet per ton of coal (scf/ton) (Mullen, 1989; Mavor et al., 1990). Various equations were used to calculate the gas content from conventional logs based on the Kim equation or its modifications (Hildenbrand et al., 2006; Faiz et al., 2007; Sang et al., 2009).

For the Saar-Lorraine coal basin, two equations (III.1.5) and (III.1.6) were applied: i) Mullen (1989) equation which is based on empirical data from the San Juan basin in the United States provides approach to estimating Gc using only bulk density (ρb) log data:

$$Gc\ Mullen = 1053 - 542 * \rho b \qquad \text{(III.1.5)}$$

And ii) Mavor et al. (1990) who establishes Gc using only V Ash and VM by the following equation:

$$Gc\ Mavoretal = 601.4 - \frac{751.8 * VAsh}{1.0 - VM} \qquad \text{(III.1.6)}$$

III.1.5 Results

III.1.5.1 Sedimentary log analysis

Identification was done by well log analysis (Figure III.1.4) and core analysis (Figure III.1.5). A small selection of cores is presented in Figure III.1.5. The facies and sequences of the Westphalian D (Asturian) and upper part of the Westphalian C (Bolsovian) are illustrated in Figure III.1.3. According to the duration of the Westphalian C and D (5 Ma and 3 Ma respectively, Aretz et al., 2020), the sequences (Figure III.1.2) are of high frequency and third order.

• **Facies lithology**: Sedimentary facies cover both lithological and bedding characteristics of the sediment. For clastic deposits, lithologic facies are represented by the grain size, as shales to conglomerates spectrum (Figure III.1.3). Intermediate ratios of shale to sand represent energy fluctuations within the depositional environment. This approach to facies classification is particularly applicable to log analysis since the major lithological parameter reflected by logs in clastic sediments is the sand-shale ratio for a discrete interval. Therefore, each type of lithology will have a particular type of log response, and log curves can be interpreted in terms of lithologic facies, particularly when cores are available to set up a comparative standard (Section III.1.5.1.2).

In addition to this spectrum of clastic facies, other types of lithology may be encountered in the Carboniferous infilling of Lorraine Basin. The main common added lithology is here, of course, coal. Pure coal strata are often associated with organic shales which are represented by a mixture of fine-grained siliciclastics with variable quantity of organic matter. As pure coal is characterised by a clean gamma ray, organic shales present a gamma ray (GR) signal response intermediate between pure coal (low GR values) and pure shale (high GR values) (Section III.1.5.1.2).

• **Facies trends**: Facies trends directly indicate vertical energy variation as a clastic deposit accumulates, reflected either in coarsening, or fining-up trends. These are usually associated with a single genetic sand deposit of limited thickness. On the GR curve, these sequences are quite characteristic, and form either bell-shaped or funnel-shaped patterns.

Sandstone deposits usually exhibit a characteristic vertical sequence according to the type of deposit. Thus, channel deposits tend to be sharp-based and fining-up, while bar deposits are usually coarsening-up (Figure III.1.3).

Upward thickening patterns represent periods of increasing sand supply and energy while upward thinning patterns represent phases of sand abandonment and decreasing energy. Upward thickening patterns will be often accompanied by a grain size increase, and conversely (Section III.1.5.1.2).

III.1.5.1.1 Main architectural elements and related facies

According to electrofacies lithology and stratigraphical trends, coupled with available core data, four main architectural elements were determined (Figures III.1.3 and III.1.4): (i) channel, (ii) crevasse splay, (iii) floodplain, and (iv) swamp:

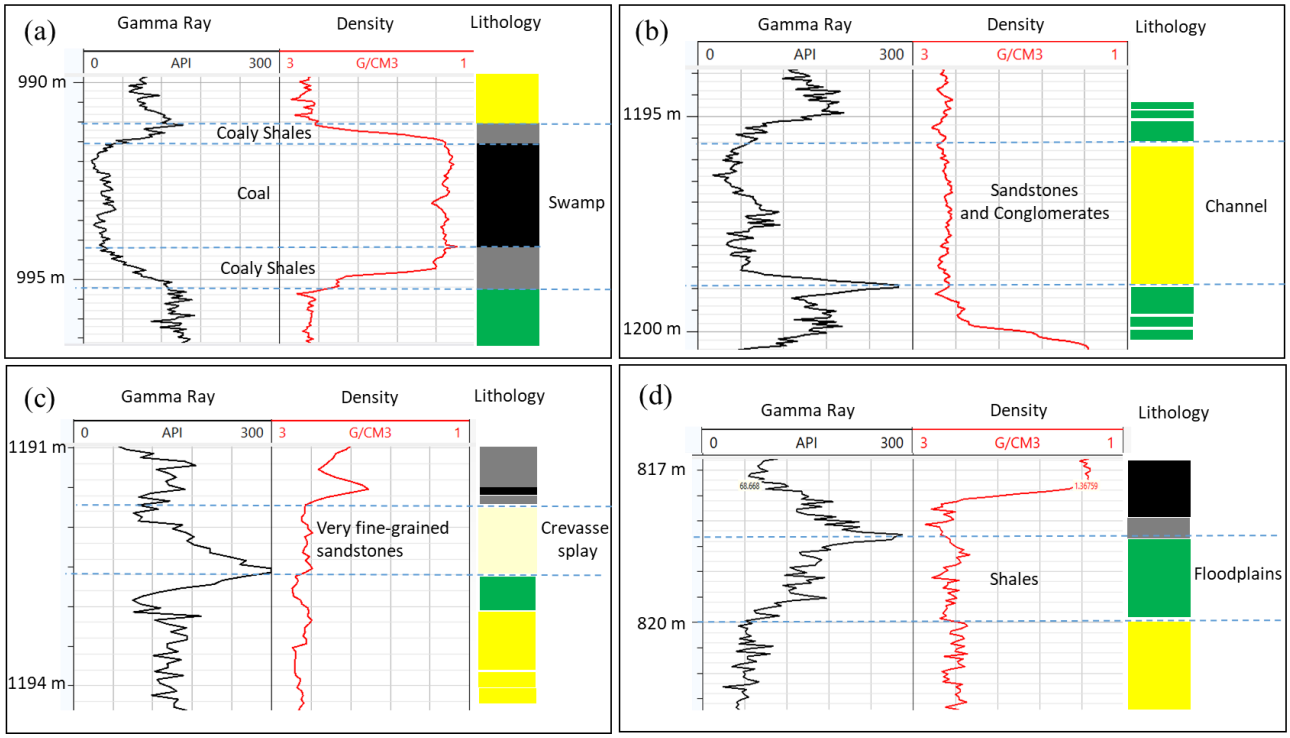


Figure III.1.4: Well Log Responses of Different Fluvial Depositional Environments in the Lorraine Basin: A Case Study from Fols 1A well

The channel facies consist of dark grey to light, fine- to very coarse-grained quartzose sandstones and conglomerates. Channels occur either as single tabular to lenticular bodies up to 10 m thick (i.e. Laudrefang Formation) (Figure III.1.3), or in stacks of channels up to 100 m thick (i.e. Merlebach Formation) (Figure III.1.3). The channel facies may extend laterally on a scale of kilometers. Individual channels within stacks are separated by thin fine-grained intervals, up to 10 cm thick. Typically, sandy channel facies have an erosional base with conglomeratic lag deposits and rip-up clasts of mudstone, siltstone or coal. The channels fine upwards, from very coarse or coarse sandstone to medium or fine sandstone. Prominent sedimentary structures include planar and trough cross bedding in sets 0,5 to 1 m thick, ripple cross-lamination, and more rarely horizontal lamination. In this study conglomerate and sandstone represented by a cylindrical gamma-ray signature, deposited in river channel that is a proximal architectural element within a fluvial depositional environment (Figure III.1.3 and Figure III.1.4b). The base of this cylinder can exhibit a distinctive cutoff from the architectural

elements seated below. This is particularly true when the cylindrical channel starts with an erosional base, while in some cases, it may begin with a crevasse-splay architectural element, indicated by a gradual decrease in gamma-ray values towards levels characteristic of conglomerate facies, typically ranging from 30 to 35 API. These levels correspond to intervals with lower clay content, resulting in decreased radioactivity. The density log response for this architectural element closely resembles the density response observed in floodplain deposits, with lower values ranging from 2.65 $g.cm^{-3}$ to 2.71 $g.cm^{-3}$. The identification of fluvial channels cannot rely solely on the gamma-ray response, as both coal and sandstone conglomerates can exhibit similar gamma-ray values. In such cases, the density logs play a crucial role in differentiating these architectural elements. Furthermore, the identification of fluvial channels cannot solely rely on the density log, as it can be confused with floodplain architectural elements. In such cases, the gamma-ray signal becomes essential for accurate identification (Figure III.1.4b). The gamma-ray signature was confirmed by the presence of conglomerate with sharp contact at the base passing upwards into sandstone in the cores in the same intervals (Figure III.1.5bcdf).

The crevasse splay facies consist of light to dark grey siltstone to medium-grained quartz-rich sandstone and rare mudstone. Both fining and coarsening upward sequences occur in units up to 3 m thick. Fining-up units have erosional or planar bases marked by rip-up clasts of underlying sediment and grade up from medium- to fine-grained sandstone at the base to very fine sandstone or siltstone. The coarsening up units have gradational or planar bases and range from siltstone or silty sandstone at the base, to fine- or medium-grained sandstone. Dominant sedimentary structures within both fining and coarsening upward units are trough and planar cross bedding in sets up to 0,5 m thick in sandstone (Figure III.1.3), and ripple cross-lamination in siltstone. Other features include climbing ripples bedding, parallel lamination and sometimes soft-sediment deformation such as convolute bedding. The sedimentary structures and grain size of the fining-up units are indicative of crevasse splay and crevasse channel deposits. Distal crevasse splay deposits commonly fine up from very fine sandstone to mudstone and may lack lag deposits and rip up clasts, due to their increased distance from active river channels during deposition. Coarsening up units registered the progradation of crevasse splays within floodplain. The crevasse splay facies commonly occur as a gradational unit between the channel sandstone and floodplain facies but also as stacks of interbedded fining and coarsening up deposits, especially close to channel sandstone bodies. In such a case, levee deposits may be indistinguishable from crevasse splay deposits, and all that facies can be grouped into informal

overbank deposits. In this study, the deposition of very fine-grained sediment (alternation of siltstone and claystone) corresponds to a crevasse-splay palaeoenvironment on a floodplain. It is characterized by a vertical decreased clay content compared to floodplain deposits which is reflected in the reduced gamma-ray values. The gamma-ray response takes the form of a flowerpot-shaped curve, indicating the presence of crevasse splay (Figure III.1.4c). Crevasse splay are formed when sediment-laden water overflows onto the floodplain, resulting in the deposition of fine-grained material. This process leads to a decrease in clay content, as seen in the diminished gamma-ray values. The identification of crevasse lobes is primarily based on the observed decrease in clay content, which is manifested in the gamma-ray response. The gamma-ray signature of this coarsening upward sequence was confirmed by the presence of alternation of claystone and laminar and wavy siltstone passing upwards to flaser siltstone in the cores in the same intervals (Figure III.1.5e).

The floodplain facies consist of interbedded and interlaminated medium to dark grey quartz siltstones and mudstones. Parallel lamination is the dominant sedimentary structure in siltstone but ripple cross-lamination, convolute bedding, wavy lamination and massive siltstone can occur. Mudstones are often massive but sedimentary structures, where present, include parallel to undulated lamination and rare bioturbation. Alternations between mudstone and siltstone vary from a meter to millimeter scale with interlaminated units often exhibiting mud-draped ripples. Carbonaceous partings, plant fragments and roots occur throughout the floodplain facies. The sedimentary structures, presence of carbonaceous partings and bioturbation suggests low energy deposition as distal crevasse splays and suspension deposition on a river floodplain. The floodplain facies are commonly interbedded with crevasse splay deposits suggesting clastic rather than coal-forming environments predominated in distal flood plain regions during times of fluvial activity. In this study, the first distinguishing feature of a floodplain (characterized by dominant clay lithology) is a clear progressive increase in gamma-ray values from low to around 150 API. This gradual rise is also visually represented by bell-shaped curves (Figure III.1.4d). The density log alone is not sufficient to differentiate floodplain deposits, however, floodplains are characterized by density values greater than 2.72 g/cm³. Interpretation solely on the gamma-ray signal for identifying these architectural elements in floodplains is inadequate, as both shales and clayey coals can exhibit high gamma-ray values. Therefore, coupling the observation of the density log with the gamma-ray response can help distinguish between coaly clays, clayey coals, and pure shales. Notably, coal has lower density compared

to clay. The gamma-ray signature was confirmed by the presence of claystone in the cores in the same intervals (Figure III.1.5ad).

In This Study, **Swamp deposits** term is used as a singular part of the flooplain occupied by permanent standing waters (stagnant and deficient in oxygen) where organic matter is trapped and preserved from degradation by oxygen and carbon biological recycling (nutrient supply, pH, bacterial activity, redox potential). It is well known established that the preservation of organic matter requires rapid burial or anoxic conditions (McCabe, 1985; McCabe & Parrish, 1992). By studying modern peat producing wetlands, different kind of organic matter places can be determined. They vary in their morphology, vegetation type, degree and type of biomass degradation, growth rate, degree of humification, water table, base level changes and the input of clastic sediments. By taking into account all these criteria, we can then distinguish between mire, bog, fen, marsh, swamp (Moore, 1989; Diessel, 1992; Thomas, 2002). Here, with lack of a many of preceding criteria, we use the most generic term of swamp. The organic-rich facies contain coal and carbonaceous mudstone and shale that are commonly interbedded with each other and share gradational contacts. Carbonaceous mudstones are dark grey to brown-black and massive with abundant plant fragments and rootlets. Carbonaceous shales are black and consist of finely macerated plant material. Coal is the most abundant of the organic-rich units, forming packages up to 15 m thick (Figure III.1.3). Lateral continuity is variable. Thicker strata commonly split into multiple plies. Rooted carbonaceous mudstone and shale generally underlie coal seams, indicating that the coal is autochthonous and peat deposition started slowly in response to terrestrialisation. Partings are generally thin carbonaceous mudstone or shale beds, less than 3 cm thick. Coal seams often grade up to argillaceous coal and carbonaceous shale, except where eroded by channel sandstone and crevasse splay facies. Erosion indicates peat deposition was either halted abruptly by an influx of clastic sediments, during major flooding events or possible later erosion leading to removal of previously deposited transitional sediments. Gradational upper contacts of coal seams suggest gradual flooding of the peat swamps terminated peat deposition (Figure III.1.3). In this study the coal facies deposited in a swamp palaeoenvironment is commonly found in fluvial depositional settings within the Lorraine Basin contains the coal seams deposits. It is characterized by a distinct negative deflection in the density log, indicating a pronounced and rapid decrease in bulk density towards values as low as 1.2 g/cm³, which contrasts with the typical values of 2.5 g/cm³ observed in channel deposits (Figure III.1.4a). The gradual reduction in density values within the swamp environment is reflected by average values ranging from 1.9 to 1.5 g/cm³. These lower densities

are indicative of coal deposits partially associated to clay minerals, whereas values below 1.5 g/cm³ suggest the presence of clean coals. Differentiating between clean coal and clayey coal can be accomplished by examining the gamma-ray response. Pure coals, devoid of clay content, exhibit very low gamma-ray values, often lower than those of conglomerates (GR= 15 to 20 API). On the other hand, clayey coals display an increasing gamma-ray signature from lower values, gradually reaching levels comparable to those of clay (around 140). This characteristic response is represented by a bell-shaped curve (Figure III.1.4a).

The gamma-ray signature of coal was confirmed by the presence of coal in the cores in the same intervals (Figure III.1.5adf).



Figure III.1.5: A small selection of cores from the Folschviller (Fols) and Diebling (Dbl) wells for comparison with electrofacies. a: claystone-coal-wavy siltstone at 1292m (Dbl, Petite Rosselle), b: siltstone-conglomerate-sandstone at 1290.8m (Dbl, Petite Rosselle Fm), c: sandstone-conglomerate-sandstone at 1279m below Nelly coal (Fols, Laudrefang Fm), d:sandstone-siltstone-claystone-coal Ida (Fols, Tritteling Fm) at 994m, e: wavy and flaser sitstone in a coarsening upward sequence at 984m

above Ida coal (Fols, Tritteling Fm),f: siltstone-coal 8-9 at 795m-siltstone-sandstone-conglomerate (Fols, Tritteling Fm/Steinbesch Fm). Core Height=1m.

III.1.5.1.2 Lithological Identification through well-log derived histograms.

Figure III.1.6 presents histograms of lithology occurences as a function of gamma ray values (ranging from 0 to 300 API) for three boreholes (Fols 1A, Dbl S1, and Jhs-1). Sandstone-conglomerate and clay may be identified as two lithological families through their two distinct Gaussian distributions, certified upon identification from core samples. The sandstone and conglomerate formations display gamma ray values ranging from 20 to 80 API, whereas the clay formations exhibit values exceeding 80 API. Additionally, it is observed that the coaly facies extend across nearly all gamma ray values for the three boreholes, depending on the clay content of the coals. In conclusion, gamma ray analysis can differentiate between clean formations and clayey formations, but lithological identification requires coupling with other well log data.

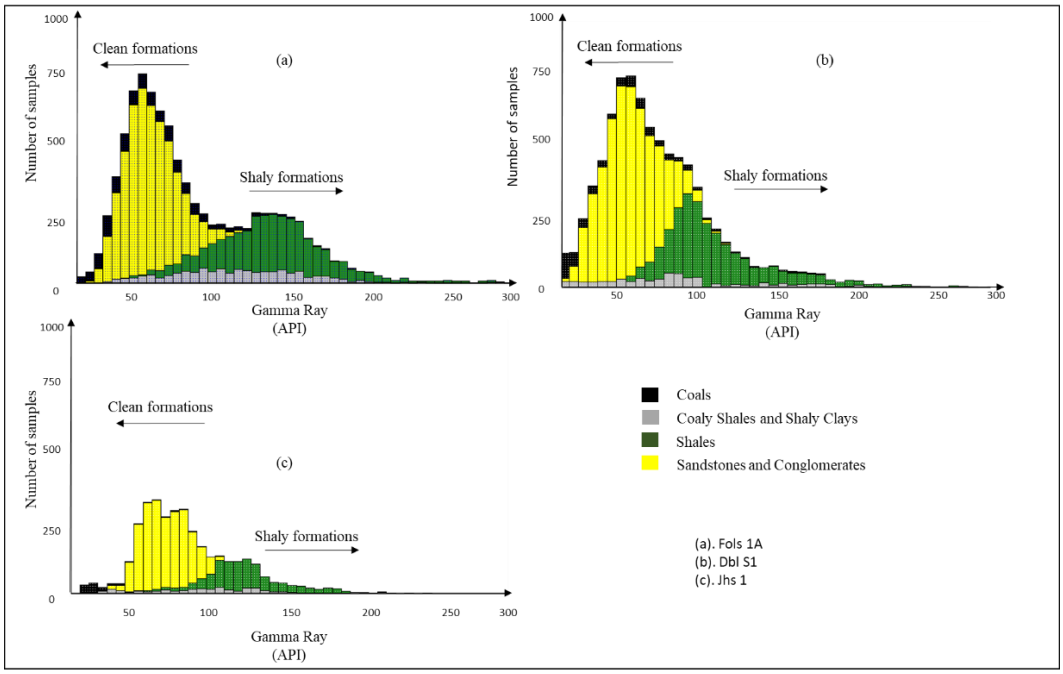


Figure III.1.6: Gamma Ray vs lithologies Histograms of Fluvial Depositional Environments Including Sand, Shale, and Coal of Folschviller (Fols 1A) and Diebling (Dbl s1 and Johannswiller (Jhs-1) wells.

From Figure III.1.7, illustrating a histogram of data based on density log, two distinct facies poles emerge: the denser (sandstone, conglomerates and shales) and the lesse denser facies associated with coal formations. The dense facies exhibit a Gaussian distribution ranging between 2.5 and 3 g/cm^3 within a mixed zone, while the coal formations display a separate Gaussian distribution between 1.1 and 1.5 g/cm^3. Between these two zones, there is a dispersion

of shaly coals and coaly shales, with densities from 1.5 to 2.5 g/cm^3. The transition from the mixed zone (sandstone + conglomerate + shale) to the coal pole is marked by a reduction in density, attributed to an increase in organic matter content and a decrease in clay matrix.

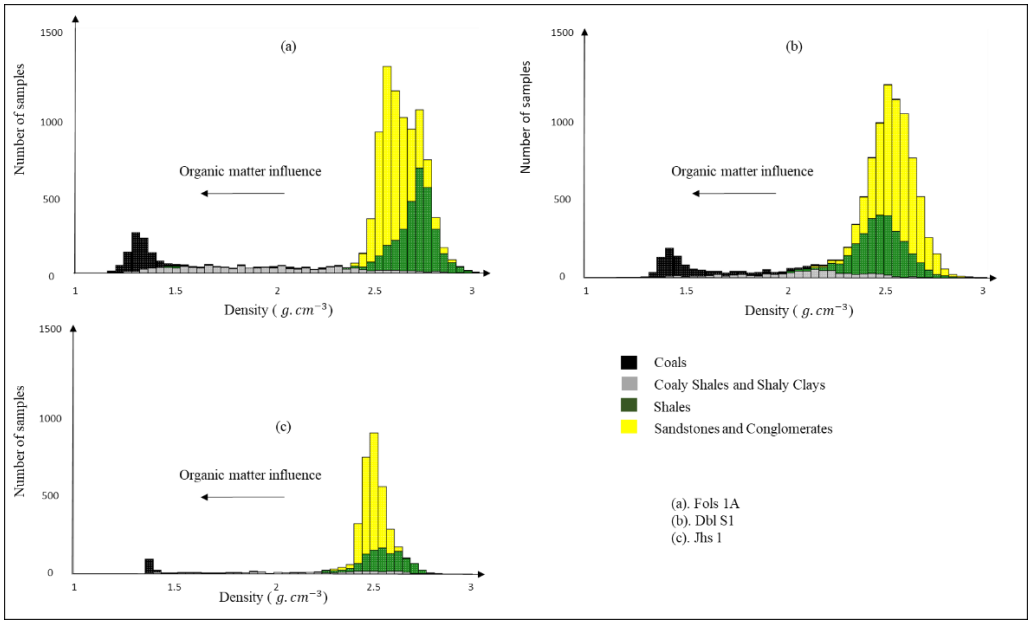


Figure III.1.7: Density Histogram of Fluvial Depositional Environments as a function of Sand, Shale, and Coal Lithologies occurences of Folschviller (Fols 1A) and Diebling (Dbl s1)) and Johannswiller (Jhs-1) wells.

Based on Figure III.1.8, the histogram of sonic slowness can be comparable to the density log in terms of distinguishing two facies poles: the first representing more compact facies (sandstone, conglomerates, and clay) compared to coal. Specifically, the sandstone, conglomerate, and clay facies are characterized by sonic slowness values ranging between 50 and 80 µs/ft for the Fols 1A and Jhs-1 boreholes, and between 70 and 100 µs/ft for the Dbls- 1 borehole. In parallel, the sonic slowness values for the coal and clayey coal facies extend from 80 to 140 µs/ft for Fols 1A and Jhs-1, and from 100 to 160 µs/ft for Dbl S1.

The shift of sonic slowness values for the Dbl S1 borehole compared to the Fols 1A and Jhs-1 boreholes, can be attributed to the structural position of the Dbl S1 borehole at the top of an anticline, in contrast to the Jhs-1 borehole situated on the anticline/syncline flank. This might be explained by the fact that he sediments from the Fols 1A and Jhs-1 experienced greater burial due to their structural position (on the anticline/syncline flank), resulting in a higher rock compaction compared to the sediments of the Dbl S1 positioned at the hinge zone of the anticline. In conclusion, the sonic slowness log can also serve as a valuable lithological

indicator, comparable to the density log. The increase in sonic slowness is attributed to an increase in organic matter content and the presence of fractures in the coal facies.

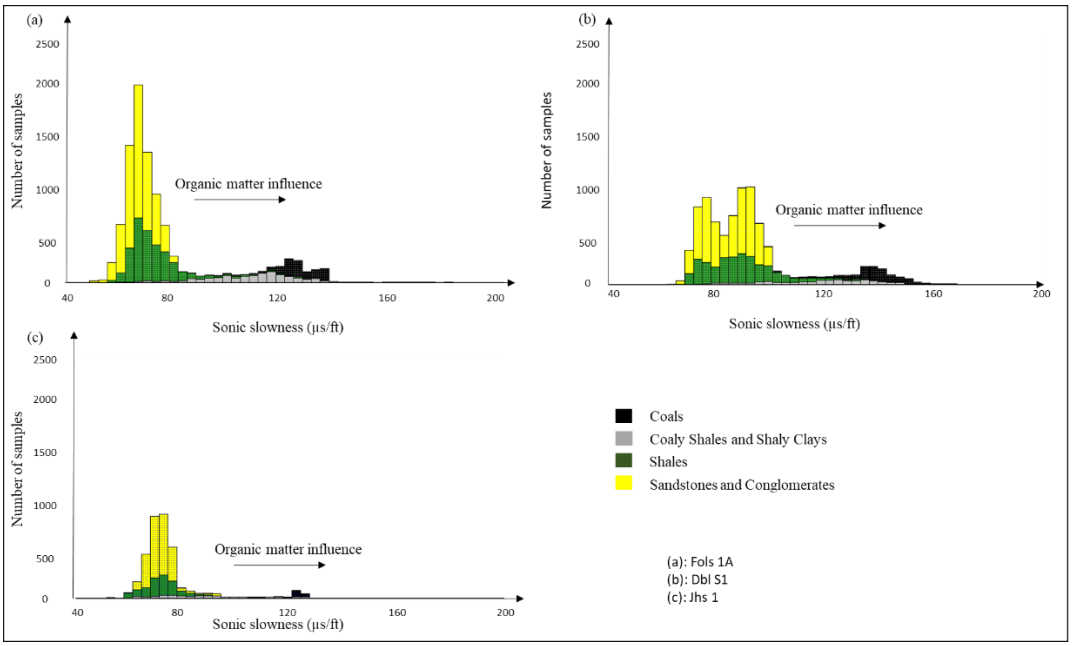


Figure III.1.8: Sonic slowness Histogram of Fluvial Depositional Environments Including Sand, Shale, and Coal Lithologies of Folschviller (Fols 1A) and Diebling (Dbl s1)) and Johannswiller (Jhs-1) wells.

III.1.5.1.3Depositional Palaeoenvironments characterisation through cross plots

Figure III.1.9 displays crossplots of Gamma Ray against density log for the four major facies found in the Lorraine coal basin, based on data from the three boreholes. A distinct cluster represents the dense facies, comprising sandstones and conglomerates from the channels, exhibiting low Gamma Ray values indicative of a low clay volume. The transition from these channel facies to floodplain is marked by an increase in Gamma Ray values, suggesting a clay enrichment in the depositional environments while maintaining consistently higher density values. Similar configurations are observed in crossplots for marine basins, where a slight decrease in density and Gamma Ray is associated with organic matter effects (Rider et Kennedey, 2011). For the Carboniferous continental deposits, this comprehensive pattern effectively characterizes the transition to the swamp environment clusters (Figure III.1.9), clearly demonstrating the influence of organic matter increase and reduction in clay volume characterized by the lowered density and Gamma Ray values corresponding to the pure swamp environment cluster.

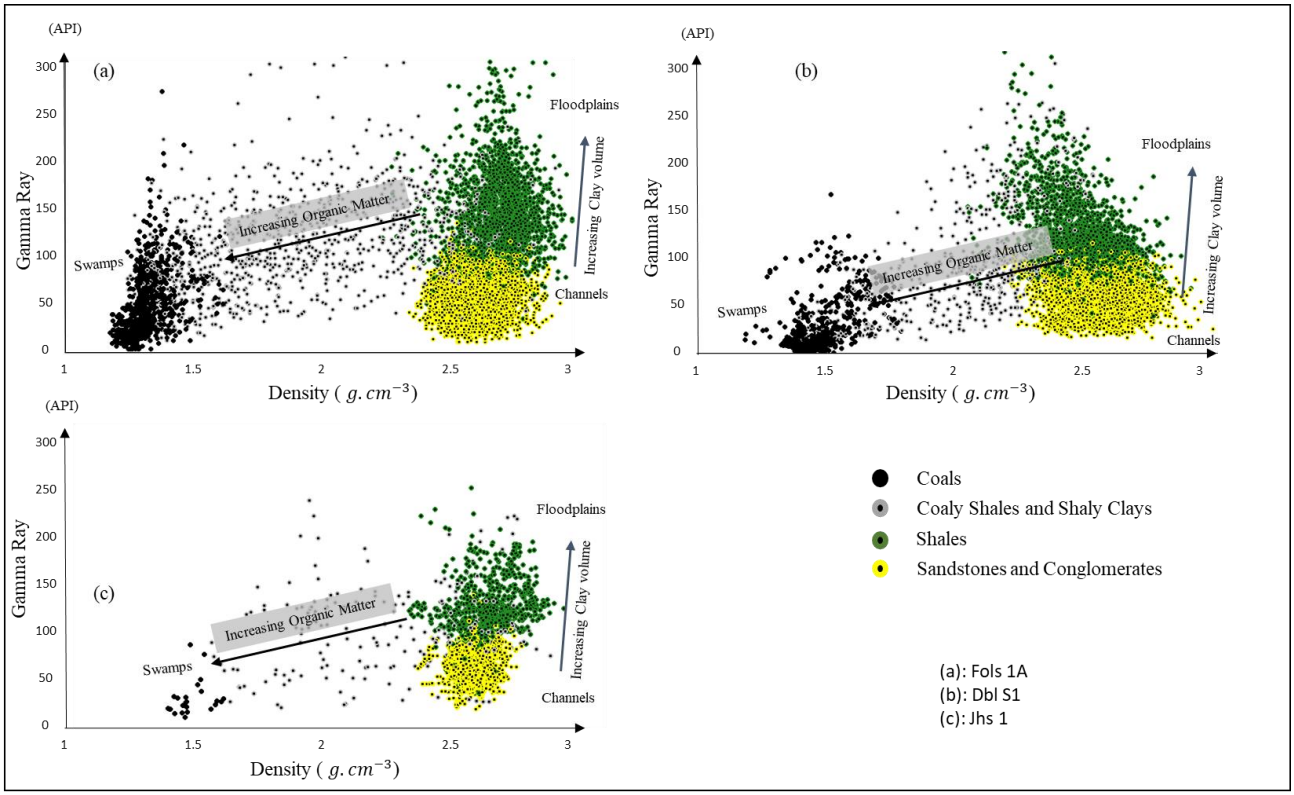


Figure III.1.9: Cross-plot of Gamma Ray against Density for Fluvial Depositional Environments in the Carboniferous Lorraine Basin, Including Sand, Shale, and Coal Lithologies of Folschviller (Fols 1A) and Diebling (Dbl s1)) and Johannswiller (Jhs-1) wells.

III.1.5.2 Petrophysical Evaluation using well log data

The average Gamma Ray values from the thickest clay-rich bed of the Carboniferous series, closest to the coal and sandstone reservoirs, were used to determine GRmax (Table III.1.1) in Fols 1A, Dbl S1 boreholes, and Jhs-1. The clay parameters, particularly the density ρbsh (Table III.1.1), were determined in these clay-rich beds.

Well	GRmax (API)	ρbsh ($g.cm^{-3}$)
Folschviller	170	2.71
Diebling	145	2.71
Johannswiller	146	2.71

Table III.1.1: Clay parameters used for petrophysical evaluation of Upper Carboniferous in Folschviller (Fols 1A) and Diebling (Dbl s1) and Johannswiller (Jhs-1) wells.

The "sand line" was chosen based on sandstones and conglomerates reservoirs, while the "coal line" was selected based on coal beds. These two reference lines were employed to select

GRmin values for each facies. Additionally, the matrix densities for both lithologies were obtained from well logs and included in Table III.1.2.

Wells	Lithofacies	GRmin (API)	ρma ($g.cm^{-3}$)
Folschviller	Sandstones and conglomerates	45	2.68
	Coals and coaly facies	20	1.30
Diebling	Sandstones and conglomerates	34	2.69
	Coals and coaly facies	15	1.40
Johannswiller	Sandstones and conglomerates	23	2.68
	Coals and coaly facies	15	1.40

Table III.1.2: Matrix Parameters Used for Petrophysical Evaluation of Upper Carboniferous formations in Folschviller (Fols 1A) and Diebling (Dbl s1)) and Johannswiller (Jhs-1) wells

The shale and matrix parameters presented in Tables III.1.1 and III.1.2 are used in equations (III.1.1), (III.1.2) and (III.1.3) to calculate shale volumes, total density porosity, and effective porosity, which excludes non-connected pores of clay matrix in reservoir formations (sandstones, conglomerates, and coaly layers).

The mean total and corrected porosities for each lithofacies are presented in Table III.1.3 for three boreholes (Fols 1A, Dbl S1, and Jhs-1). In the Fols 1A borehole intersecting the Westphalian D, total porosity is recorded at 6.5% for sandstone reservoirs and 4% for coal layers. For the Dbl S1 borehole, total porosity exhibits a depth-dependent decrease, declining from 7.9% for sandstones and 5.9% for coal layers in the Westphalian D to 3% for both reservoir types in the deeper Westphalian C. Likewise, the Jhs-1 borehole displays a reduction in porosity with depth. Sandstones and conglomerates in the Stephanian exhibit a porosity of 9.6%, while thin centimeter-scale coal layers fall beyond diagraphic resolution limits. In the Westphalian D, effective total porosity diminishes to 8.3% for sandstones, with a corresponding total porosity of 4.2% in the coals. Lastly, for the Westphalian C, porosity further decreases, reaching 5.9% for sandstone reservoirs and 3% for coal layers.

Due to the absence of shallow resistivity logs for the Dbl S1 and Jhs-1 wells, the computation of fracture porosity is limited to the coal layers of the Westphalian D formation in Fols 1A,

where shallow resistivity data is available. The determined fracture porosity for these coal layers stands at 3% (Table III.1.3), representing the effective porosity controlling fluid and gas flow within these formations.

Well	Formations	Lithofacies	ΦTD(%)	ΦTDC(%)	Φ**f**(%)
Folschviller	Westphalian D	Shales	4		
		Sandstone and Conglomerates	7.2	6.5	
		Coal layers	**4.1**	**4**	**3.2**
Diebling	Westphalian D	Shales	10.8		
		Sandstone and Conglomerates	11	7.9	
		Coal layers	**9**	**5.9**	**ND**
	Westphalian C	Shales	6.7		
		Sandstone and Conglomerates	6.8	5	
		Coal layers	**6.7**	**3**	**ND**
Johannswiller	Stephanian	Shales	11.2		
		Sandstone and Conglomerates	11.2	9.6	
		Coal layers	/	/	/
	Westphalian D	Shales	11		
		Sandstone and Conglomerates	11.1	8.3	
		Coal layers	**6**	**4.2**	**ND**
	Westphalian C	Shales	7.3		
		Sandstone and Conglomerates	7.3	5.9	
		Coal layers	**4.2**	**3**	**ND**

Table III.1.3: Summary of Total Porosity, Corrected Total Porosity, and Fracture Porosity in Different Lithologies of the Carboniferous Lorraine Basin by Formation and Well as determined by well-log.

III.1.5.3 Proximate analysis and determination of gas content of Coal from Well logs Data

III.1.5.3.1 Proximate analysis

Empirical laws for proximate analysis prediction were established using datasets from "La Française de l'Énergie" for Fols 1A, Lachambre (CBR 1), Triteling (Trit 1) boreholes, from

"Conoco Philips" for Saulcy (Suy) and Lorette (LRT 1) boreholes, and from HBL boreholes described by Marcel (1953) (Appendices 2 and 3).

Figure III.1.10 show the correlations between ash content (VAsh) and density measurements (Equation (III.1.7)), ash content (VAsh) and fixed carbon (VFC) (Equation (III.1.8) as well as the correlation equation used for calculating moisture (VM) based on ash content (VAsh) (Equation (III.1.9)).

$$VAsh = 0.6702 * \rho b - 0.7548 \quad \text{(III.1.7)}$$

$$VFC = 0.656 * VAsh - 0.6092 \quad \text{(III.1.8)}$$

$$VM = -0.008 * VAsh + 0.0174 \quad \text{(III.1.9)}$$

Due to the constraint that the sum of these four components (V Ash, V FC, VM, and V V) equals to 1, the calculation of the volume of volatile matter (V V) is determined by the equation (III.1.10).

$$VV = 1 - V\ Ash - VFC - VM \quad \text{(III.1.10)}$$

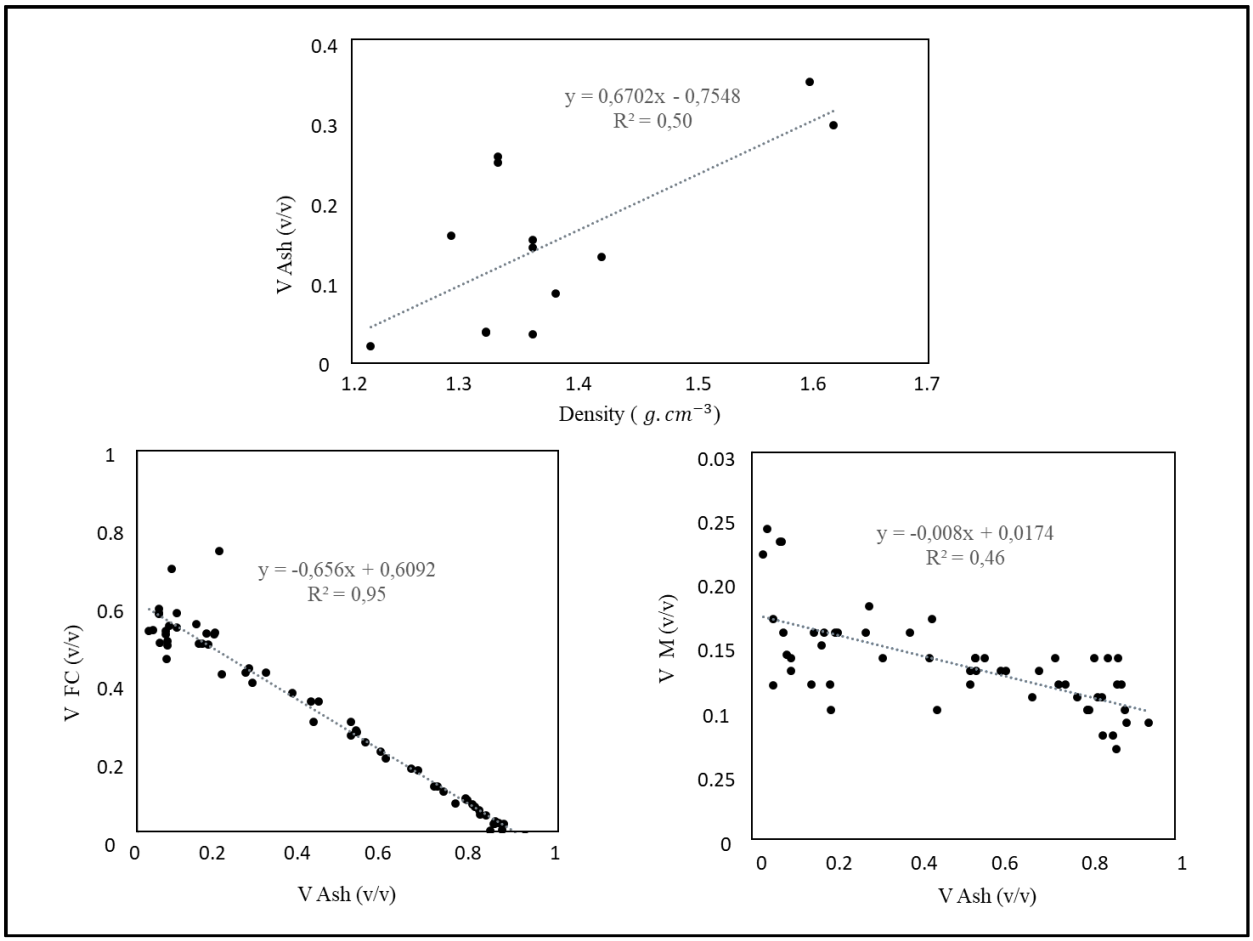


Figure III.1.10: Estimated Proximate Analysis Components Models in the Carboniferous Lorraine Basin: a) Relationship between Density and Ash Volume b) Relationship between Ash Volume and Fixed Carbon Content c) Relationship between Ash Volume and Moisture Content.

III.1.5.3.2Gas Content Analysis

Density logs were employed along with a density filter threshold of less than 2.2 g/cc to automate the calculation of cumulative thicknesses in the three explored boreholes. The ©Techlog software facilitated the computation of cumulative thicknesses for coal layers intersected by these boreholes, as well as the determination of mean density values for these coal layers within each unit (Table III.1.4).

When comparing formations, it was observed that the Westphalian D exhibited the highest cumulative coal thicknesses, whereas the Stephanian formation showed comparatively lower values (Table III.1.4). The same methodology for coal thickness calculation was applied to the lithostratigraphic units of the sedimentary deposit as historically defined for coal production (Figure III.1.2 and Table III.1.4). The Laudrefang unit emerged as the most substantial and comprehensive coal bearing section with a cumulative coal thicknesses of 46.45 meters in Fols

1A, 37 meters in Dbl S1, and 12.34 meters in Jhs-1. The average density within these coal layers ranged from 1.5 to 1.58 g/cc.

Well	Units	Formations	Cumulative Coal Thickness	Sorbed Naturel Gas volumes per Ton of coal (Gc)		Source rock density average
				Using Mullen (1989) equation	Using Mavor et al. (1990) equation	
			m	m^3/ton	m^3/ton	ton/m^3
Folschviller	Westphalian D	Steinbesch	4.75	5.81	10.62	1.57
		Tritteling	21.85	8.11	12.86	1.41
		Laudrefang	46.45	6.76	11.55	1.5
		Merlebach	-	-	-	-
Diebling	Westphalian D	Laudrefang	37.00	5.51	10.42	1.58
		Merlebach	23.05	5.43	10.35	1.57
	Westphalian C	Petite Roselle	15.85	6.14	11.02	1.54
		Geinsheck	0	-	-	-
Johannswiller	Stephanian	ND	0.41	-	-	-
	Westphalian D	Laudrefang	12.34	5.34	10.26	1.50
		Merlebach	9.6	6.92	11.75	1.49
	Westphalian C	Petite Roselle	13.72	6.58	11.43	1.51

Table III.1.4: Summary of In-Situ Gas Volumes in the Upper Carboniferous of the Lorraine Basin in Coal Layers by Formation and Well

By employing the equations provided by Mullen (1989) and Mavor et al. (1990) (Equations (III.1.5) and (III.1.6), gas volumes were computed for the three wells (Figures III.1.11, III.1.12 and III.1.13). The resulting Mean values ranged between 5.81 and 12.86 cubic meters per ton of rock, as presented in Table III.1.4. For the Laudrefang unit (Figure III.1.2) the calculated values ranged from 6.76 to 11.55 cubic meters per ton for Fols 1A, between 5.51 and 10.42 for Dbl S1, and between 5.34 and 10.62 cubic meters per ton for Jhs-1, as indicated in Table III.1.4.

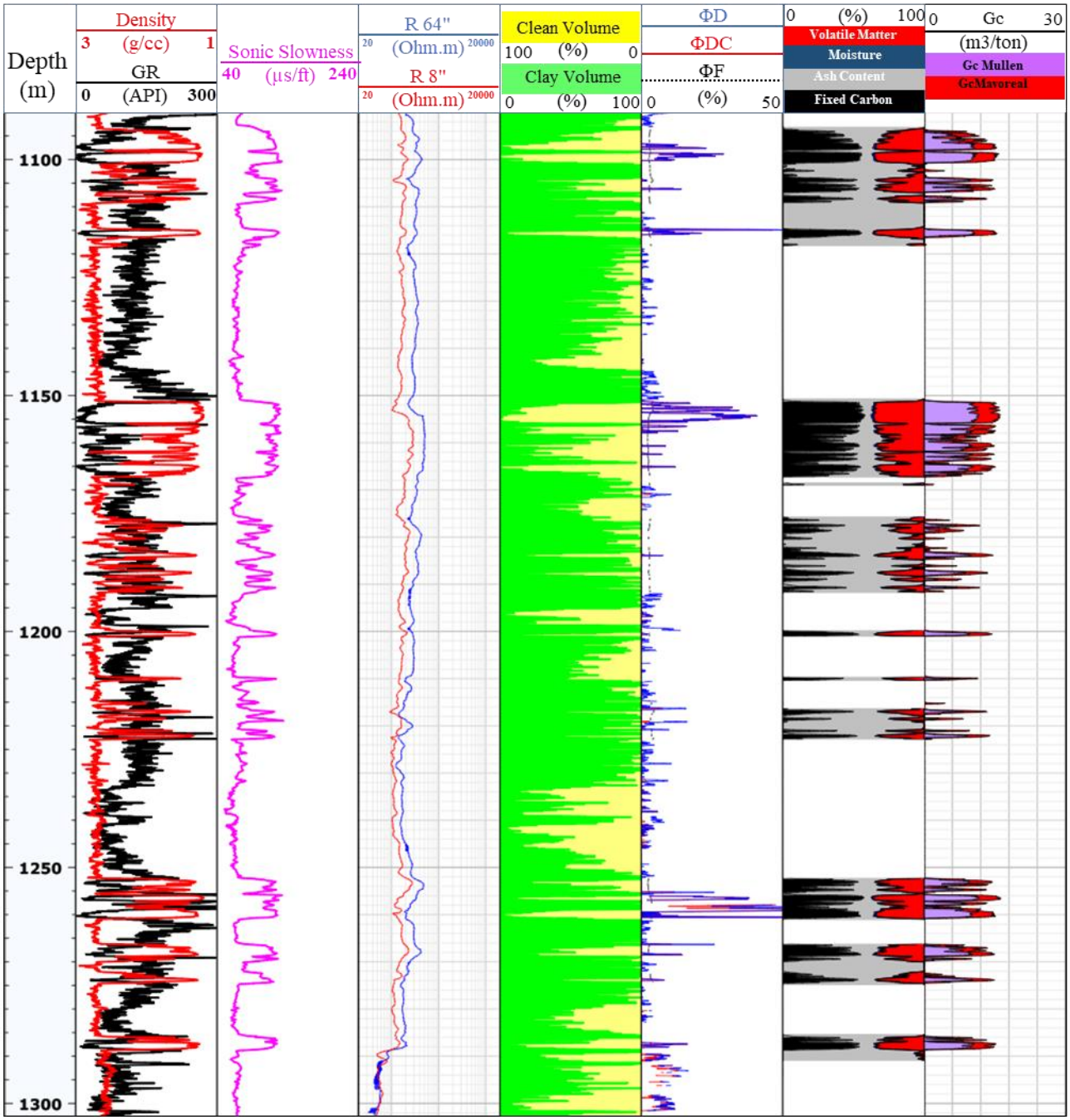


Figure III.1.11: Log plot and calculated results as a function of depth from left to right: combination of density and gamma ray, sonic slowness, resistivities, shale volume and clean volume, total density porosity (D), clay-corrected porosity (Dc), and fracture (F), percentages of coal composition, and in-situ gas volume) from Fols 1A Well.

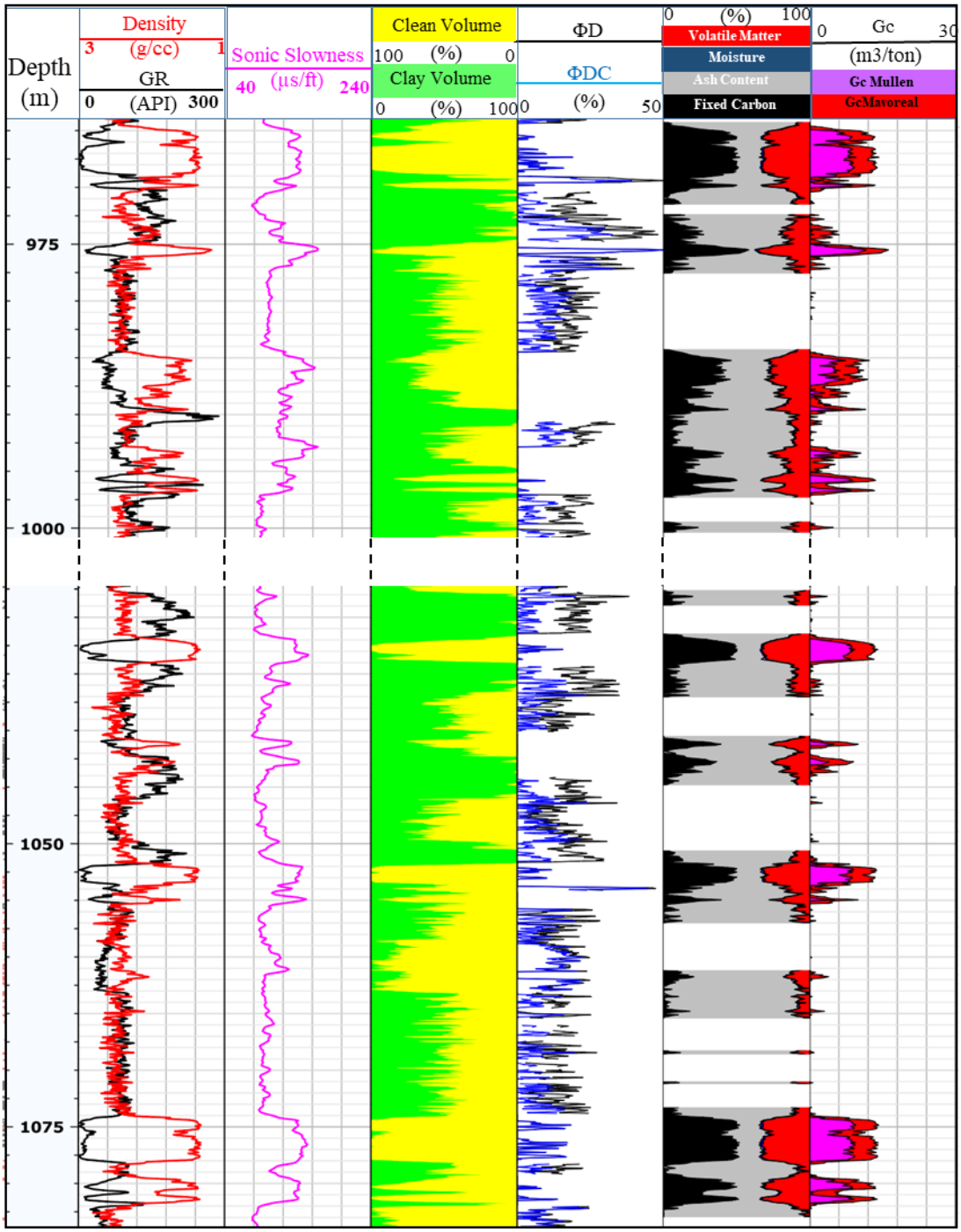


Figure III.1.12: Log plot and calculated results as a function of depth from left to right: combination of density and gamma ray, sonic slowness, resistivities, shale volume and clean volume, total density porosity (D), clay-corrected porosity (Dc), percentages of coal composition, and in-situ gas volume) from Dbl s1 Well.

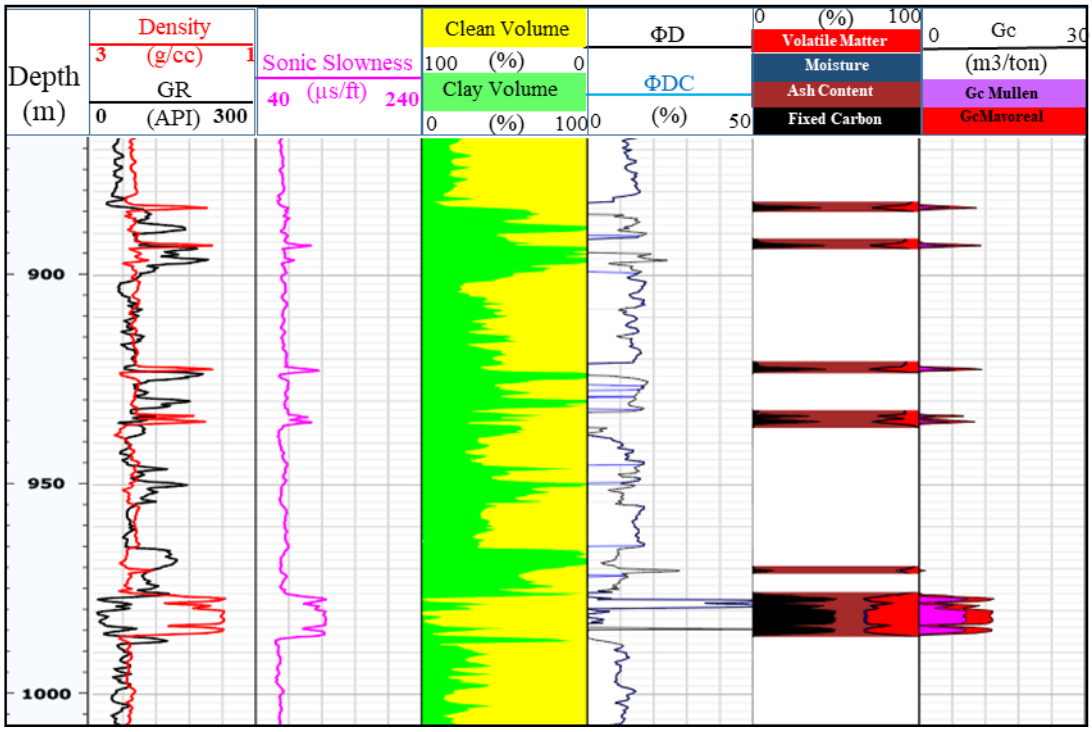


Figure III.1.13: Log plot and calculated results as a function of depth from left to right:combination of density and gamma ray, sonic slowness, resistivities, shale volume and clean volume, total density porosity (D), clay-corrected porosity (Dc), percentages of coal composition, and in-situ gas volume) from Jhs 1 Well.

III.1.6 Discussion

The study of well log data of Fols 1A, Dbl S1 and Jhs-1 wells defined electrofacies which allow to describe sedimentological features and successions typical of the contiental deposits in the Lorraine Carboniferous basin (Figure III.1.3). Sedimentological analysis in this eastern sector of the basin (Figure III.1.3) reveals a predominance of fluvial depositional sequences. The observed architectural elements are consistent with fluvial environments, corroborating previous findings (Donsimoni, 1981) and from other wells in the basin (e.g., Saulcy, Lorette, and Chaumont) as reported by Fleck (2001) and Izart et al. (2016). However, in contrast to these earlier studies, lacustrine facies were not identified in the three wells examined in the present investigation. This spatial variability in facies distribution suggests potential lateral changes in depositional environments across the basin.

The systematic compilation of Gamma-Ray, Sonic and Density of each lithofacies within crossplots (Figures III.1.6, III.1.7 and III.1.8) shows the effects on facies identification of increased organic matter and diminished clay volume, respectively characterized by low values of density and high values of gamma ray. The contribution of the presence of increasing amounts of coal from 0 to 100% strongly enhances a trend only slightly visible in published

literature on marine deposits (Horsfall and Davies., 2016; Ohakwere-Eze et al ., 2018; Hussain et al ., 2023).

The porosity data derived from well log analysis were compared with those obtained from core samples from well Fols 1A (EGL, 2007; M. Mombo, personal communication). Sandstones and conglomerates exhibit a measured porosity of around 5%, which closely aligns with the 6.5% value calculated from well log data, while coal samples display porosity values of approximately 6% in laboratory measurements, closely matching the calculated 4% porosity. In laboratory analyses, shales show porosity on average comparable to sandstones and conglomerates. Siltstones have porosity levels ranging from 3% to 5%, which is consistent with the calculated porosity from log data. When grouped within the same fine-grained sample class, shales and siltstones present an average total porosity of 4.1%.

Based on laboratory measurements as reported by M. Mombo (personal communication), sandstones exhibit an average permeability of around 0.01 mD, while conglomerates show an average of 0.1 mD. Shales display the lowest permeability, while coal samples demonstrate the highest permeability values, which can reach up to 10 mD. This can potentially be attributed to the fact that a significant portion of the calculated porosity for coal layers corresponds to fracture porosity, reaching 3%, representing a highly effective conduit for fluid circulation within the coal layers.

An extensive dataset comprising well logs and laboratory measurements from the Carboniferous Lorraine Basin was utilized for the prediction of coal composition and proximate analysis. The calibration of equations focused on correlating ash content with density log values, leveraging data available in Supplementary data- (Appendices 2 and 3). While equations (III.1.7) and (III.1.9) demonstrate acceptable correlation coefficients of approximately 0.5, these relatively low values can be attributed to fluctuations in log data and surface moisture content measurements of coal samples. Despite these limitations, the equations derived in this study are considered more appropriate for the Lorraine Basin dataset compared to equations calibrated for other basins, such as those proposed by Jie et al. (2014).

Notably, the prediction of fixed carbon content (Equation (III.1.8)), which is crucial for gas volume calculations, exhibits a high correlation coefficient of 0.95. This robust relationship significantly enhances the reliability of estimated gas volumes. The equations derived from

these calibrations play a pivotal role in computing gas volumes adsorbed in coal layers within the Lorraine Carboniferous Basin.

Two scenarios were considered for estimating gas volumes in coal seams. The first scenario employs the equation developed by Mullen (1989) which correlates gas volume with log density values. Initially, this equation was deemed necessary due to insufficient data to establish a direct relationship between these variables for our study area. In a similar vein to Mullen (1989), we attempted to derive an equation using density data from the Fols 1A well, calibrated with desorbed gas volumes. However, this well-specific equation yielded a low correlation coefficient due to fluctuating density values (Appendix 4).

Application of the Mullen (1989) equation provides a conservative estimate of gas volumes. Consequently, the equation proposed by Mavor et al. (1990) was deemed more appropriate for this study. This second equation relates proximate analysis values to adsorbed gas volumes, eliminating the dependence on potentially unreliable density log data

The Mavor et al. (1990) equation demonstrates better agreement with gas volumes measured by surface desorption. Laboratory analyses (La Française de l'Energie, Franlab, 2012; Franlab, 2015; Gunzburger, 2019) indicate gas volumes ranging between 7 and 11 m³ per ton of coal (Appendix 4). These values align with the ranges predicted by both scenarios applied in this study, with Mavor et al. (1990) equation providing the closest approximation to measured data.

III.1.7 Conclusion

This study examined wells in the eastern part of the Lorraine Carboniferous Basin within the concession of "La Française de l'Energie". The integration of core analyses, lithological logs, well logs, and electrofacies analysis confirmed a continental fluvial depositional environment in this part of the basin during the Upper Carboniferous. Four principal architectural elements were identified within this system: channels, crevasse splays, floodplains, and swamps. The associated lithologies include conglomerates, sandstones, siltstones, shales, and coal, with gradations such as shaly coal and coaly shale.

A set of identification charts was developed for application to other wells and potentially other Carboniferous basins. Lithological identification utilizing gamma-ray histograms effectively differentiates between shaly formations and clay-rich formations (siltstones and shaly coal) from "clean" formations such as sandstones, conglomerates, and coal, characterized by low

gamma-ray values. Additionally, density and sonic log histograms facilitate the distinction between denser sandstone-conglomerate-shale facies and less dense coal formations, with sonic slowness logs being particularly sensitive to organic matter content and fractures within coal facies.

The study also proposed an architectural element identification chart, illustrating transitions between the four principal architectural elements in a fluvial system using density, gamma-ray, and sonic logs. This crossplot extends existing charts for marine deposits to continental settings, highlighting the extreme pole of organic matter influence in coal-rich facies.

Gas content analysis utilized density logs to calculate cumulative coal thicknesses and mean density values. Equations from Mullen (1989) and Mavor et al. (1990) were applied to estimate gas volumes under various scenarios, yielding results consistent with data from "La Française de l'Energie".

Porosity calculations from well log data revealed values ranging from 9.6% in the Westphalian D to 5% in the Westphalian C for sandstone reservoirs. In coal layers, considered self-source reservoirs, total porosity averaged approximately 4.1% in the Westphalian D, with 3% attributed to fracture porosity, crucial for fluid flow and depressurization within coal formations, facilitating CBM desorption.

Empirical relationships between Proximate Analysis components and density logs were established to calculate ash content, volatile matter, moisture, and fixed carbon. Applying equations from Mullen (1989) and Mavor et al. (1990) estimated gas volumes adsorbed in coal layers ranged from 7 to 11 m^3/ton of coal in Upper Carboniferous formations.

Acknowledgements

The authors extend their gratitude to Schlumberger (SLB) for providing the Techlog© academic license. We also acknowledge the École Nationale Supérieure de Géologie (ENSG Nancy) for granting access to their computational resources, enabling the utilization of essential analytical software. This research was conducted under the auspices of the REssources GAzières de LORaine (REGALOR) program, a collaborative research initiative co-funded by multiple entities: the French State (through the Pacte Lorraine), the Région Grand Est, and the European Union (via the Fonds Européen de Développement Régional - FEDER) for the period 2018-2023.

III.2 Estimation des teneurs en carbone organique total en utilisant les diagraphies dans les environnements de dépôt fluvio-lacustres du bassin carbonifère lorrain

Sommaire

III.2 Estimation des teneurs en carbone organique total en utilisant les diagraphies dans les environnements de dépôt fluvio-lacustres du bassin carbonifère lorrain ---------- 155

III.2.1 Introduction 156

III.2.2 Geological setting 159

III.2.3 Materials and Methods 162

III.2.3.1 Data availability 162

III.2.3.1.1 Studied wells and core samples 162

III.2.3.1.2 Organic petrography and Rock-Eval analysis 162

III.2.3.1.3 Well logs data 162

III.2.3.2 Methods of Calculating Total Organic Carbon Using Well-Logs 163

III.2.3.2.1 Well Log responses for Characterizing Coal Deposits 163

III.2.3.2.2 Schmoker Method 164

III.2.3.2.3 Δ. log R Method 165

III.2.4 Results 167

III.2.4.1 TOC calculation using Schmoker 167

III.2.4.2 TOC calculation using Δ log R 169

III.2.4.3 TOC calculation using Modified Δ log R Method 171

III.2.4.3.1 TOC Schmoker vs. TOC Δ log R evaluation 171

III.2.4.3.2 "Δ. log R separation" and TOC calibration 174

III.2.4.4 TOC calculation using Multivariate regression 176

III.2.5 Discussion 179

III.2.6 Conclusion 185

III.2 Estimation des teneurs en carbone organique total en utilisant les diagraphies dans les environnements de dépôt fluvio-lacustres du bassin carbonifère lorrain

Ce deuxième chapitre des résultats est rédigé sous la forme d'un article scientifique, en anglais, en vue de sa soumission à une revue scientifique.

Résumé en Français

Le bassin carbonifère lorrain, reconnu comme l'un des bassins les plus prometteurs en France et en Europe pour ses ressources en gaz de charbon (Coal Bed Methane - CBM), revêt une importance particulière pour la transition énergétique après plus d'un siècle d'exploitation charbonnière achevée en 2004 et un regain d'intérêt pour l'exploration pétrolière et gazière dans les années 1980 et 1990. De nouvelles données issues d'une campagne d'exploration en cours dans ce bassin facilitent l'évaluation des ressources gazières piégées dans les dépôts sédimentaires. Cette évaluation est réalisée en déterminant le Carbone Organique Total (COT) le long des puits, à l'aide des données diagraphiques.

Plusieurs méthodes dans la littérature décrivent l'utilisation de la diagraphie dans le contexte des séquences marines, mais peu d'études se concentrent sur leur utilisation dans le cadre des dépôts continentaux. Dans ce chapitre, l'étude emploie une méthodologie englobant la méthode de Schmoker, la méthode Δ log R, et la régression multivariée, se concentrant sur deux forages de référence : Fols 1A et Dbl S1. La méthode de Schmoker fournit les valeurs de COT les plus précises, cohérentes avec les données Rock-Eval. Cependant, la méthode Δ log R sous-estime les valeurs de COT, en particulier pour les lithologies charbonneuses, pour lesquelles des équations logarithmiques sont proposées afin de corriger ces estimations. De plus, de nouvelles équations basées sur la régression multivariée des logs gamma-ray, soniques et de résistivité sont développées pour l'estimation du COT. La méthode de Schmoker s'avère être la plus fiable avec les logs de densité disponibles dans le bassin houiller lorrain. Alternativement, les équations Δ log R modifiées ou celles dérivées de la régression multivariée des logs gamma-ray, soniques et de résistivité peuvent être utilisées. Sur la base du COT, les lithologies des séries sédimentaires étudiées peuvent être classées de roches mères pauvres à moyennes pour les lithologies argileuses, et excellentes pour les couches de charbon.

Total Organic Carbon Evaluation Using Geophysical Well-Logs in Lorraine Coal Basin (NE France)

Salim Allouti[1*], Raymond Michels[1], Metzger Mombo Mouketo[1], Fabrice Malartre[1], Alain Izart[1], Yves Géraud[1], Vitaliy Privalov[1,2], Fady Nassif[3], Jacques Pironon[1], Philippe de Donato[1].

[1] CNRS, GeoRessources Lab, Université de Lorraine, BP 70239, F-54506 Vandoeuvre-lès-Nancy, France
[2] M.P. Semenenko Institute of Geochemistry, Mineralogy and Ore Formation of the National Academy of Sciences of Ukraine, Kyiv, Ukraine
[3]La Française de l'Energie, Avenue du District, 57380 Pontpierre

Abstract

The Lorraine Coal Basin, recognized as the most promising coal bed methane basin in France and Europe, holds significance for the energy transition after more than a century of coal mining until 2004 and renewed interest in oil and gas exploration in the 80s and 90s. New data from an on-going exploration campaign within this basin facilitates the assessment of gas resources embedded in sedimentary deposits. This evaluation is achieved by determining Total Organic Carbon (TOC) along wells, using well-log data. The study employs a methodology encompassing Schmoker's method, Δ log R, and multivariate regression, focusing on two reference boreholes, namely Fols 1A and Dbl S1. Schmoker's method provides the most accurate TOC values, consistent with Rock-Eval data. However, the Δ log R method underestimates TOC values, particularly for coal lithologies, for which logarithmic equations are proposed for proportional corrections. Moreover, new equations based on multivariate regression of gamma-ray, sonic, and resistivity logs are developed for TOC estimation. Schmoker's method proves to be the most reliable with available density logs in the Lorraine Coal Basin. Alternatively, the modified Δ log R equations or those derived from the multivariate regression of gamma-ray, sonic, and resistivity logs can be used. Based on TOC, lithologies of the investigated sedimentary series may be classified from lean to fair source-rocks for shaly lithologies to excellent for the coal layer.

Keywords: Total Organic Carbon; Carboniferous; Lorraine Basin; Coal; Coal bed Methane; well log; Δ log R; Schmoker method

III.2.1 Introduction

After more than a century of coal exploitation until 2004 and exploration for oil and gas during the 80s-90s, renewed interest in evaluating of the gas reserves of the Lorraine Carboniferous basin has emerged in recent years (Gunzburger, 2019). Today, the Lorraine basin is subject to

a new investigation and many data are available. Previous studies described the coal seams distribution (Donsimoni, 1981), the organic geochemistry of coal and kerogen-bearing strata (Fleck, 2001), reconstructed the burial history of the basin, and evaluated gas generation (Izart et al., 2016). However, until recently no attempt was made to quantitatively evaluate the gas generation potential of the basin as part of the assessment of the ultimate gas reserves.

The Total Organic Carbon content (TOC) is represented as a key-parameter to assess the gas potential of sedimentary strata. While major coal strata are well recognized in the Lorraine basin wells, the quantitative estimation of the abundance of kerogen present in surrounding rock facies (clay, silt, sandstone, and conglomerate) has never been evaluated. Yet, the calculation of the total gas generation potential of the Carboniferous deposits requires the appraisal of all source-rock facies.

TOC measurements in the laboratory may be performed by carbon analyzers (Van Krevelen, 1993) or Rock-Eval analysis (Espitalié et al., 1985) applied to core samples and drilling cuts. However, these laboratory measurements are time-consuming and the TOC data is discontinuously determined along the sedimentary profiles. To overcome this drawback, methods involving well-logging methods have been developed to assess TOC contents. Well-logging techniques have greatly enhanced the exploration of Coalbed Methane (CBM) reservoirs by providing workflows to evaluate coal quality, and reservoir parameters such as fracture density, permeability, and gas content (Morin, 2005; Chatterjee et Paul, 2013; Meng et al., 2013; Sutton et al., 2014; Ghosh et al., 2016; Su et al., 2018).

The systematic determination of the TOC content of sedimentary logs by such methods has however mostly been developed for marine petroleum source rocks (Nixon, 1973; Meissner, 1987; Meyer and Nederlof, 1984; Mendelzon et Toksoz, 1985; Mann et Muller, 1986,1988; Passey et al., 1990 ; Bessereau et al., 1991;Schwarzkopf., 1992).

Schmoker (1979, 1981) is the earliest researcher to proposing a method to calculate TOC content from the physical properties of rock. Schmoker (1979, 1981) proposed a linear relationship between TOC and the formation density log of shale. Generally, shale mineral matrix density presents an average value of 2.7 g/cm3 while values for organic matter range from 1.2 to 1.4 g/cm3. The occurrence of organic carbon vastly influences the formation bulk density and hereafter TOC is calculated from density logs. Meyer and Nederlof (1984) proposed to use of a combination of geophysical tools. They characterize petroleum source

rocks by their low density, low sonic slowness, and high electrical resistivity. Consecutively, TOC content can be calculated as proposed by Mendelzon et Toksoz (1985).To improve TOC assessment, Passey et al. (1990) proposed to use a combination of well-logs and developed the Δ log R technique, which consists of the overlay of porosity (sonic, density, neutron) to resistivity logs. In organic matter-rich sediments, both geophysical signals are distinct and the magnitude of separation of the two signals is proportional to TOC. A problem with this method is that the Δ log R technique needs the arbitrary selection of a baseline which varies greatly from well to well according to lithology responses (Yu et al., 2017; Wang, 2022) and thermal maturity of kerogen (Sun et al., 2013).

In shale and coal contexts, the delta-log method requires calibration as it tends to underestimate the Total Organic Carbon content in these formations. To address this, alternative approaches are proposed to determine correction coefficients in organic-rich layers (Sondergeld et al., 2010; Nyakilla et al., 2022). Additionally, the inclusion of other well logs, such as natural gamma spectroscopy, is proposed by Li and Zhang (2023).

Bessereau et al. (1991) introduced the CARBOLOG method, which utilizes Sonic slowness and resistivity well logs taking into account the composition of rock, including matrix, water, clay, and organic matter. The method defines the CARBOLOG diagram, where the square root of resistivity is plotted against sonic slowness. However, it is noteworthy that the calibration of this technique necessitates laboratory TOC measurements.

Moreover, statistical methods, such as multivariate analyses, are employed to predict TOC, demonstrating good correlations between density logs and the predicted TOC (Zhang and Xu, 2016). However, the generalization of these models is not possible for all continental shales and coal-measure source rocks due to weak linear correlations with log curves (Hu et al., 2016; Wang et al., 2017). Currently, the most advanced method for calculating Total Organic Carbon (TOC) utilizing well-log data is the application of machine learning algorithms (Huang and Williamson, 1996; Kamali and Mirshady, 2004; Amiri Bakhtiar et al., 2011; Khoshnoodkia et al., 2011; Alizadeh et al., 2012; Cranganu and Dimitrijevic , 2016; Bolandi et al., 2017; Mahmoud et al., 2017, 2019; Nezhad et al., 2018; Wang et al., 2018; Zhu et al., 2018; Elkatatny, 2019; Zhao, 2019; Goliatt and Saporetti, 2023; Zhu et al., 2023; Wood, 2023). However, there is currently no standardized algorithm established for the computation of TOC from well logs. This absence can be primarily attributed to the heterogeneity of lithological formations (Chan et al., 2022). Yet, a major problem is due to the complexity of sedimentary successions,

especially in continental detrital deposits. This is the case for instance for the fluvial facies which are dominant in the Lorraine Carboniferous Basin and characterized by hundreds of fining upward depositional sequences (conglomerate to sandstone, silt, clay, and coal seams). Therefore, this study aims to calculate Total Organic Carbon (TOC) using well-logs across all fluvial-lacustrine sedimentary facies, contributing to the gas reserve calculations.

III.2.2 Geological setting

The Lorraine Carboniferous Basin, situated in North-East France is about 150 km long, and 75 km wide. It extends into the German Saar-Nahe basin where strata outcrop (Schäfer, 2011) (Figure III.2.1). In the French part, the basin is bounded to the north by the Metz-Hunsrück Fault, a major SW-NE trending thrust fault belonging to Variscan orogeny (Henk, 1993; Schäfer, 2005), to the south by the gravity anomaly between Sarrebourg and Gironcourt and to the west by La Marne Fault (Donsimoni, 1981; Izart et al., 2016). It is an intra-mountain basin that developed during the Hercynian orogeny and therefore contains no marine sediments (Schäfer, 1989, 2005, 2011). The main part of the sedimentary filling consists of up to 8 km of Westphalian-Stephanian detrital sediments covered by Permian and Mesozoic deposits of about 500 m thickness on average (Pruvost, 1934; Donsimoni, 1981; Barrabé and Feys, 1965; Izart et al., 2016).

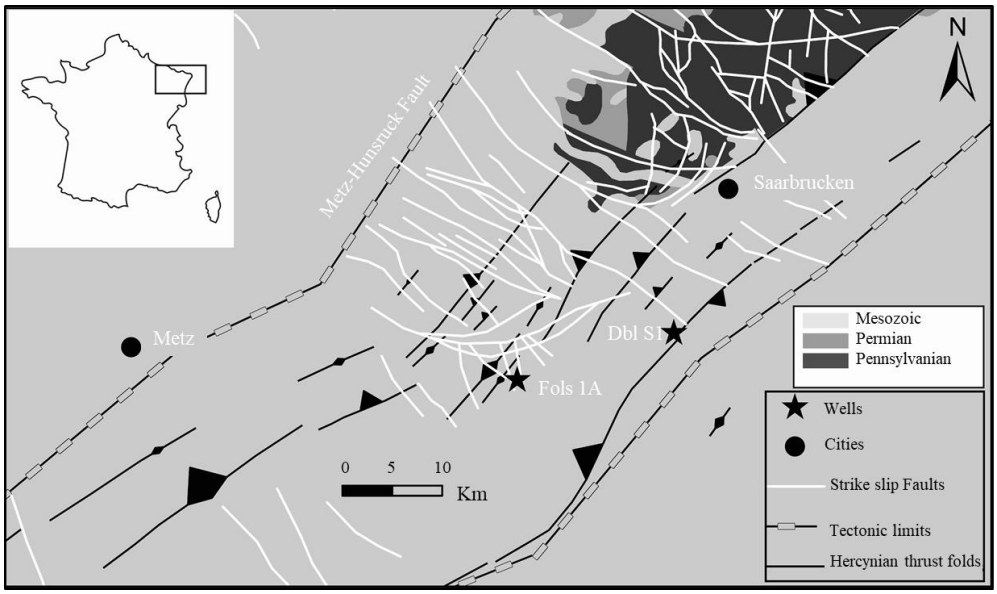


Figure III.2.1: Simplified geological map of the Saar-Lorraine Basin showing the location of Folschviller (Fols 1A) and Diebling (Dbl s1) boreholes. The Carboniferous Basin is accessed by both boreholes at depths of 700 and 600 meters, respectively. Permian and Carboniferous outcrop in Germany. Modified after Pruvost (1934); Donsimoni (1981); Schäfer (2011); Izart et al. (2016).

According to international chronostratigraphic subdivisions, the total time span is about 19 Ma (between 319 and 300 Ma). More precisely well logs investigated stratigraphical interval is comprised between the top of Westphalian C to the lower part of Stephanian. Those regional lithostratigraphical subdivisions could be therefore correlated to the international chronostratigraphical chart (Gradstein et al., 2020), from Moscovian (Middle Pennsylvanian) to Kasimovian (Late Pennsylvanian).

The sedimentary deposits are subdivided into two major series which were defined essentially by palynological and paleobotanical data in galleries and boreholes (Pruvost, 1934; Laveine, 1974; Alpern et al., 1969; Termier, 1923; Merry, 1967): i) The Westphalian series which constitutes approximately 4 km of accumulated deposits with about a hundred coal beds recorded. Their thickness varies from a few centimeters to 25 meters exceptionally, with an average of four to five meters. ii) The Stephanian series of about 1.1 km of deposits containing four major coal layers.

Coal layers are interstratified within all grain size siliciclastic series with variable thicknesses of conglomerates, sandstones, siltstones, and claystones. Deposits show differential preservation due to the development of frequent erosional surfaces.

All sedimentological data are in accordance to a wide spectrum of different continental environments (Figure III.2.2), with alluvial fan sediments, braided rivers, meandering rivers, anastomosed rivers with more or less preserved floodplains. River systems were interconnected to well-developed lowland swamps and lakes organized in variable continuous areas with rich and diversified plant life (Pruvost, 1934; Donsimoni, 1981; Fleck et al., 2001; Izart et al., 2005). This kind of sedimentological evolution and stratigraphical organization is typical of depositional models for coal-bearing strata (McCabe, 1985; Diessel, 1992; Thomas, 2002).

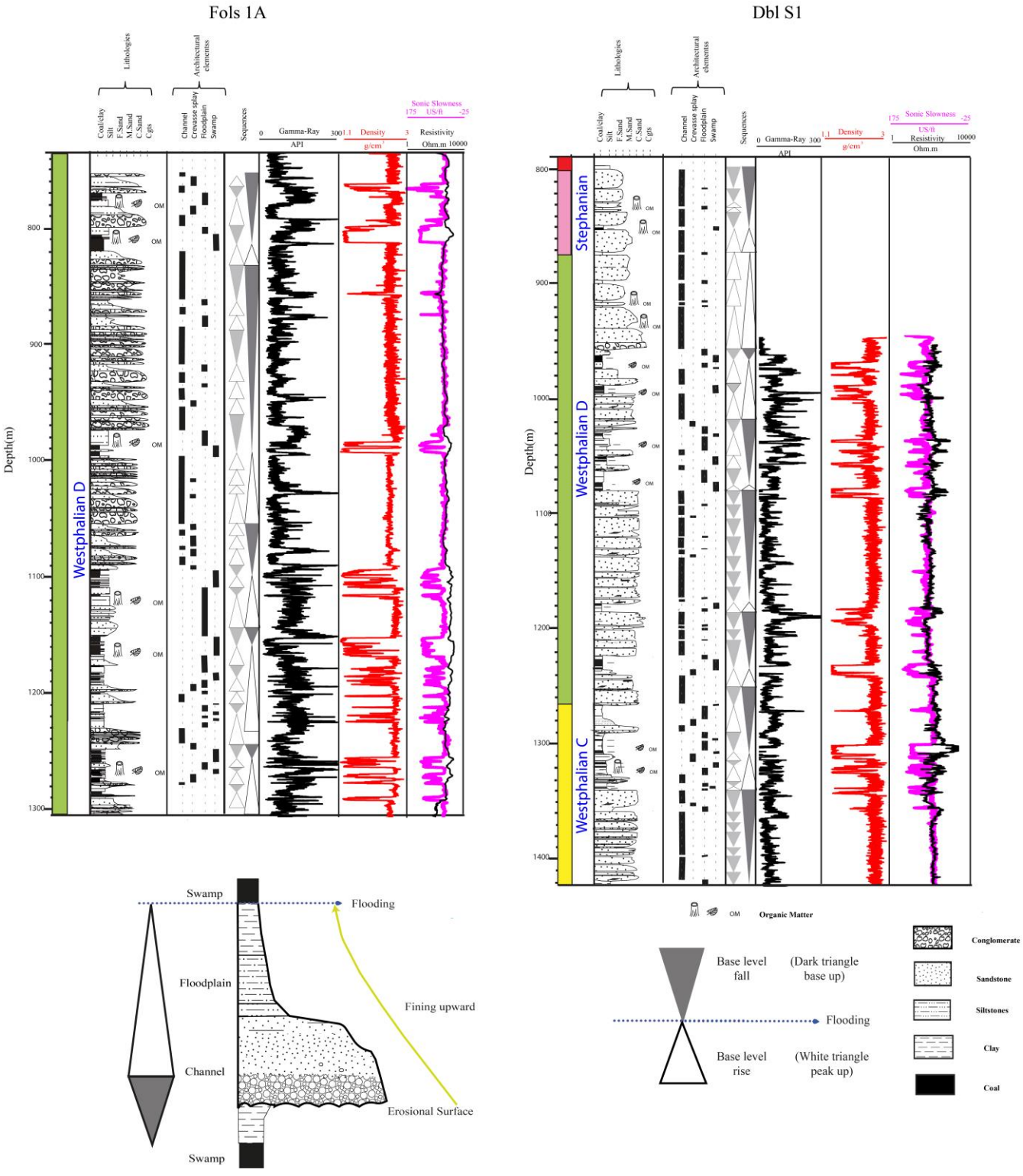


Figure III.2.2: Sedimentary logs of Folschviller (Fols 1A) and Diebling (Dbl s1) wells presenting lithological succession, corresponding depositional environments, elemental sedimentological log and sedimentary sequences representative of the Lorraine Carboniferous basin. Data based on well-logs and core analysis.

III.2.3 Materials and Methods

III.2.3.1 Data availability

III.2.3.1.1 Studied wells and core samples

The study is focused on two boreholes, Folschviller (Fols 1A) and Diebling (Dbl S1), which were drilled by the "La Française de l'Energie" company and penetrated the top of the Carboniferous formation (Figures III.2.1 and III.2.2). Fols 1A reached Westphalian D in the (690-1303 m interval), while Dbl S1 drilled through Westphalian D (875-1265 m interval) and Westphalian C (1265-1440 m interval). Detailed lithologies, depositional environments as well as stratigraphic sequences are synthesized in Figure III.2.2. Thirty-seven samples were collected from these boreholes, including coals and shaly coals, claystones, siltstones, and sandstones.

III.2.3.1.2 Organic petrography and Rock-Eval analysis

The rock and coal samples were crushed, sieved (<180 µm mesh), and analyzed by Rock-Eval analysis at "the Institut des Sciences de la Terre d'Orléans (ISTO) (France)" (analytical procedure described in Le Meur et al. (2021).The major parameters measured were TOC (wt%) and Tmax (°C). Organic petrography and vitrinite reflectance were achieved at EGS-exploration (Switzerland).

III.2.3.1.3 Well logs data

The well logs are presented in Log Ascii Standard (LAS) format for both the boreholes Fols 1A and Dbl S1, which penetrate the two Westphalian formations C and D (Figure III.2.2). Data were imported into Techlog© Schlumberger software and then exported to Microsoft Excel© to evaluate TOC using Δ log R and Schmoker methods. Well-logs in LAS format include Gamma-Ray, Sonic, and Density Logs for determining shale volume, total porosity, and lithology differentiation. TOC computation involves Sonic, Density, and Resistivity Logs. The caliper is also available for both wells to control potential washout/breakout detected by borehole diameter widening in some coal layers. The analysis of log characteristics in Fols 1A and Dbl S1 boreholes revealed discrepancies in the equations used to calculate TOC primarily due to sonic slowness value deviations of 20 µs/ft between the two boreholes. Fols 1A exhibits less dispersion around correlation curves and a higher correlation coefficient compared to Dbl S1. The divergence stems from contrasting sediment composition. The siltites, sandstones, and

conglomerates from the Fols 1A borehole are litharenites rich in pseudo-detrital matrix with abundant micritic siderite cementation, while those from Diebling are of better grain size and mineralogical sorting with poor pseudo-detrital matrix contribution and far lesser siderite (the predominant cements are later diagenetic phases such as dickite and illite). Furthermore, the burial history of the two boreholes varies. Fols 1A experienced greater burial and compaction due to its structural position on the flank of a syncline) compared to Dbl S1, which is positioned on the hinge zone of an anticline.

III.2.3.2 Methods of Calculating Total Organic Carbon Using Well-Logs

III.2.3.2.1 Well Log responses for Characterizing Coal Deposits

Various methods for identifying and characterizing coal layers and kerogen-rich strata in subsurface formations, including gamma-ray, density, resistivity, sonic slowness, and caliper measurements are described in the literature (Seidle, 2011; Keskinsezer et al., 2019; Thomas, 2002).

The gamma-ray method involves measuring the intensity of naturally occurring gamma rays. Coal layers typically exhibit low gamma ray values, whereas clayey formations present high values. Also, gamma ray values are lower in lithologies such as sandstones and conglomerates (Hollub and Schafer, 1992; Karacan, 2009; Seidle, 2011; Keskinsezer et al., 2019). Therefore, this tool cannot be used alone to identify organic-rich sediments.

Density logs are an effective method for determining the density of lithological units. Coal and kerogen-rich strata typically exhibit lower density values compared to other lithologies (Mavor et al., 1994; Zhou and Esterle, 2008; Keskinsezer et al., 2019).

In terms of resistivity, coal layers exhibit higher values, but only when the water content is low (Keskinsezer et al., 2019). The resistivity of coal is dependent on its rank, with lignite and anthracite displaying very low resistivity and subbituminous and bituminous coal displaying a range from low to high resistivity values (Mavor et al., 1994; Thomas, 2002). The resistivity of claystone is also sensitive to kerogen content. In addition, resistivity may be influenced by factors such as water salinity and volume as well as quantity of clay or conductive minerals like pyrite (Sondergeld et al., 2010) and must therefore be combined with other tools to determine the kerogen content of strata.

Sonic logs are valuable tools for identifying coal layers (Rider et Kennedey, 2011; Seidle, 2011). The transit time of sonic waves in coal is between sandstone and shale, discriminating between anthracites and shales challenging due to their similar response. While sonic logs are useful in assessing coal quality, their application to coal gas reservoir engineering is limited by certain constraints such as breakout and washout. Nonetheless, sonic logs combined with the previously mentioned tools may serve as indicators of kerogen content (Passey et al., 1990; Meyer and Nederlof, 1984).

The caliper log is used for measuring the diameter of the borehole and serves as an effective quality control check for other wireline logs, including density, gamma-ray, and sonic logs. By applying this tool, errors in the identification of coal layers caused by unusually low formation density and gamma ray responses across severe washouts can be prevented. It should be noted that while washout is often considered an indicator of permeability, it is an indicator of friable coal (Thomas, 2002).

III.2.3.2.2 Schmoker Method

Schmoker (1979, 1981) developed a method for estimating TOC contents of Appalachian Devonian marine shale using a density log RHOb. Schmoker and Hester (1983) suggested that TOC has a positive linear correlation with the reciprocal of bulk density:

$$\mathrm{TOC} = \frac{A}{\mathrm{RHOb}} - \mathrm{B} \qquad \text{(III.2.1)}$$

Schmoker (1979, 1981) considered the rock is composed of matrix, interstitial pores, pyrite, and organic matter. In this case, the formation bulk density is a function of fractional densities and volumes of these four components. The values of A and B in equation (III.2.1) are calculated by incorporating density values for pyrite, organic matter, and matrix at 5.0, 1.01, and 2.69 g/cm^3, respectively.

$$\mathrm{TOC} = \frac{154.497}{\mathrm{RHOb}} - 57.261 \qquad \text{(III.2.2)}$$

III.2.3.2.3 Δ. log R Method

Passey et al. (1990) proposed Δ log R method for estimating TOC content from well-log data. Currently, the Δ log R is a widely used method for marine clay series. The Δ log R technique requires the superposition of resistivity with porosities logs (sonic slowness ΔT, density RHOb or neutron porosity Φn; in equations (III.2.3), (III.2.4) and (III.2.5) and the availability of organic matter maturity data (e.g. vitrinite reflectance). The logs combination allows defining baseline values for sonic slowness and resistivity to distinguish source rockzones where resistivity and sonic logs are distinct from non-source rock zones where the two logs are merged (Figure III.2.3).

$$\Delta \log R = \log_{10}\left(\frac{R}{R_{Baseline}}\right) + 0.02 * \left(\Delta t - \Delta t_{Baseline}\right) \quad \text{(III.2.3)}$$

$$\Delta \log R = \log_{10}\left(\frac{R}{R_{Baseline}}\right) + 4 * \left(\phi t - \phi t_{Baseline}\right) \quad \text{(III.2.4)}$$

$$\Delta \log R = \log_{10}\left(\frac{R}{R_{Baseline}}\right) - 2{,}5 * \left(RHOb - RHOb_{Baseline}\right) \quad \text{(III.2.5)}$$

Equation (III.2.3) is used to calculate Δ log R. The amount of organic carbon is directly proportional to Δ log R, consequently, TOC can be calculated using equation (III.2.6).

$$TOC = \Delta \log R * 10^{(2.297 - 0.1688 * LOM)} \quad \text{(III.2.6)}$$

If the Level of Maturity (LOM) is known, the Δ log R separation of different lithologies using well logs data can be used to estimate the TOC. LOM is a scale of organic metamorphism applicable to fine-grained sedimentary rocks proposed by Hood et al. (1975). LOM values were estimated from vitrinite reflectance (%Ro) values using equation (III.2.7).

$$LOM = 0.0989 * Ro^5 - 2.1587 * Ro^4 + 12.392 * Ro^3 + 29.032 * Ro^2 + 32.53 * Ro - 3.0338 \quad \text{(III.2.7)}$$

Thermal maturity values for the "Westphalian D" formation in the Lorraine Carboniferous Basin, Fols 1A and Dbl S1 wells are available in Table III.2.1. The equation for LOM was determined from digitalization of the % Ro correlation table established by Hood et al. (1975).

Well Name	Depth MD (m)	Vitrinite reflectance (%Ro)	Level of organic maturity (LOM)
Dbl S1	1300	0.96	10.65
Fols 1A	1094	0.84	10.12
Fols 1A	1100	0.85	10.17
Fols 1A	1150	0.89	10.36
Fols 1A	1160	0.84	10.12
Fols 1A	1162	0.89	10.36
Fols 1A	1267	0.84	10.12
Fols 1A	1286	0.93	10.53

Table III.2.1: Vitrinite reflectance (%Ro) and Level of Organic Maturity determined after Hood et al. (1975) for samples from Fols 1A and DBLS 1 wells.

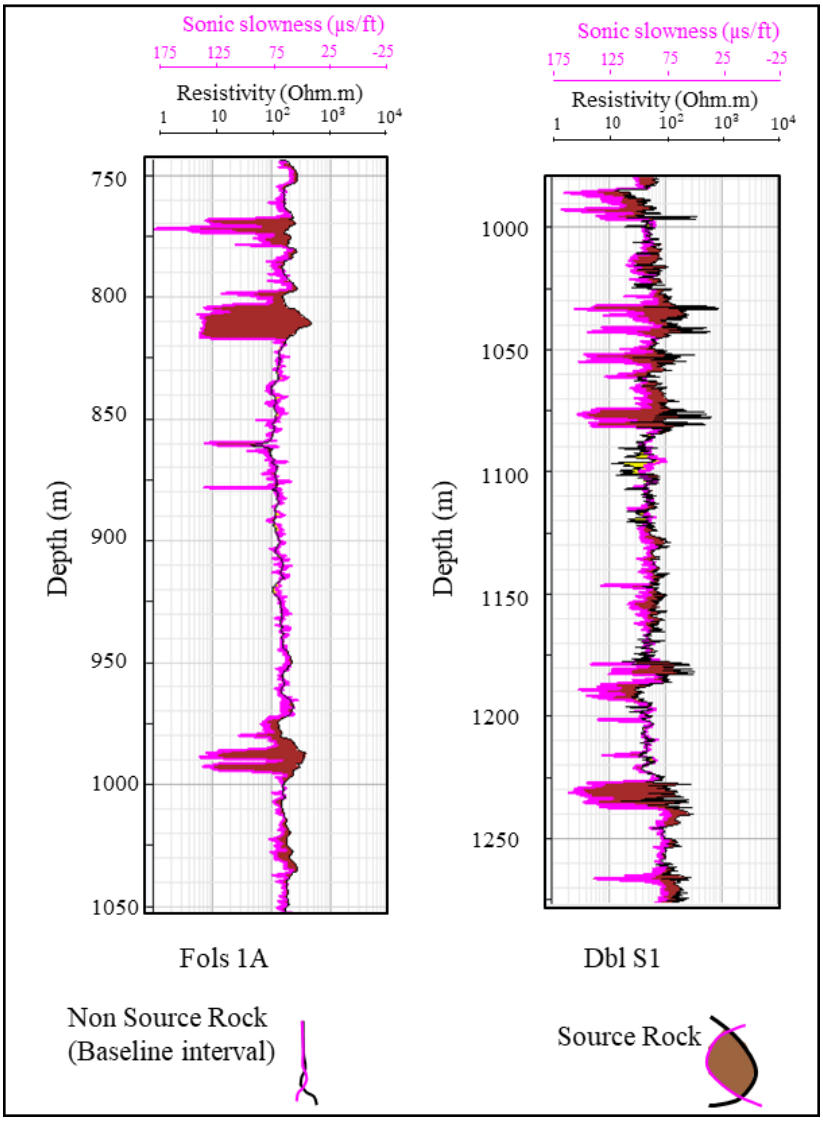


Figure III.2.3: Sonic/Resistivity Overlay is showing Δ log R separation in the coal rich intervals for Fols 1A and Dbls1 wells. The relative scaling and resistivity curves correspond to a 50 µs/ft increment, representing one decade of resistivity.

III.2.4 Results

III.2.4.1 TOC calculation using Schmoker

The widely used TOC calculation method proposed by Schmoker (1979, 1981) is represented by equation (III.2.2) with constants A and B of 154.497 and 57.261 respectively. These values are not always suitable for any well and may thus be adjusted for our reference wells Fols 1A and Dbl S1. These constants are typically gauged from the linear regression of TOC Rock-Eval and density log (Schmoker and Hester, 1983; Yu et al., 2017).

In the case of the Fols 1A well the graphs TOC Rock-Eval vs 1/density and TOC Schmoker versus TOC Rock-Eval (Figure III.2.4a and b) reveal a linear relationship that closely matches

the with equation (III.2.2) with acceptable correlation coefficients. In this case correction of A and B may not be applied.

In the case of the well Dbl S1, the same graphs show significant deviations (Figure III.2.4) revealing that the A and B parameters of the original Schmoker method induce an underestimation of TOC values. Consequently, constants A and B are changed to 256.02 and 100.4 respectively for the Dbl S1 well (Figure III.2.4a; Equation (III.2.8)).

$$\mathrm{TOC} = \frac{256.02}{\mathrm{RHOb}} - 100.4 \qquad \text{(III.2.8)}$$

Figure III.2.4b shows the relationship obtained between Rock-Eval TOC and TOC calculated using the adapted Schmoker equation. The TOC values are calculated using the Schmoker relationship, and are used as a reference for the other developed relationship.

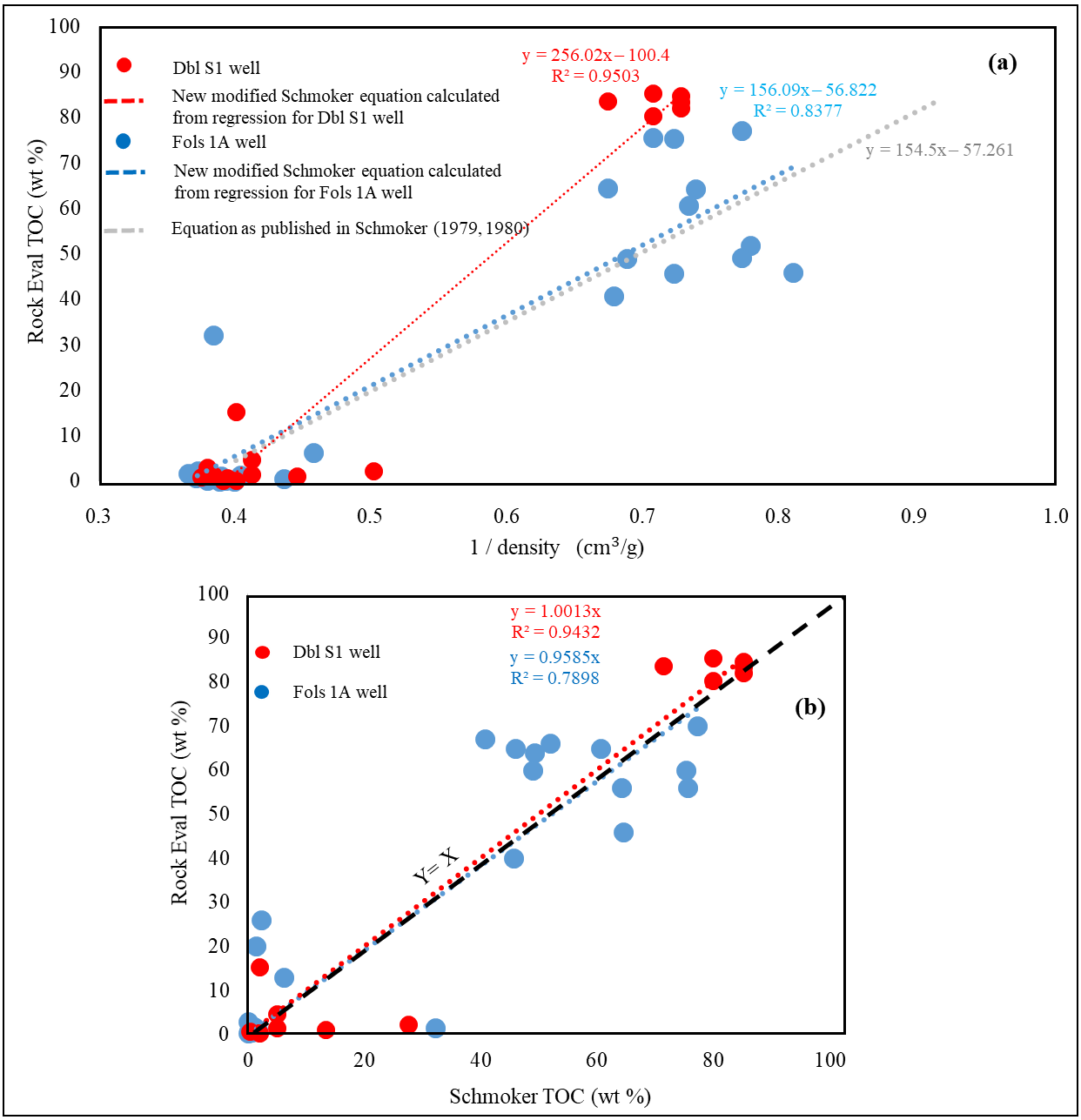


Figure III.2.4: Calibration of TOC by Schmoker (1979, 1981): (a) Linear relationship among Rock Eval TOC (wt%) and 1/density (cc/g) in Fols 1A and Dbl S1 wells as calibrated by the method published by Schmoker (1979, 1981); (b) Comparison of Rock Eval TOC with TOC calculated using the equation published by Schmoker for Fols 1A and proposed modified equation for calibration of Dbl S1 wells.

III.2.4.2 TOC calculation using Δ log R

Continuous sonic and resistivity logs are available for the Fols 1A and Dbl S1 boreholes. Prior to overlaying the curves, appropriate scaling is necessary to ensure that each resistivity cycle corresponds to 50 µs/ft. Following scaling, the curves require baseline definition. Baseline resistivity and sonic values are established at 150 ohm.m and 65 µs/ft for the Fols 1A well and 100 ohm.m and 80 µs/ft for the Dbl S1 well (Table III.2.2 and Figure III.2.3). Equation (III.2.3)

is then used to calculate the Δ log R separation in this study (Figure III.2.3), which enables the estimation of TOC using equation (III.2.6). For Fols 1A and Dbl S1 wells, TOC values were calculated by applying the Δ log R method and equal (III.2.4) to 8 wt% for coal layers. These values are approximately ten-fold lower than the TOC values obtained from Rock-Eval analysis, which range from 20 to 75 wt% in Fols 1A and 10 to 85 wt% in Dbl S1, with maximum values of 75 and 85 wt%, respectively. For shaly lithologies, mean TOC values are 0.5 wt% in both wells, which is lower than the values obtained from Rock-Eval analysis in Fols 1A (7wt% TOC on average) and Dbl S1 (3 wt% on average) (Track 2 in Figures III.2.5 and III.2.6 respectively).

Well Name	Baseline Values	
	Resistivity (Ohm.m)	Sonic slowness (µs/ft)
Fols 1A	150	65
Dbl S1	100	80

Table III.2.2: Delta log R Baseline values used for TOC calculations.

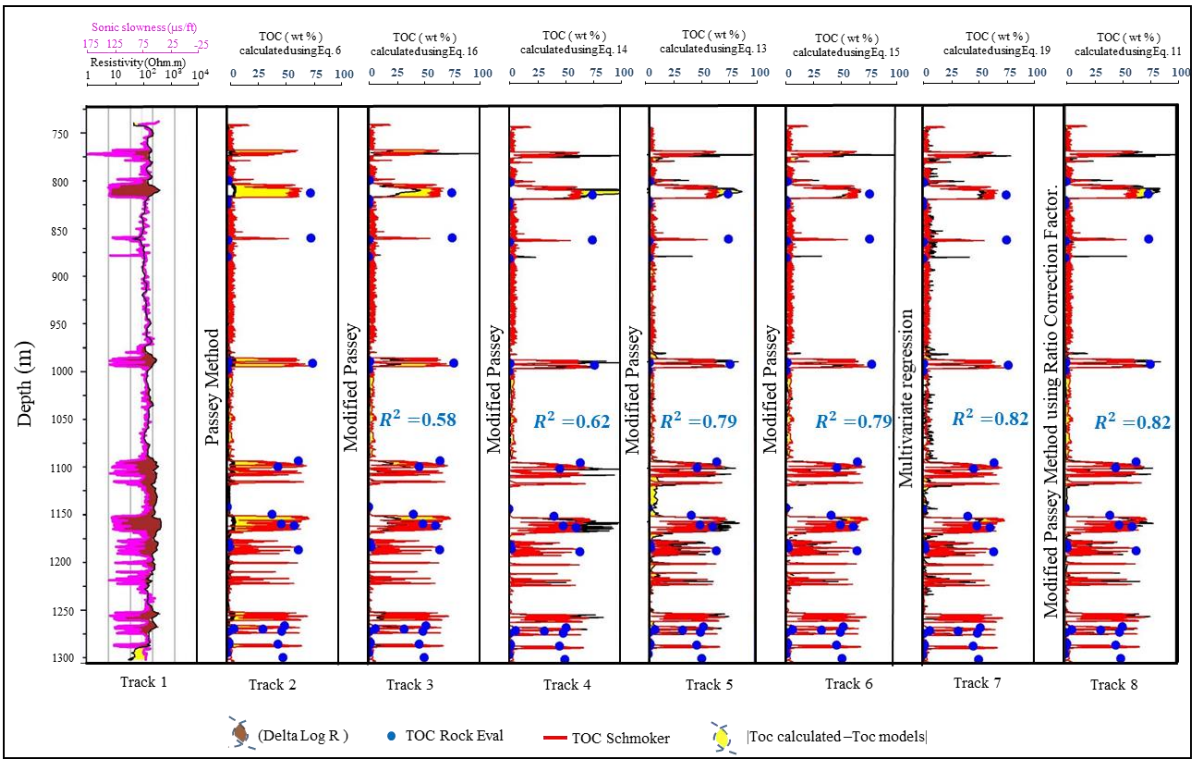


Figure III.2.5: Assessment of Total Organic Carbon (TOC) in Fols 1A well using different calculation methods based on well log data.

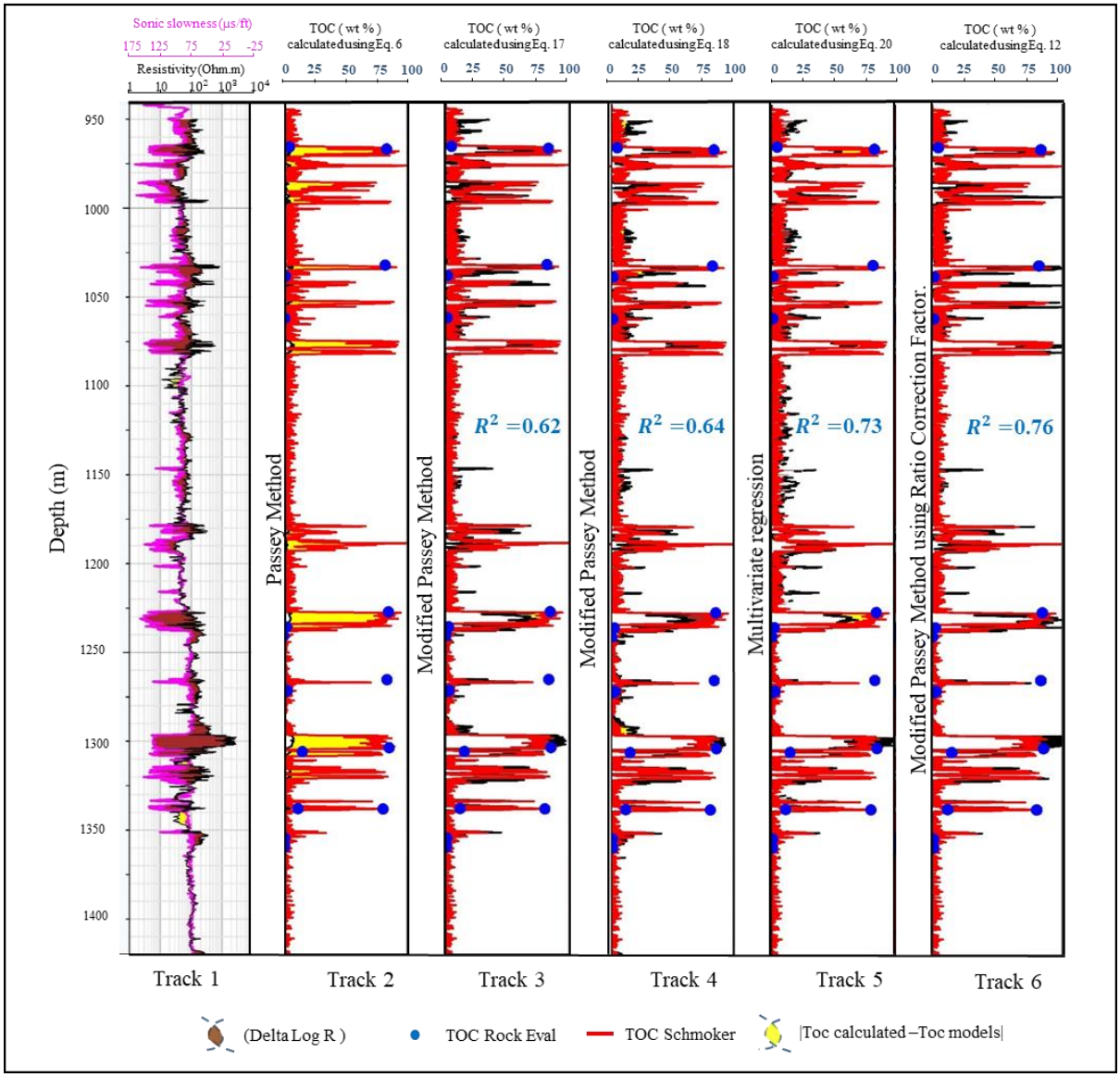


Figure III.2.6: Assessment of total organic carbon (TOC in wt%) in Dbl S1 well using different calculation methods based on well log data.

III.2.4.3 TOC calculation using Modified Δ log R Method

III.2.4.3.1 TOC Schmoker vs. TOC Δ log R evaluation

The Schmoker and calibrated Schmoker methods as defined above allow to calculate TOC values in good agreement with Rock Eval data measured on the various lithologies (coal, shaly coals, coaly shales, sandstones, conglomerates) present in our wells (Figures III.2.5 and III.2.6). The Schmoker method may then be considered as the most appropriate for our study. In contrast, the Δ log R method tends to underestimate TOC values for coaly and shaly lithologies. Cross-plot analyses using TOC Schmoker/ TOC Δ log R versus geophysical parameters (Sonic slowness, bulk density, and resistivity) are tested. Only the cross-plot using sonic slowness showed a consistent trend (Figure III.2.7a) in which values greater than 80 µs/ft and 100 µs/ft

for Fols 1A and Dbl S1 respectively represented a logarithmic trend with a convergence limit of 10. The consideration of bulk density (color scale (Figure III.2.7a) shows that these points correspond to low-density values related to coal and coaly facies. Changes in density values from 1.7 to 2.3 g/cm^3 correspond to increasing shale volume on carbonaceous lithologies. All data points showing sonic slowness values lower than 70 µs/ft and high density (more than 2.3 g/cm^3) are related to non-source rock formations (sandstones and conglomerates) and displayed no correlation with sonic slowness.

The cut-off values of 80 µs/ft and 100 µs/ft were applied to select shale, shaly coal, and coal from Figure III.2.7a. For coaly lithologies, the minimum sonic slowness value is 80 µs/ft for Fols 1A and 100 µs/ft for Dbl S1, while the maximum value is 140 µs/ft for Fols 1A and 160 µs/ft for Dbl S1. The analysis of the data reveals a logarithmic increase in the ratio in relation to sonic slowness, ranging from 0.1 to 10 as shown in Figure III.2.7b. Equations (III.2.9) and (III.2.10) represent this relationship for Fols 1A and Dbl S1 wells, respectively.

$$\text{TOC Schmoker})/(\text{TOC}\,\Delta\,\text{logR}) = 19.15 * \ln(\Delta\text{T}) - 83.48 \quad \text{(III.2.9)}$$

$$(\text{TOC Schmoker})/(\text{TOC}\,\Delta\,\text{logR}) = 23.298 * \ln(\Delta\text{T}) - 101 \quad \text{(III.2.10)}$$

Therefore, to mitigate the discrepancy between TOC values calculated by Δ log R and measured by Rock-Eval, equations (III.2.11) and (III.2.12) are applied as sonic slowness filters to wells Fols1A and Dbl S1 respectively. Proportional corrections are thus applied to shaly and coaly lithologies while values for non-source rock formations are left unaltered.

$$\text{TOC} = \Delta \log \text{R} * 10^{(2.297 - 0.1688 * \text{LOM})} * (19.15 * \ln(\Delta\text{T}) - 83.48) \quad \text{(III.2.11)}$$

$$\text{TOC} = \Delta \log \text{R} * 10^{(2.297 - 0.1688 * \text{LOM})} * (23.298 * \ln(\Delta\text{T}) - 103.48 \quad \text{(III.2.12)}$$

Figure III.2.5 (track 8) and 6 (track 6) show the consistency between assessed and measured TOC values once the corrections are applied. The box plot (Figure III.2.8) for the Fols 1A borehole shows that upon application of the logarithmic factor to the Δ log R method, 50% of coal sample points analyzed exhibit TOC ranging from 30 wt% to 60 wt%. Also, 50% of shaly lithology sample points analyzed exhibit an average TOC amount ranging from 3 wt% to 6

wt%. Similarly, after correction of the Δ log R method via the logarithmic factor, the box plot for the Dbl S1 borehole (Figure III.2.8) indicates that 50% of coal sample points analyzed exhibit a TOC amount ranging from 20 wt% to 70 wt%, with 50% of shaly lithology sample points analyzed exhibiting an average TOC amount ranging from 3 wt% to 6 wt%.

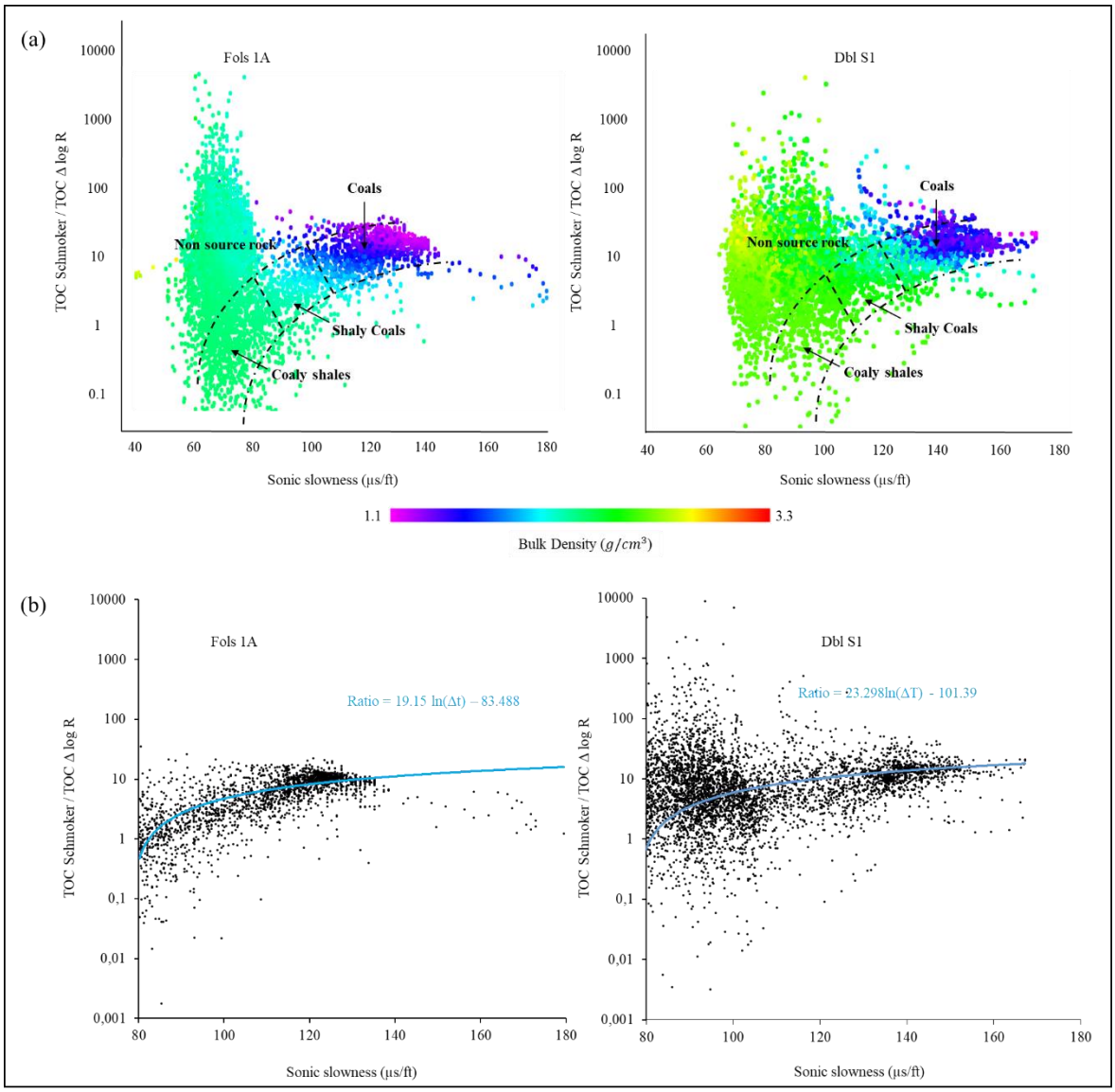


Figure III.2.7: Calculated TOC ratio using Schmoker and Delta log R methods in Fols 1A and Dbl S1 wells: (a) as a function of Sonic Slowness and bulk density: in color code for all lithologies, (b) as a function of Sonic Slowness only for coaly lithologies.

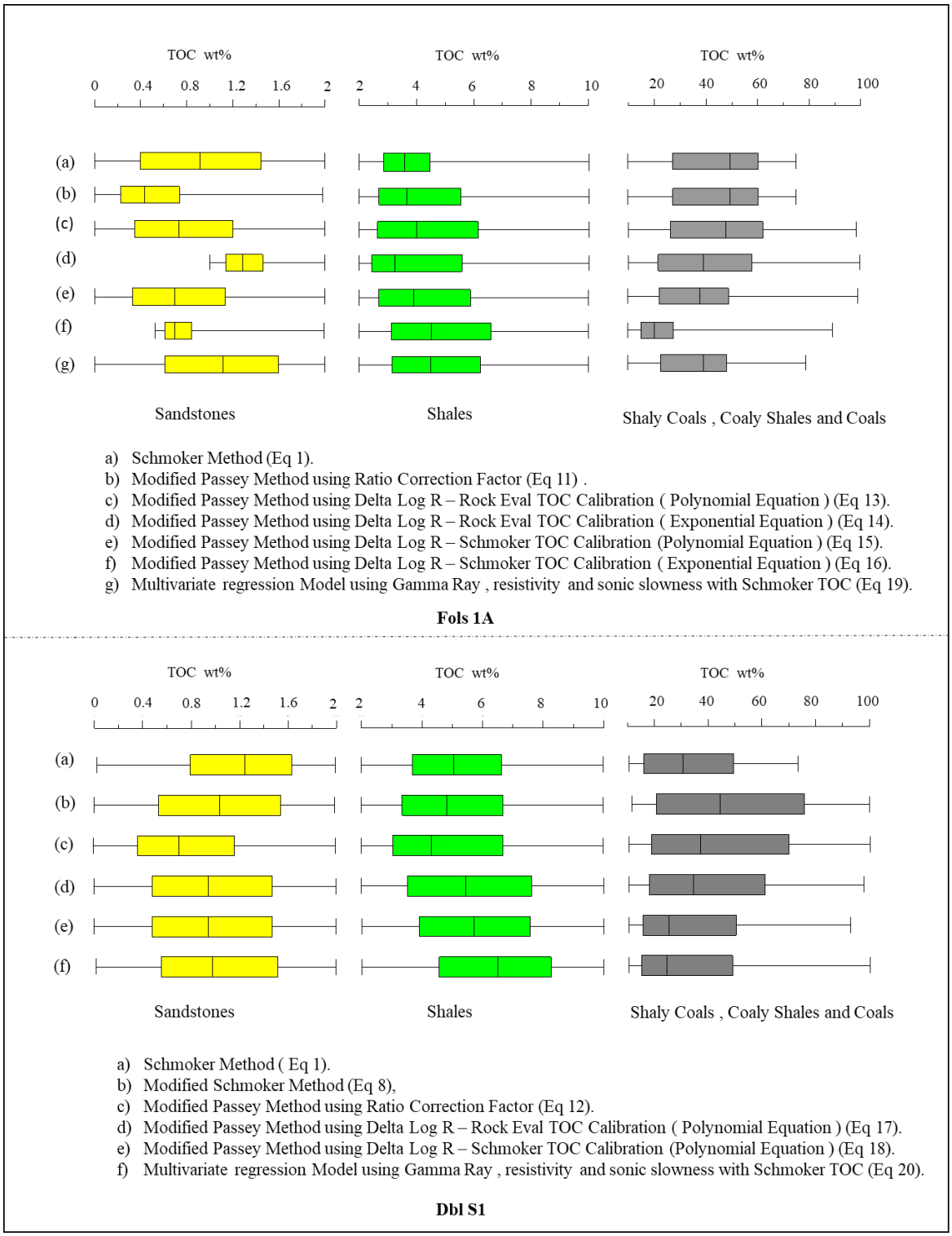


Figure III.2.8: Assessment of total organic carbon (TOC in wt%) in Fols 1A and Dbl S1 wells using different calculation methods based on well log data as box plot analysis.

III.2.4.3.2"Δ. log R separation" and TOC calibration

In the method proposed by Passey et al. (1990), the relationship between TOC values and the separation Δ log R is given by equation (III.2.6), which requires the consideration of LOM (Level of Organic Maturity, a factor proportional to vitrinite reflectance) (Hood et al., 1975).

The results for our sample sets (LOM=10.12 -10.65; %Ro = 0.84 to 0.96 and TOC as determined by Rock-Eval) are consistent with Δ log R method for facies with TOC lower than 10 wt%. However, for TOC greater than 10 wt%, the data points fall outside the range, indicating that equation (III.2.6) may not be appropriate for coaly facies (Figure III.2.9). These findings have important implications for the interpretation of well-log data, as they suggest that the linear LOM trends proposed by Passey et al. (1990) may not apply for coaly facies. Therefore, alternative equations may be proposed for TOC determination in coal-rich deposits. Two approaches are used to calibrate TOC values over a large range: i) Rock-Eval TOC (using the depth average where the sample was taken) and ii) TOC calculated using the method by Schmoker (1979, 1981) as validated previously vs Δ log R.

In Figure III.2.10 (well Fols 1A), two correlation equations may be derived from Rock-Eval TOC vs Δ log R, a polynomial (equation (III.2.13)) (red solid line) and an exponential (equation (III.2.14) (red dashed line)). When considering TOC calculated after Schmoker (1979, 1981) and Δ log R, a polynomial (equation (III.2.15)) (blue solid line) and an exponential (equation (III.2.16)) (blue dashed line) are derived.

$$TOC = 22.117 * \Delta \log R^2 + 6.997 * \Delta \log R \quad \text{(III.2.13)}$$

$$TOC = e^{2.6136 * \Delta \log R} \quad \text{(III.2.14)}$$

$$TOC = 16.262 * \Delta \log R^2 + 6.5631 * \Delta \log R \quad \text{(III.2.15)}$$

$$TOC = e^{2.4374 * \Delta \log R} \quad \text{(III.2.16)}$$

In Figure III.2.11 (well Dbl S1), a correlation between Rock-Eval TOC and Δ log R results in a polynomial (equation (III.2.17) (red solid line). Correlation between Schmoker TOC and Δ log R leads to a polynomial (equation (III.2.18) (blue solid line).

$$TOC = -8.5903 * \Delta \log R^2 + 64.702 * \Delta \log R - 12.655 \quad \text{(III.2.17)}$$

$$\mathrm{TOC} = -3.2901 * \Delta \log \mathrm{R}^2 + 45.123 * \Delta \log \mathrm{R} - 2.4875 \quad \text{(III.2.18)}$$

III.2.4.4 TOC calculation using Multivariate regression

As the density log is not always available for all the wells of our basin, it is interesting to further explore the relationship between calculated TOC using Schmoker (1979, 1981) and various well logs. Therefore, we conducted multivariate regression analyses using gamma ray (GR), sonic (Δt), and resistivity (R) logs in regard to TOC as determined by the Schmoker method validated by TOC Rock-Eval. Based on a total of 8785 measurements for Fols 1A and 6381 measurements for Dbl S1, the multivariable regression analysis led to the following equations:

$$\text{Fols 1a: } \mathrm{TOC} = 0.73 * \Delta \mathrm{t} - 0.065 * GR + 0.02 * R - 46.29 \quad \text{(III.2.19)}$$

$$\text{Dbl S1: } \mathrm{TOC} = 0.82 * \Delta \mathrm{t} - 0.066 * GR + 0.02 * R - 64.15 \quad \text{(III.2.20)}$$

With determination coefficient R2 of 0.82 and 0.73 respectively. This indicates a strong relationship between TOC and the geophysical variables (gamma ray, sonic, and resistivity logs) for both wells (Figure III.2.5 track 7 and Figure III.2.6 track 5).

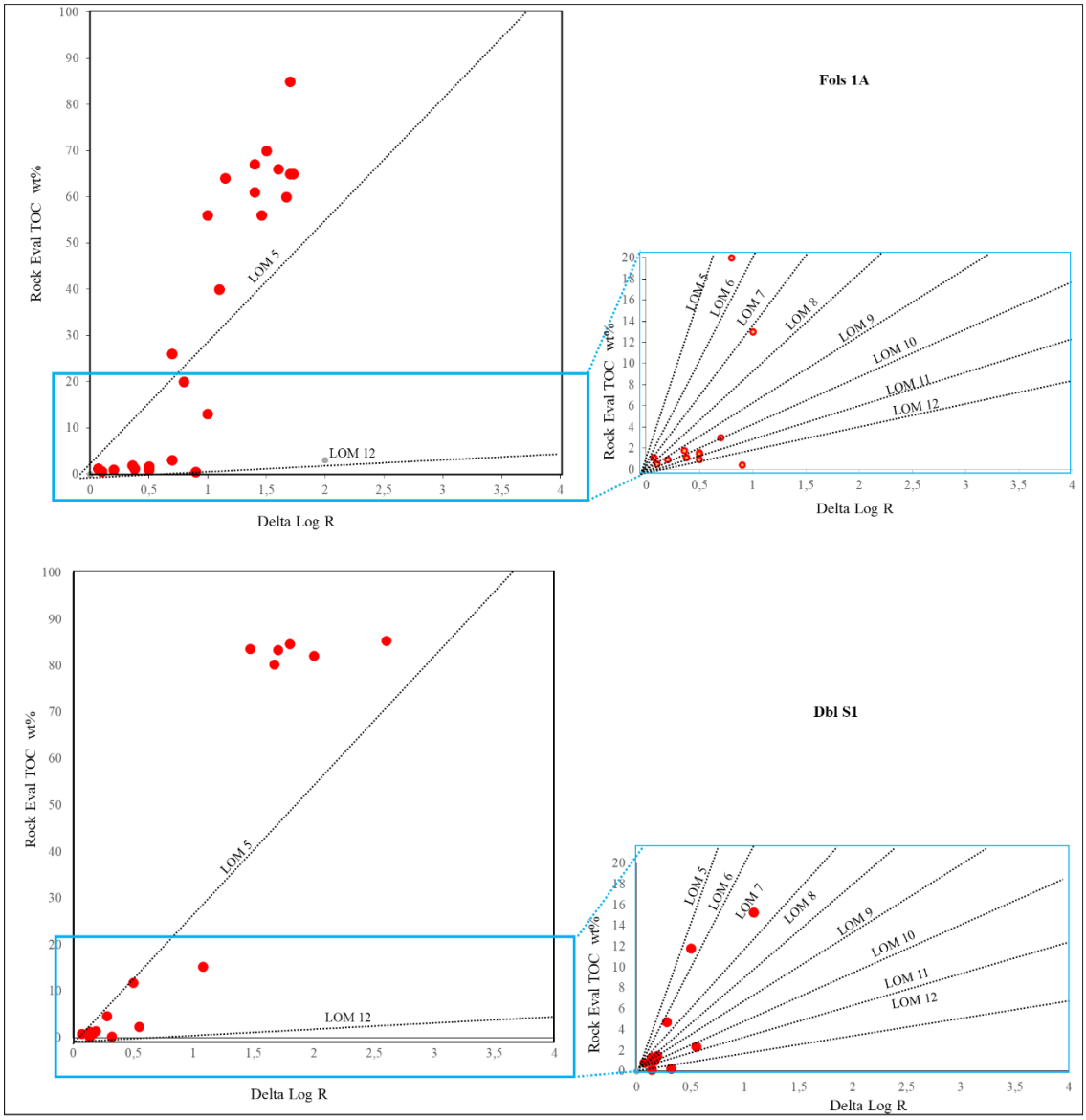


Figure III.2.9: Examining the Relationship between TOC (wt%) values and Delta Log R using the diagram of [Passey et al. (1990)] for Fols1A and Dbl S1 wells.

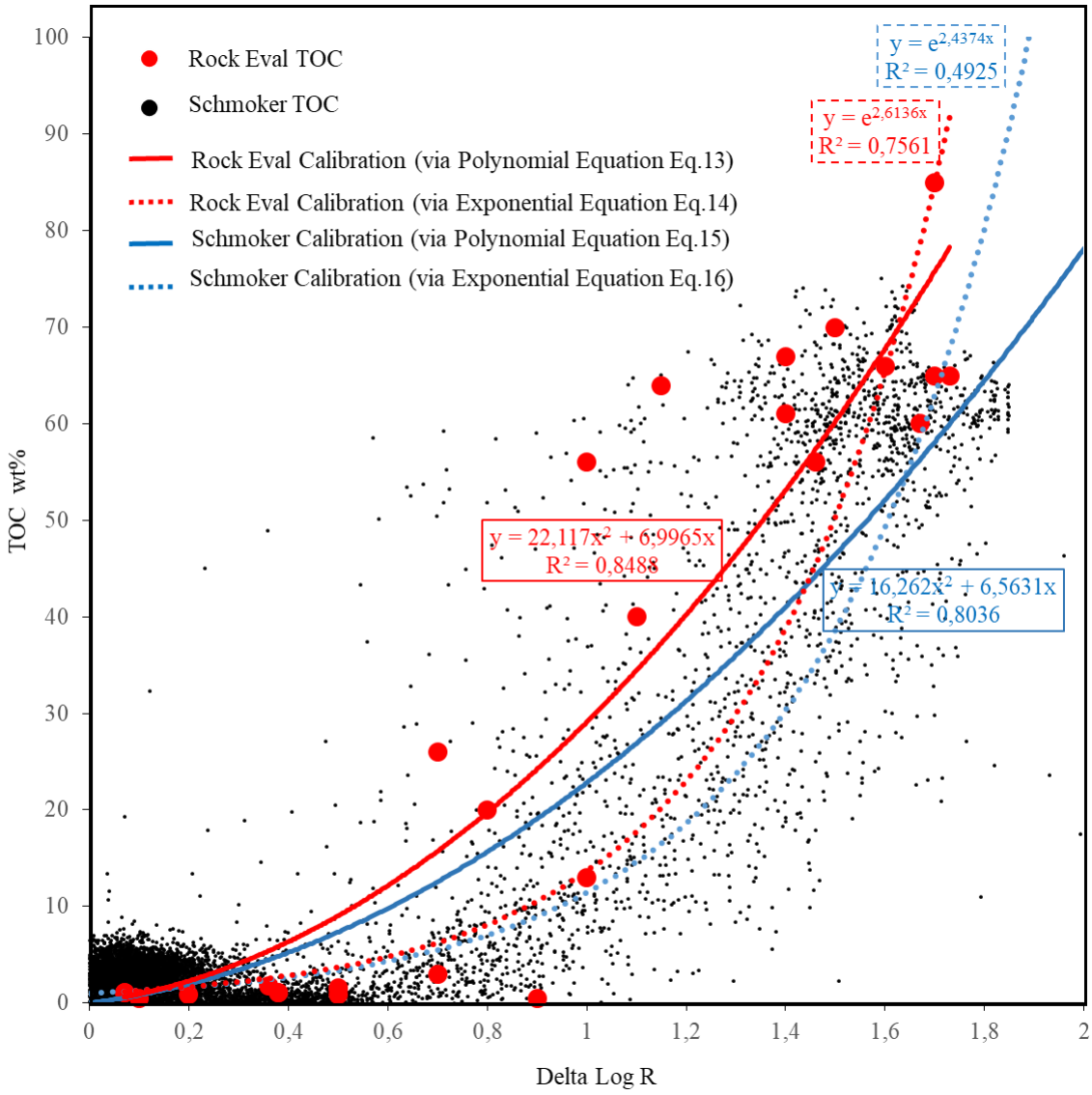


Figure III.2.10: Correlation equations between Rock-Eval measurements (red dots) and calculated using Schmoker (1979, 1981) (black dots) TOC (wt%) versus delta log R (Passey et al., 1990) for Fols 1A well using different calibration equations.

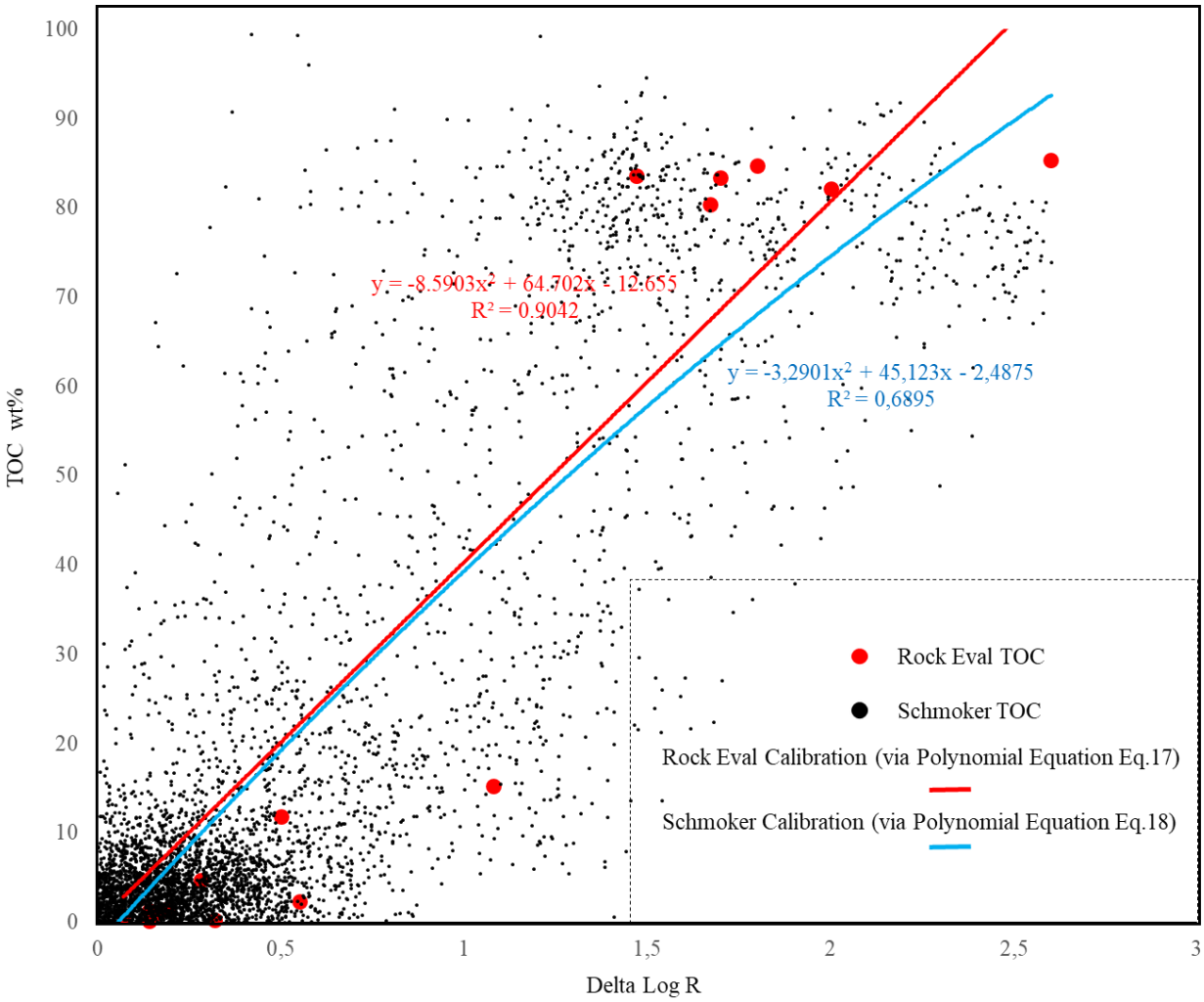


Figure III.2.11: Correlation equations between Rock-Eval measurements (red dots) and calculated using Schmoker (1979, 1981) (black dots) TOC (wt%) versus Delta log R (Passey et al., 1990) for DBL S1 well using different calibration equations.

III.2.5 Discussion

The application of the Schmoker method on our well-log data leds to TOC values that are consistent with those obtained from Rock-Eval measurements on rock samples. The Schmoker equation for TOC calculations considers the contribution of kerogen, pyrite, interstitial porosity, and rock matrix as variables. Schmoker (1979, 1981) demonstrated a proportional relationship between the abundance of kerogen and pyrite and integrated this into his equation. Yet, his study was based on claystone deposited in the marine environment. It is well known that in the anoxic sulfate-rich marine waters, organic matter is substrate to the growth of sulfate-reducing bacteria communities which generate reduced sulfur. In the presence of detrital minerals, reduced iron is combined with sulfur to produce iron sulfide, hence the relationship observed by Schmoker (1979, 1981). In our case, sediments were deposited in a fluvial-

lacustrine system without connection to the marine environment (Donsimoni, 1981; Izart et al., 2005; Fleck et al., 2001) and therefore poor in sulfate. As a consequence, the kerogen present is lean in pyrite.

As considered bySchmoker (1979, 1981), porosity may be considered as constant for a given facies (marine claystone in his study cases) and thus may not influence TOC calculation. In our case, regarding the diversity of facies from coal to conglomerate, the influence of porosity changes may be questioned. Conglomerate aside, our facies present porosities up to 5% for coaly facies and values lower than 10% for sandstones, siltstones, and claystones. Calculations applied to our most porous facies (tight sandstones) led to lean to no TOC contents, consistent with Rock-Eval measurements. This might indicate that bulk density may not be highly influenced by porosity. In this case, porosity changes between our facies may be considered negligible. It may also be noted that all rock facies contain the same type of mineralogy (only grain size classes change) (Hering et al., 1976; Fleck, 2001), with densities ranging from 2.57 g/cm^3 for sandstones to 2.7 g/cm^3 for claystone. Well-log density of our coal varies between 1.1 g/cm^3 and 1.8 g/cm^3. The density contrast between kerogen and sandstones as well as siltstones may thus be considered as similar. In regards to the above-mentioned considerations, the changes in the bulk density well-log signal may then be essentially a function of kerogen content. This might explain why the Schmoker method may be efficient in the calculation of the TOC in our study case.

The presence of pyrite significantly impacts well-log responses, particularly in terms of density and electrical resistivity, thereby influencing interpretations and calculations based on these parameters, such as the determination of Total Organic Carbon (TOC) using methods like the Schmoker or Delta Log R techniques. Studies by Clavier et al. (1976), Kennedy (2004), and Jiang et al. (2018) have extensively documented these effects.

Pyrite is distinct from other components of organic-rich rocks due to its very low resistivity and high density. In claystone layers deposited in marine environments, the presence of pyrite can affect log signals and, consequently, TOC calculations. To address this, new methods have been developed to correct for pyrite influence in clay-rich samples. Jiang et al. (2018) incorporated pyrite volume considerations into his updated equation based on density to improve accuracy.

In our study, the pyrite content is very low, with an average of 0.50% in clays and siltstones, 0.80% in carbonaceous clays, approximately 1% in clayey coals, and nearly 0% in coals. This

low pyrite content is due to the fluvial-lacustrine depositional environment, which is isolated from marine settings and thus poor in sulfate. Consequently, the kerogen present is low in pyrite as explained above. This suggests that the Schmoker method is well adapted and needs some adjustment of the coefficients A and B to provide accurate values for TOC Rock-Eval measurements (Section III.2.4.1).

However, Section III.2.4.2 demonstrates that the Delta Log R method results in a tenfold underestimation of TOC compared to Rock-Eval measurements on our samples. Kennedy (2004) noted that pyrite effects on resistivity tools are significant: at concentrations above a few percent, pyrite can reduce formation resistivity. Sondergeld et al. (2010) explain that pyrite in organic-rich intervals can substantially affect TOC evaluation due to its conductive nature, which reduces rock resistivity and decreases Δ log R. Sondergeld et al. (2010) applied a correction factor of 4 to their TOC calculations for marine shales.

In our samples, the maximum pyrite content reaches 1% (Figure III.2.12), which might partially account for the underestimation of TOC but does not fully explain the tenfold discrepancy observed. This suggests that other factors, such as water saturation, may also perturb resistivity signals, as discussed in the following sections.

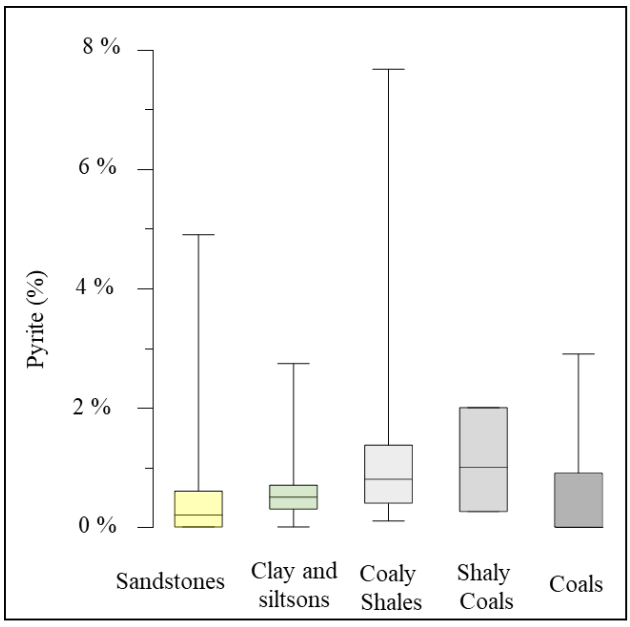


Figure III.2.12: Percentage of pyrite in different lithologies of Fols 1A and Dbl S1 wells. Data obtained from XRD (Supplementary Data - Appendices 5, 6, 7 and 8) and petrographic analyses.

Passey et al. (1990) suggest that the presence of coal intervals induces a significant resistivity deflection in comparison to adjacent intervals such as sandstones, siltstones, and shales. Indeed,

Telford et al. (1990) for instance measured high resistivity values ranging from 0.6x105 to 1x105 Ohm.m on dry bituminous coal samples. This may account for Δ log R values in accordance with high TOC of coaly intervals. However, the resistivity increase observed in our well-logs is not as strong as expected.

Figure III.2.13 recalls the data presented in Figure III.2.9 with the addition of TOC vs Δ log R data obtained for sub-bituminous and bituminous coal from the literature. The dark shaded area is relative to dry coal samples for which Δ log R values are calculated using equation (III.2.3) with sonic slowness of 150 µs/ft (maximum observed in our well-log data for coal layers), resistivity values for dry coal (McCabe and Tholey.,1945; Telford et al., 1990), (Table III.2.3) versus TOC data chosen from literature for pure coals of various rank (Mastalerz et al., 2011) (Table III.2.3). These values once positioned in Figure III.2.13 suggest the true relationship that Δ log R and TOC should have for dry coal layers. The blue shaded area is relative to wet coal samples for which Δ log R values are similarly calculated, but using resistivity for wet coal from literature (Table III.2.3). These values illustrate the Δ log R and TOC for wet coal seams. It is noteworthy that these results do align with the TOC vs Δ log R relationship of our wells and sample sets. This implies that the water saturation of our coal-rich layers significantly influences the calculations. Indeed, the presence of moisture decreases resistivity (McCabe and Tholey., 1945; Keskinsezer et al., 2019) and hence the TOC vs Δ log R relationship presents a greater slope than for dry coal. This slope approaches that observed for TOC values obtained by Rock-Eval measurements, completed by TOC values calculated using the method by Schmoker (1979, 1981). This suggests that the Δ log R values calculated from our well log data is strongly underestimated because it is influenced by the presence of formation water in coal. Indeed, in Fols 1A and Dbl S1 wells, resistivity values for coal beds are only 300 to 400 Ohm.m while a dense fracture network is observed (Privalov et al., 2022).

Rank	Resistivity (ohm.m)		Delta Log R		Passey TOC (wt%)		Expected TOC (wt%)
	Dry	Wet [1]	Dry	Wet [1]	Dry	Wet [1]	
Sub-bituminous B Coal	3.10^6	5100	6	3.23	19.32	10.40	80
High volatile C bituminous Coal (1)	3.10^6	2740	6	2.96	19.32	9.53	80
High volatile C bituminous Coal (2)	3.10^6	4150	6	3.14	19.32	10.11	80
High volatile B bituminous Coal	3.10^6	ND	6	ND	19.32	ND	86
High volatile A bituminous Coal	3.10^6	1480	6	2.69	19.32	8.67	86
Medium volatile bituminous Coal	3.10^6	220	6	1.87	19.32	6	90
Bituminous Coal (Max)	10^5	ND	4.52	ND	14.56	ND	89
Bituminous Coal (Min)	6.10^4	ND	4.30	ND	13.85	ND	89

Table III.2.3: Table of resistivity data as a function of coal rank and TOC values for different coal types: Resistivity data as a function of coal rank and TOC values for different coal types. The resistivity values for bituminous coal (Max and Min) (Telford et al., 1990), while the resistivity values for sub-bituminous coal B and medium- and high-volatile bituminous coal (C, B and A) were derived from the reference data study of McCabe and Tholey. (1945) .TOC values for each coal type were based on the Passey equation and Rock Eval TOC values as reported by Mastalerz et al. (2011) ([1]The wet coal samples were impregnated in water for 24 hours before being subjected to resistivity and TOC tests).

.

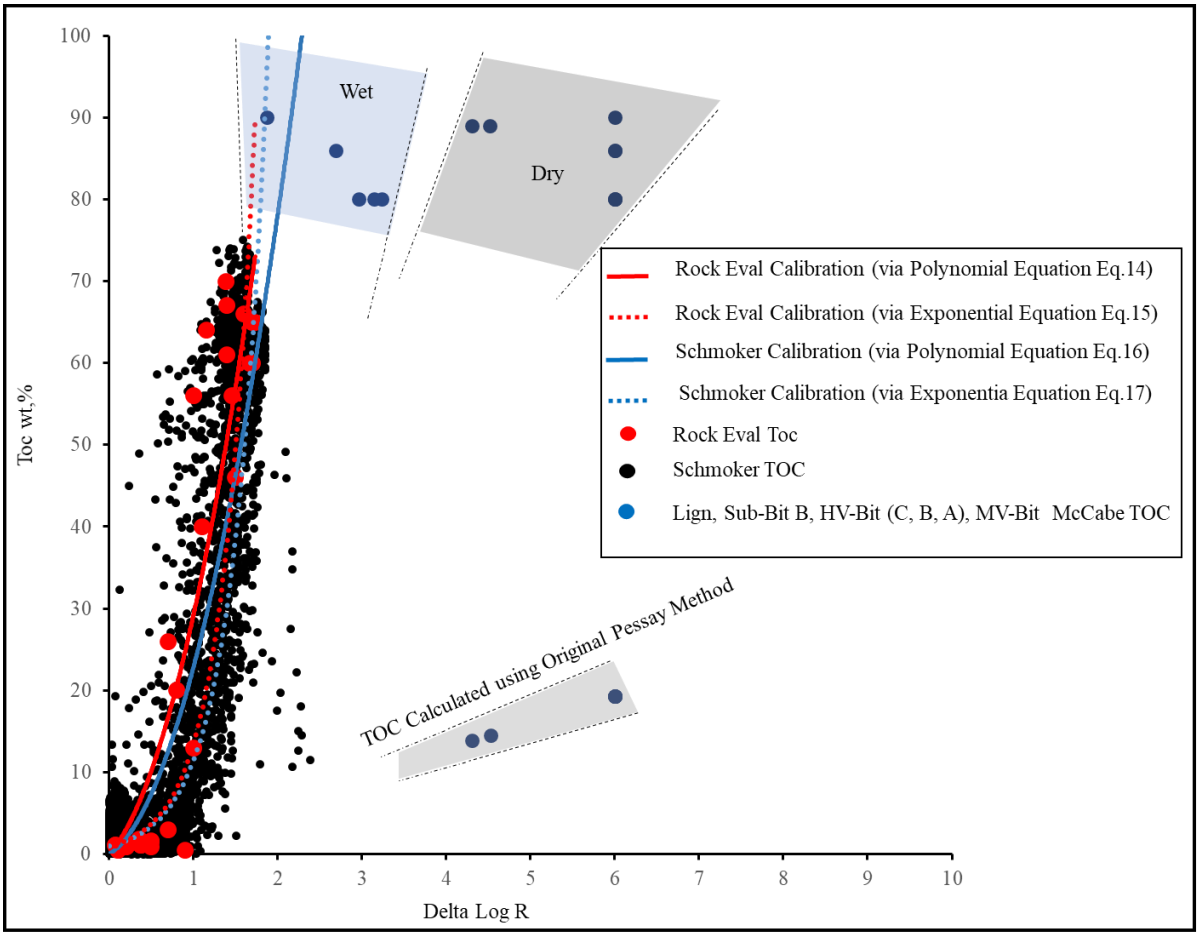


Figure III.2.13: easured Rock Eval and calculated Schmoker TOC (wt%) values plotted against Delta log R for the Fols 1a well.

In Figure III.2.13, the light gray shaded area represents TOC values calculated for dry (dark shaded area) and wet coal (blue shaded area) using equation (III.2.6) with a LOM of 10.6. In all cases, TOC is strongly underestimated for TOC>10% (as observed for Figure III.2.5, track 1, 14, and 15). This suggests that the calibration equation proposed by Passey et al. (1990) for marine shale to determine TOC from resistivity data may not be valid for coal layers. As suggested earlier, our calibration equations (Figures III.2.10 and III.2.11) may be used for other wells to overcome this problem (Appendix 9). However, a more thorough approach would be to measure laboratory resistivity and sonic slowness of dry and water-saturated samples for major coaly lithologies and establish the relationship to Rock-Eval TOC to propose a new Δ log R vs. TOC equation.

Tables III.2.4 and III.2.5 present the determination coefficient and the Root Mean Squared Error (RMSE) calculated for each of the proposed TOC calculation equations using well log data of

Fols 1A and Dbl S1 wells. Figures III.2.5 and III.2.6 present in yellow the difference between TOC calculated using the different equations proposed and values obtained by using the equation based on Schmoker (1979, 1981). RMSE allows to rank of the proposed equations to calculate TOC as follows: i) modified Δ log R (equations (III.2.11) and (III.2.12)) ii) multivariate analysis (equations (III.2.19) and (III.2.20) iii) TOC Δ log R equation calibrated with Rock-Eval and calculated TOC using the method by Schmoker (1979, 1981). (Equations (III.2.13) to (III.2.18)).

Methods Calibration		**Eq**	**Modified TOC Equations**	**R^2**	**RMSE (wt. %)**
TOC Schmoker/Passey Ratio		11	$TOC = \Delta\text{Log R} * 10^{(2.297-0.1688*LOM)} * (19.15 * ln(\Delta T) - 83.48)$	**0.82**	**8.52**
(Delta Log R separation) **Vs** (TOC Calibration)	With Rock Eval TOC	13	$TOC = 22.117 * \Delta\text{Log R}^2 + 6.997 * \Delta\text{Log R}$	0.79	9.12
		14	$TOC = e^{2.6136*\Delta\text{Log R}}$	0.58	14
	With Schmoker TOC	15	$TOC = 16.262 * \Delta\text{Log R}^2 + 6.5631 * \Delta\text{Log R}$	0.79	7.04
		16	$TOC = e^{2.4374*\Delta\text{Log R}}$	0.62	5.23
Multivariate regression		19	$TOC = 0.73 * \Delta t - 0.065 * GammaRay + 0.02 * R - 46.29$	**0.82**	**6.6**

Table III.2.4: Equations used in the calculation of TOC for the Fols 1A well. R2: determination coefficient for each method. RMSE: Root Mean Squared Error for each method compared to TOC values obtained using the method by Schmoker (1979, 1981).

Methods Calibration		**Eq**	**Modified TOC Equations**	**R^2**	**RMSE (wt. %)**
TOC Schmoker/Passey Ratio		12	$TOC = \Delta\text{Log R} * 10^{(2.297-0.1688*LOM)} * (23.298 * ln(\Delta T) - 103.48)$	**0.76**	**12**
(Delta Log R separation) **Vs** (TOC Calibration)	With Rock Eval TOC	17	$TOC = -8.5903 * \Delta\text{Log R}^2 + 64.702 * \Delta\text{Log R} - 12.655$	0.62	17
	With Schmoker TOC	18	$TOC = -3.2901 * \Delta\text{Log R}^2 + 45.123 * \Delta\text{Log R} - 2.4875$	0.64	12
Multivariate regression		20	$TOC = 0.82 * \Delta t - 0.066 * GammaRay + 0.02 * R - 64.15$	**0.73**	**9.7**

Table III.2.5: Equations used in the calculation of TOC for the Dbl S1. R2: determination coefficient for each method. RMSE, Root Mean Squared Error for each method compared to TOC values obtained using the method by Schmoker (1979, 1981).

III.2.6 Conclusion

For wells within the Lorraine Carboniferous Basin, the Schmoker method is recommended when density logs are available. In cases where only resistivity and sonic data are accessible, the modified Delta Log R equations should be utilized because the original Delta Log R method tends to significantly underestimate values for coaly lithologies. Alternatively, if gamma ray, sonic, and resistivity data are present, the derived equations from the multivariate regression

analysis are recommended. This combination of available well-log data in this basin, along with additional Rock-Eval and petrophysical data from core samples, can serve as the basis for future studies employing machine learning applications that reduce error and increase the precision of TOC predictions in the Lorraine Basin and could be further tested on coal-rich basins.

For the two reference wells investigated (Fols 1A and Dbl S1), continuous TOC determination profiles were obtained despite the complexity of facies changes. The average TOC content in the shales of Fols 1a Well ranges from 3.5 wt % to 4.5 wt %, while for coal layers, it ranges from 40 wt % to 50 wt %, as determined using the Schmoker, modified delta Log R, and multivariate regression methods. In Dbl S1 Well, the average TOC content in shales varies from 4.8 wt % to 6.2 wt %, while in coal layers, it ranges from 30 wt % to 45 wt %. Accordingly, quality assessment based on TOC (Kenomore et al., 2017), source rocks range from very good for shaly lithologies to excellent for coal layers.

Acknowledgments: The authors would like to thank Prof. Khalid Essa for scientific discussions, Dr. Alizerrouki ahmed for helping in improve the manuscript, Schlumberger (SLB) for providing the Techlog© academic license. This research was funded through REssources GAzières de LORaine (REGALOR) - Research program cofounded Etat (Pacte Lorraine), Région (Région Grand Est), and Europe (Fond Européen de DEveloppement Régional - FEDER); 2018-2023.

III.3 Caractérisation pétrographique et géochimique des charbons et roches-mères du bassin carbonifère lorrain

Sommaire

III.3 Caractérisation pétrographique et géochimique des charbons et roches-mères du bassin carbonifère lorrain---------- 189

III.3.1 Introduction 191

III.3.2 Sampling 193

III.3.3 Analytical procedures 193

III.3.4 Results 194

III.3.4.1 Vitrinite reflectance (VR) 194

III.3.4.2 Maceral analysis 195

III.3.4.3 Elemental composition of coals samples: 202

III.3.4.4 Rock Eval Analyses 206

III.3.5 Discussion 209

III.3.5.1 Thermal maturity of samples. 209

III.3.5.2 Organic Matter Preservation and kerogen type 214

III.3.5.3 Source-rock characteristics and Hydrocarbon potential of coal and coaly facies. 219

III.3.6 Conclusion 226

III.3 Caractérisation pétrographique et géochimique des charbons et roches-mères du bassin carbonifère lorrain

Ce troisième chapitre des résultats est rédigé sous la forme d'un article scientifique, en anglais, en vue de sa soumission à une revue scientifique.

Résumé en français

Le bassin houiller lorrain, localisé dans le nord-est de la France, s'étend sur une superficie d'environ 150 km², avec des dimensions de 300 km de longueur, 70 km de largeur, et une puissance variant de 5 à 8 km. Ce bassin, formé lors de l'orogenèse hercynienne, est caractérisé par des dépôts fluvio-lacustres. Ces dépôts reflètent les variations d'énergie de transport au sein de l'environnement sédimentaire, présentant des faciès lithologiques allant des conglomérats, grès, et siltites aux argilites et aux charbons. Cette étude intègre les caractéristiques géochimiques et pétrographiques de la matière organique du bassin houiller lorrain. Elle vise spécifiquement à évaluer la nature, la qualité et le potentiel pétrolier des roches-mères charbonneuses. L'évaluation de ces roches-mères est essentielle pour comprendre le potentiel pétrolier du bassin et les mécanismes de génération d'hydrocarbures en fonction des environnements de dépôt.

L'analyse pétrographique révèle que la vitrinite est le macéral prédominant, représentant en moyenne 76,80% de la composition, suivie de la liptinite (12,11%) et de l'inertinite (11,09%). La composition macérale et divers indices pétrographiques permettent d'affiner l'interprétation des paléoenvironnements, et les types de végétation lors de la formation du charbon. Les analyses géochimiques montrent que l'Indice d'Hydrogène (IH) varie de 150 à 450 mgHC/gCOT pour les échantillons de charbon, de 350 à 100 mgHC/gCOT pour les argilites charbonneuses et IH < 150 mgHC/gCOT pour les argilites, indiquant un potentiel pétrolier bon à excellent. Le potentiel pétrolier (S2) des roches-mères charbonneuses et argilites charbonneuses oscille entre 14,29 et 202,29 mgHC/gRoche, tandis que dans les argilites, il varie de 0,13 à 17,35 mgHC/gRoche.

Organopetrographical and Geochemical Characteristics of Coal Deposits in the Lorraine Coal Basin.

Salim Allouti[1], Raymond Michels[1], Alain Izart[1], Fabrice Malartre[1], Metzger Mombo Mouketo[1], Fady Nassif[2].

1 CNRS, GeoRessources Lab, Université de Lorraine, BP 70239, F-54506 Vandoeuvre-lès-Nancy, France
2 La Française de l'Energie, Avenue du District, 57380 Pontpierre

Abstract

The Lorraine Coal Basin, situated in North-East France, covers an area of approximately 150 km2, with dimensions spanning 300 km in length, 70 km in width, and a thickness ranging from 5 to 8 km. Originating during the Hercynian orogeny, the basin exhibits fluvio-lacustrine deposits. These deposits mirror variations in transport energy within the depositional environment, presenting lithological facies ranging from conglomerate, sandstone to siltstone, claystone and coal. This study integrates the chemical and petrographic characteristics of organic rocks in the Lorraine Coal Basin. Specifically, it aims to evaluation the nature quality and hydrocarbon of coaly source-rocks. Assessing these source rocks is crucial for understanding the petroleum potential of the basin and the mechanisms of hydrocarbon generation based on depositional environments. Vitrinite is the predominant maceral in samples, averaging 76.80%, accompanied by liptinite at 12.11%, and inertinite at 11.09%. Maceral composition and various indices (TPI, GI, GWI, VI) enhance the interpretation of depositional environments, fluctuations in groundwater levels, and vegetation types during coal formation. Ternary facies plots illustrate the transition from anoxic and wet conditions to dry anoxic conditions. Hydrogen index (HI) values range from 150 to 450 mgHCs/gTOC for coal samples, 350 to 100 mgHC/TOC for coaly shales, and IH < 150 mgHC/gTOC for shales, suggesting good to excellent petroleum potential. Petroleum potential (S2) in coal and coaly shale source rocks ranges from 14.29 to 202.29 mgHC/gRock , while in shale source rocks, it varies from 0.13 to 17.35 mgHC/gRock. The majority of Upper Carboniferous samples have not fully initiated the conversion of organic matter, indicating potential for marginal wet gas generation, as inferred through Tmax and reflectance vitrinite analysis.

Keywords : Lorraine Coal Basin, Organic geochemistry, Petrography, Source rocks, Hydrocarbon potential, Coal bed Methane, Rock Eval, Maceral analysis, Elemental analysis, Kerogen type.

III.3.1 Introduction

In order to combine data and interpretations from both organic geochemistry and sedimentology, it is important to conduct a comprehensive study of the various facies present within the Carboniferous basin. This encompasses a diverse range of lithologies, including coals, claystones, siltstones, and sandstones. The primary goal is to investigate the nature, content and hydrocarbon potential of the organic matter present in the core samples. The results presented include data from the drilling campaigns of the "Française de l'Energy", the historical coal exploitation company "Houillères du bassin de Lorraine" and a selection of wells located eat to west including those from the Conoco exploration campaign from the 1990's (Figure III.3.1). Additionally, we have incorporated reference published data from the Gironville borehole (Alpern, 1966, 1969; Durand et al., 1986).

Source rocks, characterized as fine-grained rocks with high organic content, possess the capacity to generate petroleum through the chemical breakdown of kerogen under specific time-temperature-pressure conditions (Hunt, 1979; Tissot et Welt, 1984; McCarthy et al., 2011). Therefore, the assessment of source rocks is crucial for understanding the petroleum potential of a basin and the hydrocarbon generation processes (Peters and Cassa, 1994).

Quantitative analysis of source rocks and qualitative assessment of organic matter preservation require a combination of geochemical and petrographical parameters along with sedimentological interpretation. Organic petrography, elemental composition, Rock-Eval are therefore combined to depositional environment assessment, based on rock petrography, genetic stratigraphy and deposition environments interpretation.

For the Lorraine Coal Basin, a variety of source rocks, such as coal, representing the dominant facies in swampy deposition environments, emerges from the transformation of accumulations of plant debris under conditions of shallow water depth, defined as a combustible rock (Stach et al., 1982), There are also shales and coal-bearing shales, which serve as source rocks rich in organic matter, transitioning from swampy to floodplain deposition environments (Donsimoni, 1981; Heckel, 1988; Schäfer, 1989; Palain, 1995; Fleck, 2001; Izart et al., 2005; Schäfer, 2011). The coal seam at Steinbesch in the Westphalian D, as described by Heckel (1988), consists of over 80% vitrinite and approximately 10% each of exinite and inertinite. In the three boreholes (Saulcy, Lorette, Chaumont) of the Lorraine Basin, Fleck (2001) identified major maceral families: vitrinite, exinite and inertinite, derived mainly from upper plant debris. Fleck et al.

(2001) proposed to link organic molecular geochemistry to depositional environments (from channel deposits to flood plains and swamp) as to provide some insight on preservation conditions of organic matter. Despite challenges due to limited outcrops, organic geochemical data integration enhances biomarker source information for improved paleoenvironmental assessments.

Thermal maturity is another important factor in source-rock evaluation as it is a control of hydrocarbons formation. It is evaluated using vitrinite reflectance and Rock-Eval Tmax. In the Lorraine Basin, vitrinite reflectance values vary from 0.6% to 4.43% for depths from 1700 m to 5640 m (Alpern, 1966; Durand et al., 1986; Courel et Liu, 1991; Littke et al., 2000; Fleck, 2001 Izart et al., 2016) (Section II.2.2.3)

The classification of coal is not based on a single type of data, but relies on multiple factors. The initial classification was conducted through proximate analysis on Upper Carboniferous formations, where data revealed high volatile matter in coal source rocks (39-42% vol.). Marcel (1953) and Donsimoni (1981) classified them as Bituminous High Volatiles (73% vol.) in the Upper Carboniferous formation exploited by HBL. ConocoPhillips analyses in Saulcy and Lorette boreholes showed similar volatile matter variations, averaging 20%, indicating Sub-bituminous to Bituminous High Volatiles characteristics for Westphalian B and C coals (Section II.2.2.2.1).

These results were further confirmed by petrographic analyses performed by Fleck (2001) based on data from three boreholes (Saulcy, Lorette, and Chaumont), which highlighted the presence of three major maceral families, namely exinite, vitrinite, and inertinite. These macerals are mainly derived from upper plant debris. On the coal seam of Steinbesch of Westphalian D, Heckel (1988) described a maceral composition with vitrinite content exceeding 80%, with exinite and inertinite contents of approximately 10%. It is noteworthy that these observations are particularly valid for layers exploited in the mining sector or boreholes not exceeding 2000 m (Section II.2.2.2.2).

In this study, new sampling acquisitions from boreholes in Saulcy, Lorette, Chaumont and especially in the east of the basin (fols1a dbls1) are used for new Rock Eval studies coupled with elemental analysis and organic petrography. We also use the Gironville borehole, which was examined and documented by Durand et al. (1986), to evaluate the maturity and the petroleum potential of source rock.

III.3.2 Sampling

Core samples (Figure III.3.1) Fols 1A and Dbl S1 wells which penetrate Westphalian C and D (provided by La Française de l'Énergie) were analyzed for their sedimentological features. Subsequently, sampling was based on the four main architectural elements: fluvial channels, crevasse splays, floodplains, and coal layers. A total of 186 core samples were collected: 44 samples from Fols 1A, Dbl S1 and Coume wells to the east of the basin, 2 samples from Saar outcrop, 103 samples from Saulcy, Lorette drillings spanning further west of the basin, 37 samples from the Gironville well, which crosses the entire sedimentary succession of the Carboniferous, and were acquired from the Boussens core library. The locations and stratigraphic levels of the samples are illustrated in Figure III.3.1.

III.3.3 Analytical procedures

The samples were crushed and then sieved using a mesh size of <180 µm. The samples were subjected to Rock-Eval analysis at the Institut des Sciences de la Terre d'Orléans (ISTO) (France), following the analytical procedure described by Le Meur et al. (2021). The Rock-Eval method is an open-system pyrolysis technique (Espitalié et al., 1985). This approach provides crucial information regarding the potential, maturity, and type of kerogen in source rocks (Espitalié et al., 1985; Lafargue et al., 1998; Le Meur et al., 2021). The key parameters employed in this study: TOC (wt %), S2, (mgHC/gTOC), Tmax (°C); HI (mgHC/g TOC), OI (mgO_2/g TOC) (Section II.3.2.1.1).

A selection of samples was submitted to elemental analyses to determine their total CHONS contents at the Laboratory of Physical Measurements (Montpellier, France) (Section II.3.2.1.2). Organic petrography was conducted at Egs-ploration Organic Petrology (Rueterswil, Switzerland). For maceral analysis, samples were resin embedded and polished. The method involved visual identification and enumeration of maceral types in coal samples, with results reported as volume percentages. Optical microscopy, equipped with a Swift Point-Counter connected to the microscope stage, was utilized for maceral analysis. Standardization was achieved through a hybrid approach combining ASTM D2799-12 and ISO 7404 part 4 protocols. As for reflectance percentage (%Ro) analyses, they were conducted following standards published by the International Organization for Standardization (ISO 7404-2, ISO 7404-3 and ISO 7404-5) (Section II.3.2.1.3).

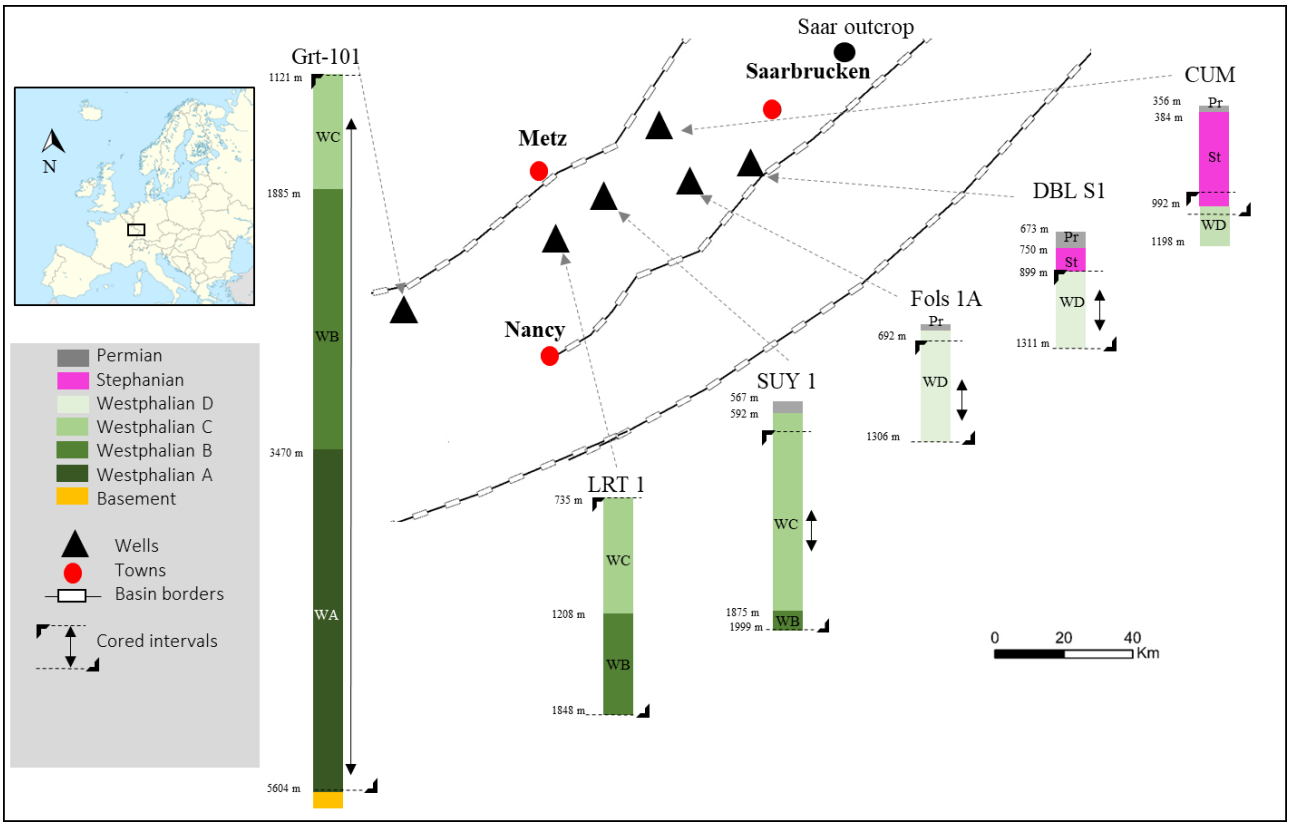


Figure III.3.1: Location of Drilling and Outcrop Sites Used for Sample Collection in This Study.

III.3.4 Results

III.3.4.1 Vitrinite reflectance (VR)

The findings of this study regarding vitrinite reflectance measurements are presented in (Appendix 10) organized according to various boreholes (Fols 1a, dbls 1, Saulcy, Lorette, and Gironville), and are visually represented in Figure III.3.2, encompassing the entire sedimentary succession of the Carboniferous coal basin from the Stephanian to the Westphalian A.

These measurements of vitrinite reflectance serve as the initial step in identifying the coal ranks under investigation in this research (Figure III.3.2). The lowest recorded vitrinite reflectance value originates from samples collected at La Houve in coal bed 1220 (Albert seam at the top of the Westphalian D), registering at 0.5%, indicative of a subbituminous A rank. The majority of samples from the Stephanian and Westphalian D and C intervals demonstrate high volatile bituminous B and A ranks, exhibiting vitrinite reflectance values ranging between 0.65 and 1%. Consequently, nearly all samples retrieved from formations intersected by boreholes in the eastern sector of the Lorraine basin are characterized as high volatile bituminous. The two available samples from the Westphalian B strata in Gironville yield values of 1.61 and 2.25,

signaling low volatile bituminous and semi-anthracite ranks, respectively. In contrast, Westphalian A samples exhibit vitrinite reflectance values spanning from 2 to 6, indicating a prevalence of petroleum ranks commencing from semi-anthracite and progressing towards anthracite.

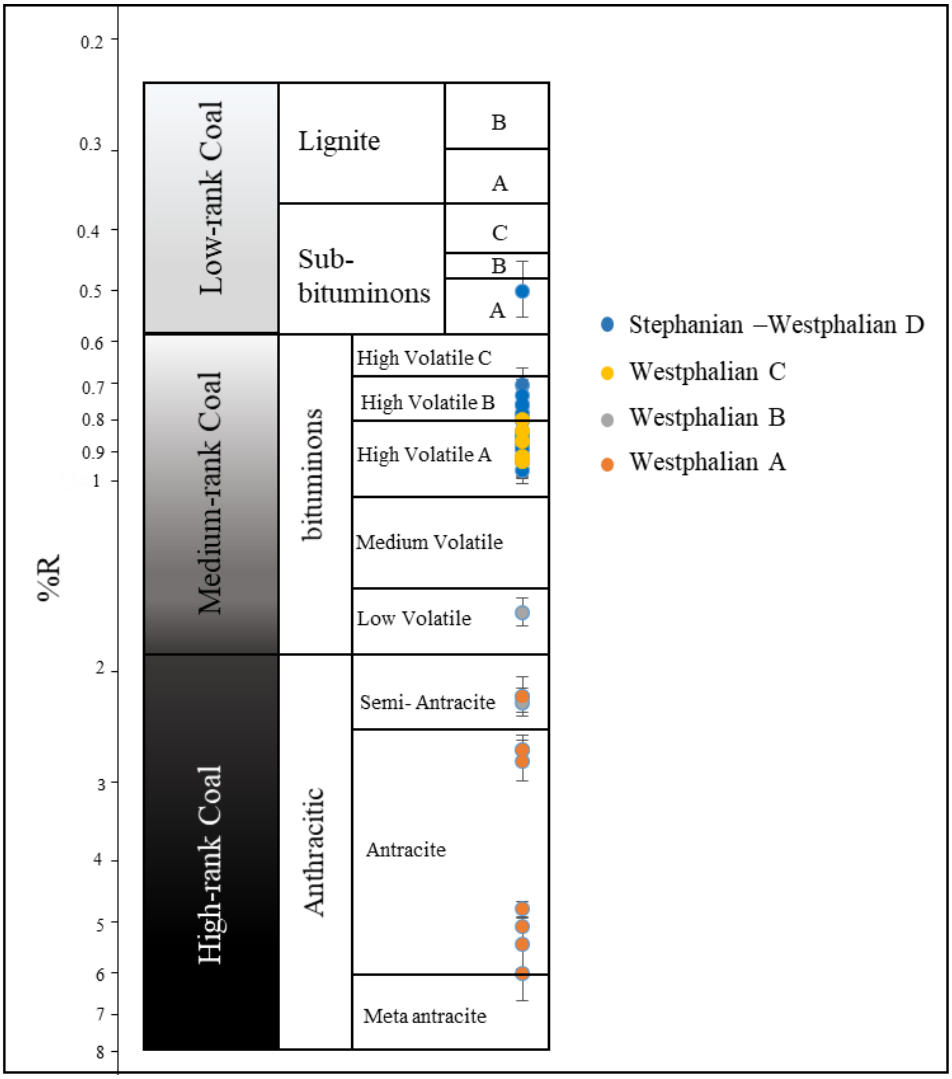


Figure III.3.2: Classification of coals of Lorraine Coal Basin based on the U.S. rank system, using vitrinite reflectance (ASTM).

III.3.4.2 Maceral analysis

The detailed analysis of coal maceral composition was conducted as to define organic facies and microlithology. ICCP (1998, 2001) guidelines were used for the description of vitrinite and inertinite and Diessel (1992) for the classification of Liptinite. The corresponding values for various macerals and mineral constituents are provided in Table III.3.1. The ternary diagram displaying the percentage distribution from this study is presented in Figure III.3.3. Maceral

groups % as a function of depth are presented in Figure III.3.4 and microphotographs of major macerals encountered are illustrated in Figure III.3.5.

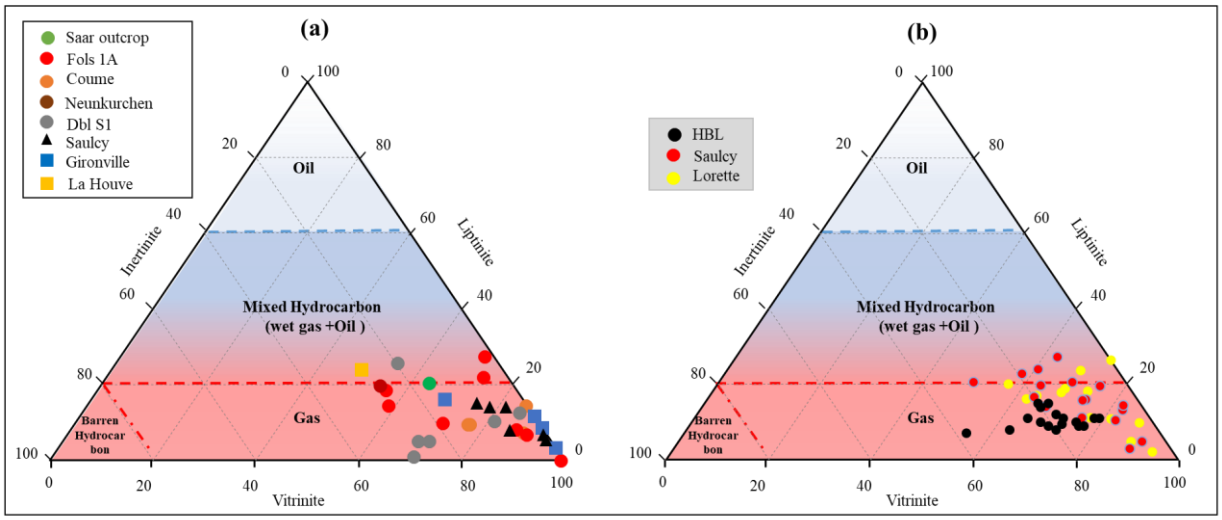


Figure III.3.3: Ternary diagrams depicting the distribution of vitrinite, inertinite, and liptinite. a) The samples analyzed in this study b) the samples from the Conocco-Philips dataset under the authorization of La FDE.

Vitrinite is predominantly represented in most samples by Collotelinite, contributing to 58% of the total coal, and Vitrodetrinite with an average of 8.63% on a whole-rock basis. Additionally, the presence of Desmocolenite and Collodetrinite is indicated, with averages of 2.57% and 0.48%, respectively and there is no gelovitrinite (Appendix 11). Vitrinite content is high (80-97%) in the coal samples from the Westphalian C (Neunkirchen Fm) in Gironville and Saulcy boreholes except in the Petite Rosselle Fm in Diebling borehole (69%), variable (56-81%) in Merlebach and Laudrefang Fms from the lower part of Westphalian D in Folschviller and Diebling boreholes, high (76-85%) in Steinbesh Fm in the upper part of Westphalian D and in Göttelborn Fm from the Early Stephanian in Coume borehole.

Inertinite is predominantly comprised of Fusinite, Semifusinite, Macrinite, and Micrinite, with respective averages of 6.31%, 3.17%, 0.67%, and 0.30% on a whole-rock basis, as outlined in (Appendix 12). Inertinite is low (0-15%) in the Westphalian C from Gironville and Saulcy except in Diebling (26%), variable in the lower part of the Westphalian D (3-27%) from Folschviller, Diebling and La Houve boreholes and the upper part of Westphalian D and Early Stephalian (0-14%) from the Coume borehole.

Liptinite is primarily represented by Sporinite, Alginite, followed by Cutinite, Lipotodetrinite, Resinite, and Exsudatinite, with respective averages of 5.29%, 2.44%, 1.87%, 1.11%, 0.45%, and 0.03%, as presented in (Appendix 13). Liptinite is low (3-16%) in the Westphalian C from Gironville, Saulcy and Diebling boreholes, variable (10-24%) in the lower part of the Westphalian D from the Folschviller, Diebling and La Houve boreholes and the upper part of the Westphalian D and Early Stephanian from the Coume borehole. Sporinite is the more abundant and then alginite in some samples (Figure III.3.5 H, I and J) from Saar outcrops (Neunkirchen and Sulzbach, Westphalian C and D), Folschviller and Diebling boreholes (Westphalian D). Mineral matter ranges between 0 and 5% in coal and 10 to 40% in silty and shaly coal (Table III.3.1). Microlithotypes (Table III.3.1) include twenty duroclarite (bright and dull coal bands), four clarite (banded bright coal), three carbargilite (shaly coal), two vitrinertinite (vitrite+inertinite), one vitrite and one clarodurite (banded dull coal). Bright coals contain vitrinite and dull coals inertinite and liptinite.

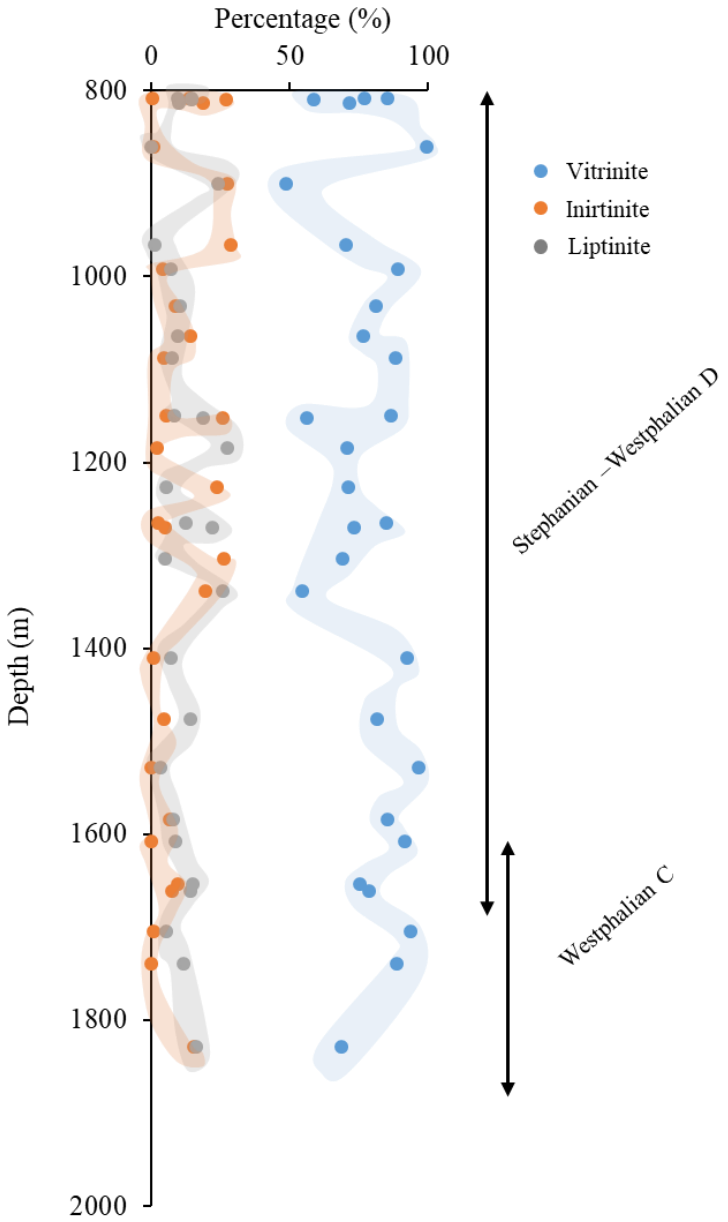


Figure III.3.4: Percentage results of maceral groups as a function of depth for coal samples from the Lorraine Basin, obtained from boreholes in the Westphalian C, D and Stephanian formation.

Location	ID	Depth (m)	Formation	Lithology	Vol % on a Total Basis				Microlithotype	Total(Without Mineral matter)	Vol % On mineral matter free basis		
					Vitrinite	Inertinite	Liptinite	Mineral			Vitrinite	Inertinite	Liptinite
FOLS1A	Fra-001	807-811	Westphalian D	Coal	57.67	26.51	14.25	1.57	Duroclarite	98.43	58.59	26.93	14.48
FOLS1A	Sal-020	813.2	Westphalian D	Coal	71.36	18.76	9.88	0.00	Duroclarite	100.00	71.36	18.76	9.88
FOLS1A	Sal-017	860.5	Westphalian D	Coal	97.18	0.78	0.00	2.05	Vitrite	97.95	99.21	0.79	0.00
FOLS1A	Sal-013	991.5	Westphalian D	Coal	87.68	3.95	6.73	1.65	Clarite	98.35	89.15	4.01	6.84
FOLS1A	Sal-116	1150	Westphalian D	Shaly Coal	83.84	5.15	7.93	3.08	Duroclarite	96.92	86.51	5.31	8.18
FOLS1A	Fra-002	1150-1154	Westphalian D	Coal	56.00	25.51	18.49	0.00	Duroclarite	100.00	56.00	25.51	18.49
FOLS1A	Sal-009	1184	Westphalian D	Shale	62.00	1.60	23.97	12.43	Duroclarite	87.57	70.80	1.82	27.37
FOLS1A	Sal-005	1270.5	Westphalian D	Silty Coal	63.40	4.09	19.03	13.48	Duroclarite	86.52	73.28	4.73	21.99
DBL S1	Sal-040	966.32	Westphalian D	Coal	69.64	28.59	1.04	0.73	Vitrinertite	99.27	70.15	28.80	1.05
DBL S1	Sal-038	1031.6	Westphalian D	Coal	81.14	8.51	10.35	0.00	Duroclarite	100.00	81.14	8.51	10.35
DBL S1	Sal-035	1227	Westphalian D	Coal	71.13	23.74	5.13	0.00	Duroclarite	100.00	71.13	23.74	5.13
DBL S1	Sal-032	1265.25	Westphalian C	Coal	85.01	2.46	12.54	0.00	Clarite	100.00	85.01	2.46	12.54
DBL S1	Sal-028	1303.53	Westphalian C	Coal	69.01	25.93	5.06	0.00	Vitrinertite	100.00	69.01	25.93	5.06
DBL S1	Sal-025	1338.1	Westphalian C	Coal	54.61	19.63	25.76	0.00	Duroclarite	100.00	54.61	19.63	25.76
Coume	Sal-100	807.85	Stephanian	Coal	73.45	13.03	9.17	4.35	Duroclarite	95.65	76.79	13.63	9.58
Coume	Sal-101	807.95	Stephanian	Coal	81.36	0.28	13.77	4.60	Clarite	95.40	85.28	0.29	14.43

Coume	Sal-102	1064	Westphalian D	Coal	65.86	12.14	8.20	13.80	Duroclarite	86.20	76.40	14.08	9.52
Coume	Sal-103	1087	Westphalian D	Coal	82.49	4.14	6.75	6.63	Clarite	93.37	88.34	4.43	7.23
Saulcy	Sal-075	1410	Westphalian C	Silty Coal	83.20	0.61	6.17	10.02	Duroclarite	89.98	92.46	0.68	6.86
Saulcy	Sal-070	1476	Westphalian C	Silty Coal	71.47	3.84	12.37	12.32	Duroclatite	87.68	81.51	4.38	14.11
Saulcy	Sal-065	1584	Westphalian C	Coal	81.19	6.38	7.55	4.88	Duroclarite	95.12	85.35	6.71	7.93
Saulcy	Sal-057	1653	Westphalian C	Coaly shale	64.14	8.11	12.82	14.94	Duroclarite	85.06	75.40	9.53	15.07
Saulcy	Sal-096	1661	Westphalian C	Coaly shale	73.63	7.04	13.17	6.16	Duroclarite	93.84	78.47	7.50	14.04
Saulcy	Sal-050	1704.9	Westphalian C	Shaly Coal	85.35	0.79	4.94	8.91	Duroclarite	91.09	93.70	0.87	5.43
Gionville 101	Sal-118	1528.6	Westphalian C	Shaly Coal	72.26	0.00	2.54	25.20	Carbargilite	74.80	96.60	0.00	3.40
Gionville 101	Sal-123	1607.7	Westphalian C	Shaly Coal	62.77	0.00	5.98	31.26	Carbargilite	68.74	91.30	0.00	8.70
Gionville 101	Sal-126	1739.2	Westphalian C	Shaly Coal	49.68	0.00	6.55	43.77	Carbargilite	56.23	88.36	0.00	11.64
Gionville 101	Sal-127	1828.6	Westphalian C	Coal	59.59	13.28	14.00	13.13	Duroclarite	86.87	68.60	15.29	16.11
la Houve Mine	Fra-003	900	Westphalian D	Coal	47.48	26.98	23.52	2.02	Clarodurite	97.98	48.46	27.54	24.01
Neunkirchen	Sal-108	Sarre Outcrop	Westphalian C	Coal	53.83	25.68	19.59	0.90	Duroclarite	99.10	54.32	25.91	19.77
BURBACH	Sal-104	Sarre Outcrop	Westphalian D	Coal	61.49	15.62	19.69	3.20	Duroclarite	96.80	63.52	16.14	20.34

Table III.3.1: Maceral content values determined by petrographical analysis of coal samples (vitrinite, liptinite, and inertinite groups in vol% on a total basis and on a mineral matter-free basis).

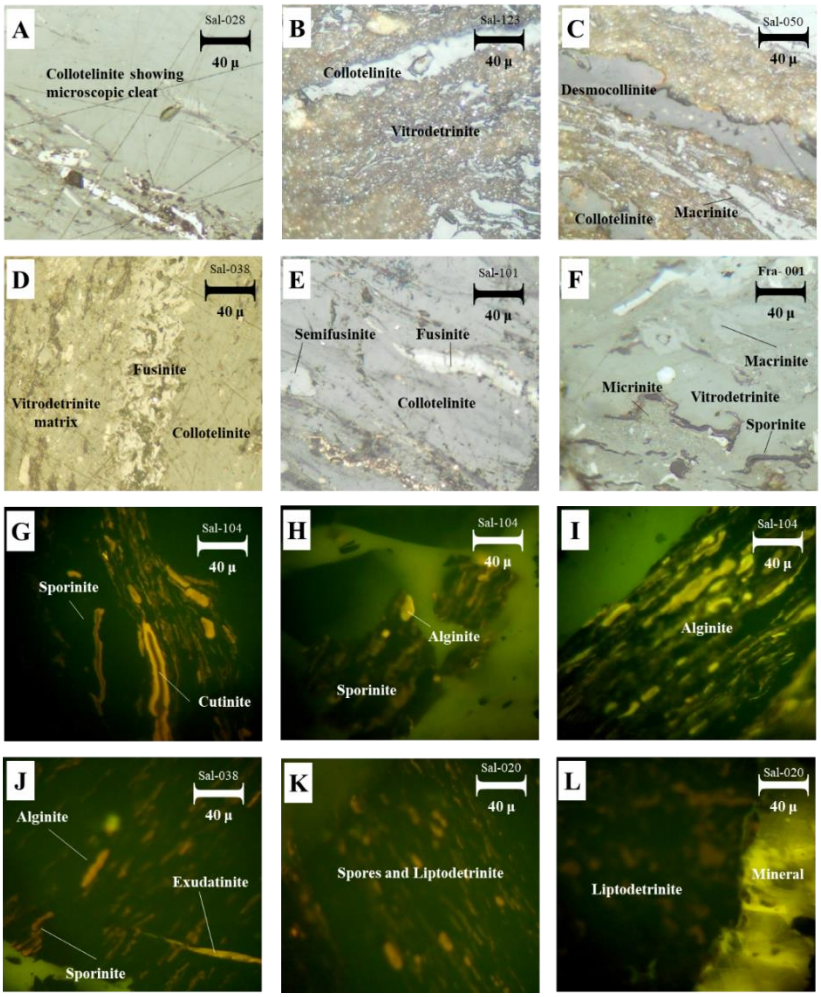


Figure III.3.5: Examples of observations on polished sections of whole rocks in reflected white light and blue light, illustrating maceral groups including vitrinite, liptinites, and inertinites (Egs-Ploration): in reflected white light Observations of :A. Coal sample (Diebling Well 1303.53 m), highlighting Collotelinite macerals from the Vitrinite group characterized by a Cleat System. B. Clayey coal (Gironville Well 1607.7 m), revealing Collotelinite and Vitrodetrinite macerals from the Vitrinite group. C. Shaly coal (Saulcy Well 1704.9 m), showing Desmocollinite and Collotelinite macerals from the Vitrinite group and Macrinite from the inertinite maceral group. D. Coal (Diebling Well 1031.6 m), highlighting Fusinite macerals from the Inertinite maceral group, and Vitrodetrinite and Collotelinite from the Vitrinite maceral group. E. Coal (Coume Well 807.95 m), highlighting Fusinite and Semifusinite macerals from the Inertinite maceral group, and Desmocollinite and Collotelinite from the Vitrinite maceral group. F. Coal (Folschviller Well 809 m), highlighting Macrinite and Micrinite macerals from the Inertinite maceral group, and Desmocollinite and Collotelinite from the Vitrinite maceral group. And blue light observations of G. coal (Outcrop in Saar), highlighting Sporinite and Cutinite macerals from the Liptinite maceral group. H. coal (Outcrop in Saar), highlighting Sporinite and Alginite macerals from the Liptinite maceral group. I. coal (Outcrop in Saar), highlighting Alginite macerals from the Liptinite maceral group. J. Coal (Diebling Well 1031.6 m), highlighting Sporinite, Exsudatinite, and Alginite macerals from the Liptinite maceral group. K. Coal (Folschviller Well 813.2 m), highlighting spores and Liptodetrinite from the Liptinite maceral group, and L. Coal (Folschviller Well 813.2 m), highlighting Liptodetrinite associated with minerals.

III.3.4.3 Elemental composition of coals samples:

The results of elemental analyses for selected coal samples from the Lorraine Basin are presented in Table III.3.2. The elemental compositions of coals are relatively homogeneous from one well to another (Table III.3.2). The percentages CHONS contents in coal are depicted in Figure III.3.6. The medians for CHONS across all data points are approximately 70 wt%, 4.9 wt%, 12 wt%, 2 wt%, and 1 wt%, respectively (Figure III.3.6). H/C and O/C atomic ratios are provided in Table III.3.2. About 50% of the H/C ratios fall within the range of 0.75 to 1, with a median of 0.8, while 50% of the O/C at. ratios vary between 0.35 and 0.5, with a median close to 0.37 (Figure III.3.7). The Van Krevelen diagram (H/C versus O/C) is presented in Figure III.3.8.

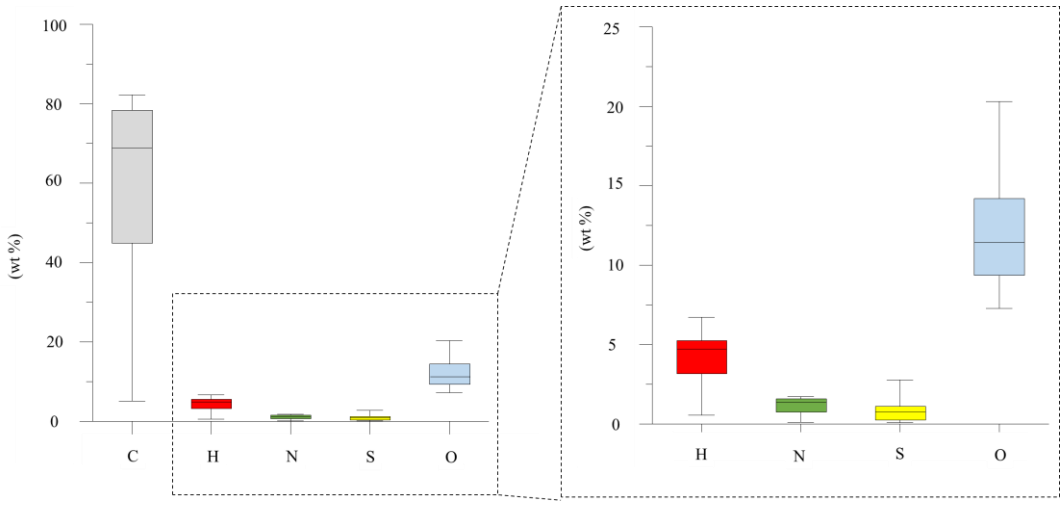


Figure III.3.6: Box plot illustrating the range of CHONS constituents in coal samples from the Lorraine basin.

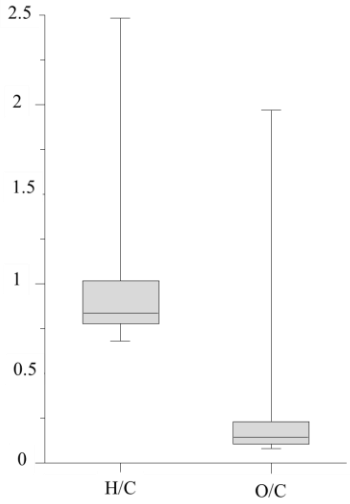


Figure III.3.7: Box plot illustrating the range of H/C and O/C ratios in coal samples from the Lorraine basin.

Location	ID	Depht (m)	Formation	Lithology	TOC [WT. wt. %]	C [%]	H [%]	O [%]	N [%]	S [%]	H/C	O/C
FOLS1A	Fra-001	807-811	Westphalian D	Coal	45.21	44.87	3.17	10.47	0.76	0.40	0.84	0.18
FOLS1A	Sal-20	813.20	Westphalian D	Coal	75.30	72.15	4.77	14.15	1.26	0.40	0.79	0.15
FOLS1A	Sal-17	860.50	Westphalian D	Coal	75.62	73.22	5.29	12.74	1.30	1.19	0.86	0.13
FOLS1A	Sal-13	991.50	Westphalian D	Coal	77.17	74.60	4.86	13.78	1.06	0.74	0.78	0.14
FOLS1A	Fra-002	1150-1154	Westphalian D	Coal	69.57	68.94	4.28	11.95	1.11	0.53	0.74	0.13
DBL S1	Sal-40	966.32	Westphalian D	Coal	83.39	79.91	4.56	11.43	1.42	0.66	0.68	0.11
DBL S1	Sal-38	1031.60	Westphalian D	Coal	82.14	78.24	4.96	10.92	1.62	0.84	0.76	0.10
DBL S1	Sal-35	1227.00	Westphalian D	Coal	84.66	80.95	4.98	9.38	1.55	0.87	0.73	0.09
DBL S1	Sal-32	1265.25	Westphalian C	Coal	83.64	79.89	5.02	9.44	1.36	0.73	0.75	0.09
DBL S1	Sal-28	1303.53	Westphalian C	Coal	85.41	82.17	5.36	8.76	1.58	0.56	0.78	0.08
DBL S1	Sal-25	1338.10	Westphalian C	Coal	80.35	80.14	5.25	9.09	1.49	0.83	0.78	0.09
Coume	Sal-102	1064.00	Westphalian D	Coal	60.02	59.74	3.92	15.33	1.04	1.02	0.78	0.19

Coume	Sal-103	1087.00	Westphalian D	Coal	64.36	63.51	4.32	14.79	1.02	1.21	0.81	0.17
Saulcy	Sal-105	664.20	Westphalian C	Coal	55.10	62.14	4.72	14.11	1.12	0.95	0.90	0.17
Saulcy	Sal-107	894.00	Westphalian C	Coal	67.00	62.17	4.16	16.81	1.19	1.05	0.80	0.20
Saulcy	Sal-82	1232.10	Westphalian C	Coal	54.22	61.03	4.76	10.19	1.17	1.23	0.93	0.13
Saulcy	Sal-76	1349.20	Westphalian C	Coal	79.44	76.25	5.58	11.39	1.50	0.71	0.87	0.11
Saulcy	Sal-65	1584.00	Westphalian C	Coal	49.01	77.89	5.25	9.48	1.51	1.40	0.80	0.09
La Houve Mine	Fra-003	900 m	Westphalian D	Coal	69.69	73.68	6.73	12.24	1.70	0.33	1.09	0.12
Neunkirchen	Sal-108	Sarre Outcrop	Westphalian C	Coal	79.46	78.84	5.58	11.66	1.73	0.29	0.84	0.11
BURBACH	Sal-104	Sarre Outcrop	Westphalian D	Coal	71.45	73.24	5.43	15.93	1.29	0.60	0.88	0.16

Table III.3.2: Results of elemental analysis showing the percentages of CHONS constituents in coal samples from the Lorraine Carboniferous Basin.

.

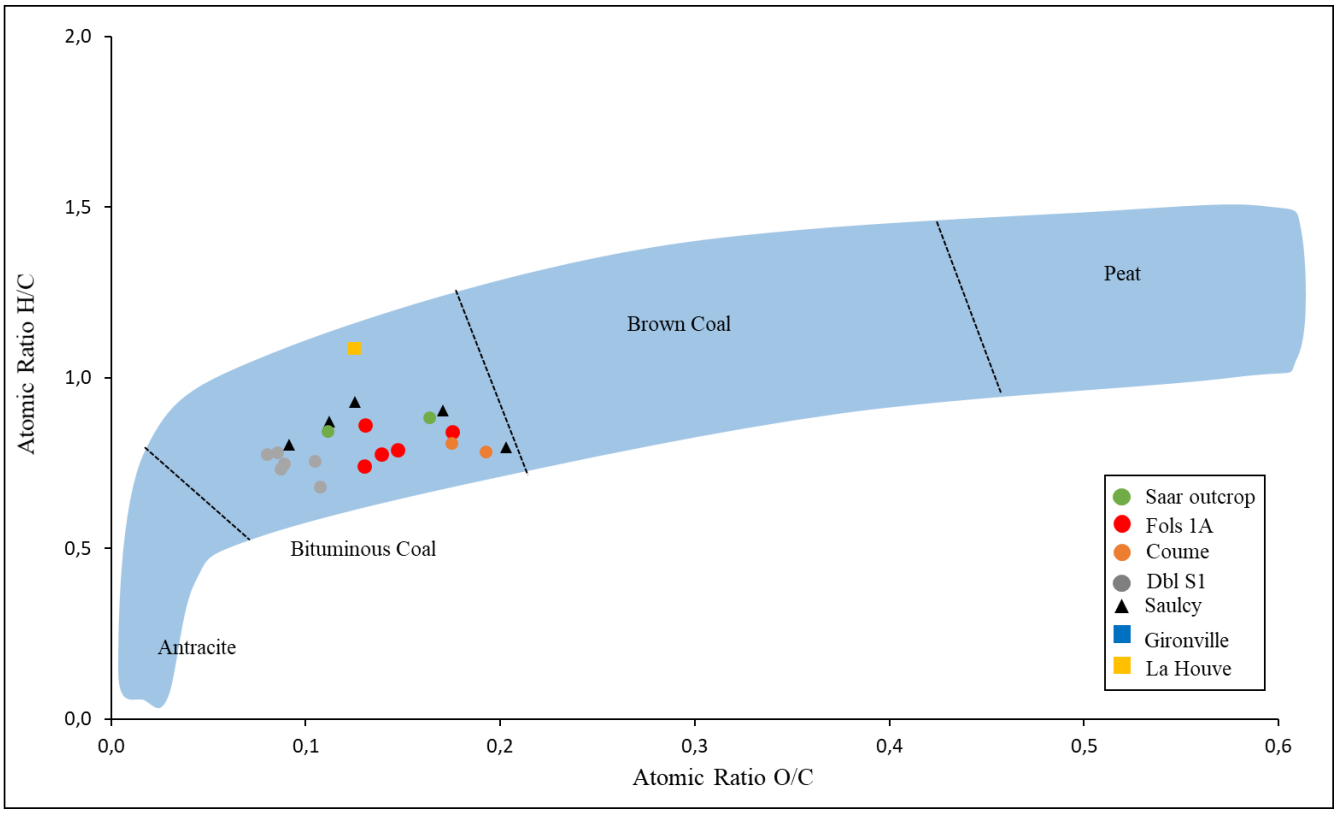


Figure III.3.8: H/C and O/C Atomic Ratios for the Lorraine Coal Basin plotted on Van Krevelen (1993) Diagram.

III.3.4.4 Rock Eval Analysis

Rock-Eval analysis results presented in (Supplementary Data - Appendix 14)were obtained on samples from Folschviller, Diebling, Coume, and Saulcy wells. The dataset complements the data set from Fleck et al. (2001), on boreholes Saulcy, Lorette, and Chaumont, and data from the report for EGL from Folschviller and Diebling and is compared to data published for Gironville by Durand et al. (1986). These results serve to determine the type of kerogen, assess the maturity level of organic matter, and evaluate petroleum potential, indicating the quantity of hydrocarbons that kerogen can release under burial-induced heating. Petroleum source rocks are identified by containing sufficient organic matter with an appropriate chemical composition for hydrocarbon generation and expulsion. A rock qualifies as a source rock if it initially possesses a Total Organic Carbon (%) content of at least ≈1.5% (Hunt, 1979) and an initial Hydrogen Index (HI) exceeding 200 (mgHC/gCOT) (Pepper and Corvi, 1995).

Based on the database of this organic petrography study on samples from Gironville and those obtained from vitrinite reflectance (%R) measurements published by Durand et al. (1986) in (Supplementary Data – Appendix 15), a conversion line of %R as a function of depth was

constructed to be applied to all basin samples, transforming all depths into %R (Figure III.3.9). This is crucial for comparing the petroleum potential of the entire basin in terms of thermal maturity represented by %R (Figure III.3.10).

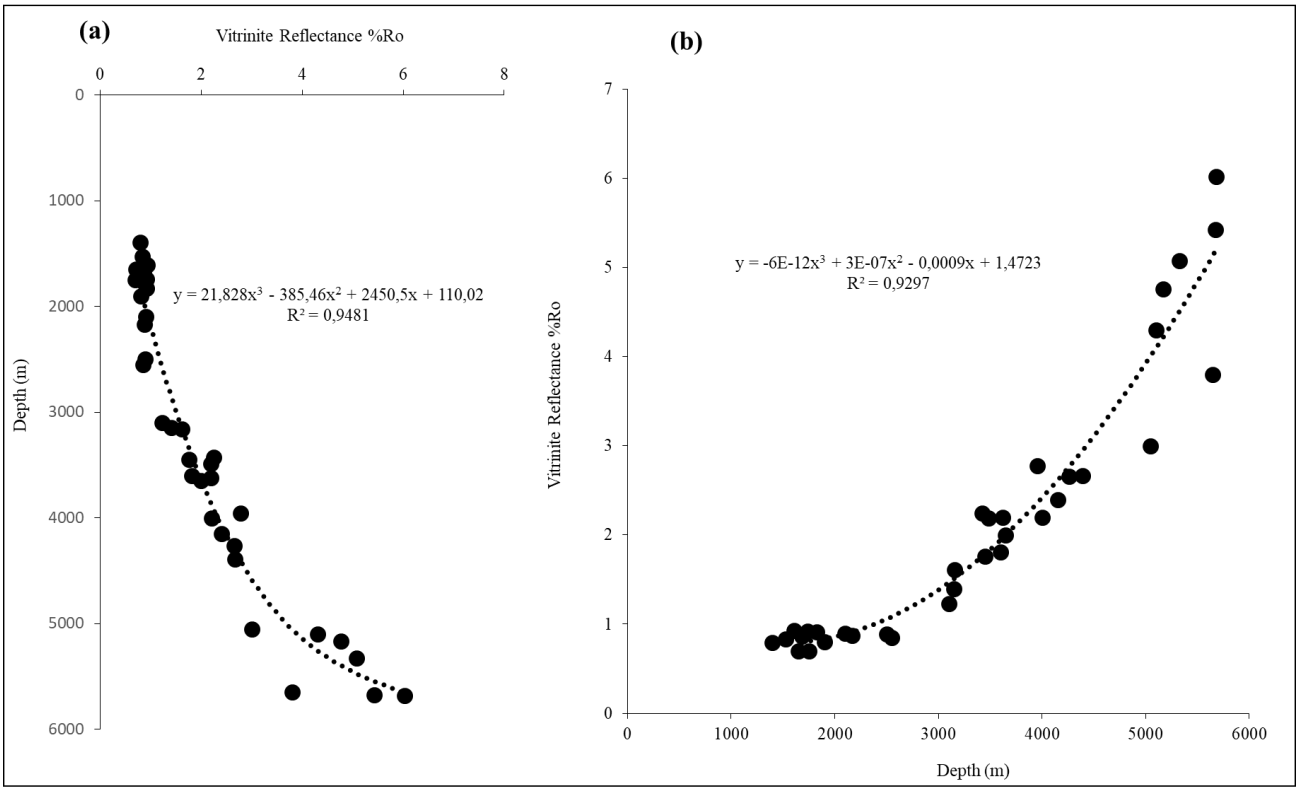


Figure III.3.9: Evolution of thermal maturity represented by vitrinite reflectance from Durand et al. (1986) and this study for both lithologies (coal and clay). (a) % variation with depth, (b) correlation line used for the conversion of depths into %R for use in ***Figure*** *III.3.10*

The Rock-Eval data from this study and those from Durand et al. (1986) for the same Gironville borehole are plotted on the same HI-%Ro diagram for comparison (Figure III.3.10). The data align with those of Durand et al. (1986), validating the consistency of our limited selection compared to the extensive sample set used in their publication. Figure III.3.10 illustrates that both sample groups demonstrate similar ranges of petroleum potential variation, indicated by Hydrogen Index (HI) values ranging from 5 to 350 mg HC/g TOC.

The Rock-Eval data from all samples in this study of the Lorraine Basin were utilized to discuss thermal maturity, source rock identification, organic matter preservation, and hydrocarbon generation. Rock-Eval HI versus OI data for all samples are depicted in the pseudo-Van Krevelen diagram in Figure III.3.11.

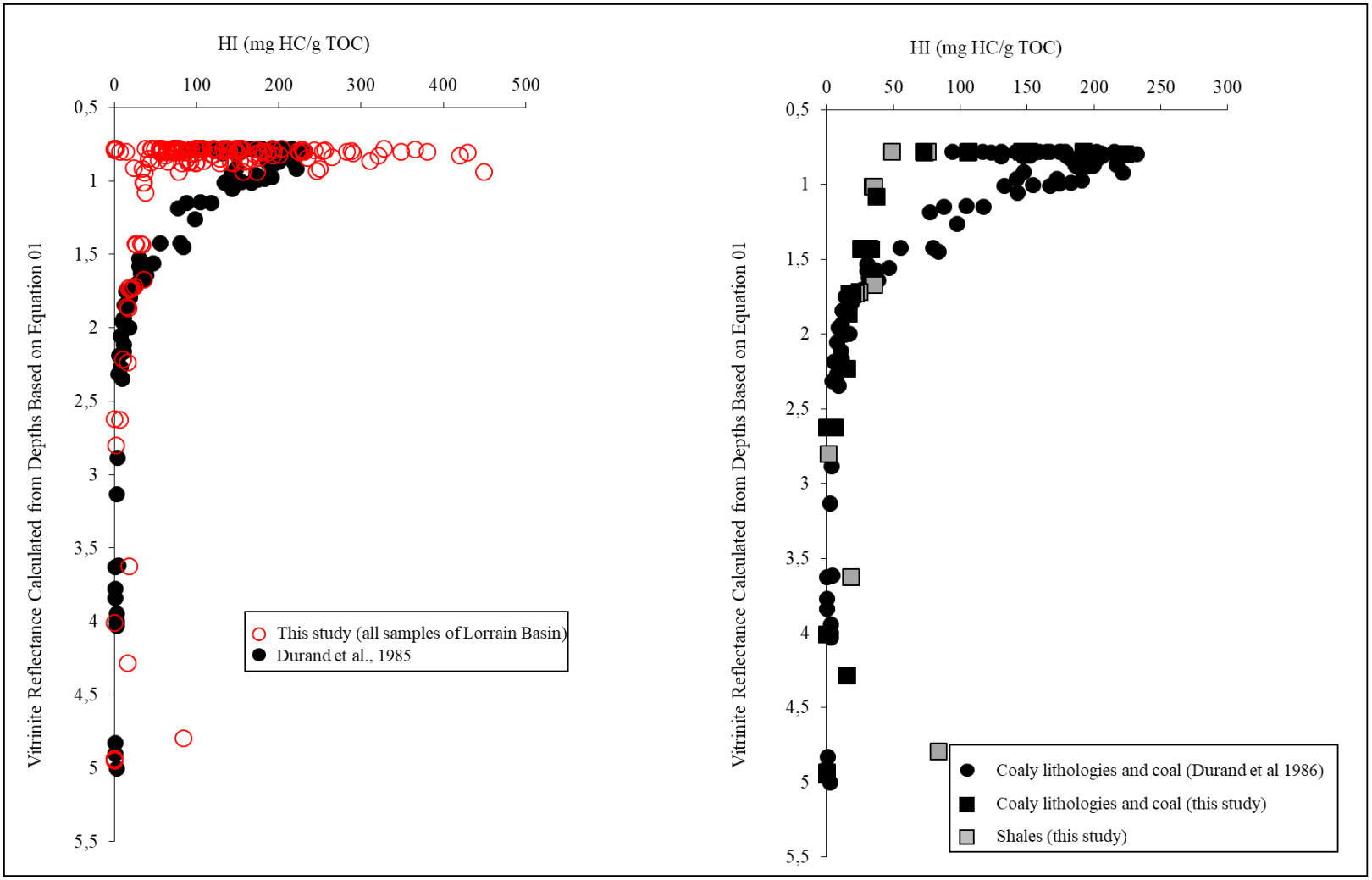


Figure III.3.10: Evolution of petroleum potential (Rock-Eval Hydrogen index) as a function of %Ro for samples from this study and those from Durand et al. (1986): a) all lithologies combined from all wells studied, b) coals and shales for the Gironville well.

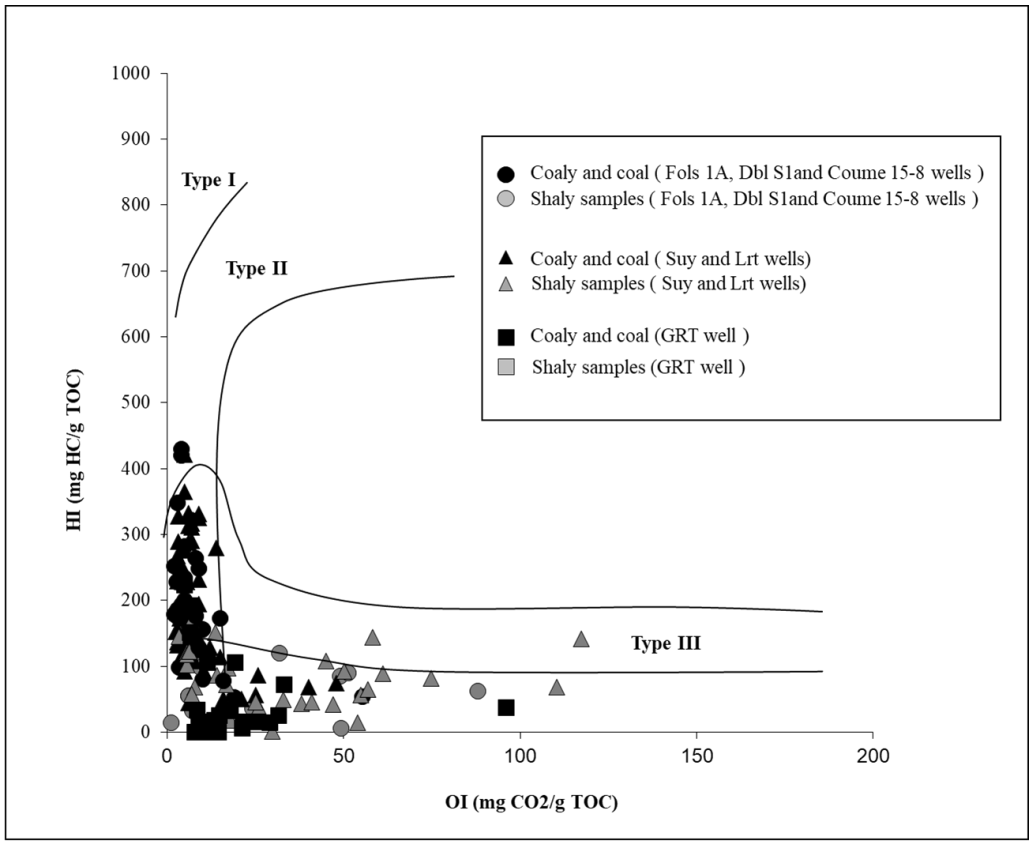


Figure III.3.11: Hydrogen Index (HI) versus Oxygen Index (OI) diagram of samples from the Carboniferous Basin in relation to kerogen classification and coals (Espitalié et al., 1985).

III.3.5 Discussion

III.3.5.1 Thermal maturity of samples.

In order to discuss the nature of the kerogen, preservation features, source-rock primary characteristics it is necessary to investigate the thermal maturity of the samples in the basin. Indeed, the description of the primary characteristics of source-rocks necessitates the consideration of immature samples.

Izart et al. (2016) investigate the burial history of the Lorraine Carboniferous basin. These papers present %Ro data compilation and corresponding thermal modelling through many of the wells investigated in this study. A major conclusion of these papers is that the basin underwent a very similar burial and thermal history throughout. It becomes therefore possible to compare the maturity level of all samples base on %Ro or Tmax taking the Gironville well data as a reference since it is the deepest well investigated. Figure III.3.10 presents the evolution of HI as a function of %Ro. The data from Gironville present a full evolution profile from

immature to end of gas window stages for kerogen maturity. Most remarkable is the evolution of HI from %Ro=0.5 to about 0.6, which presents an increase. This is mainly characterizing the diagenesis stage of thermal maturity, which is dominated by the loss of oxygen as (H_2O and CO_2) (Van Krevelen, 1993; Hunt, 1979; Tissot et Welt, 1984), leading to a relative increase in HI and H/C at. The subsequent deacrease in HI and H/C at. may then be attributed to catagenesis and metagenesis stages during which the hydrocarbon potential of the kerogen is being consumed. In the case of the organic matter of the Lorraine Carboniferous basin, the onset of HI consumption appears at %Ro=0.8% (Figure III.3.10) and (Tmax=445°C) (Figure III.3.12). All samples for which %Ro<0.8 (Tmax=445°C) may then be considered as immature in terms of hydrocarbons potential. These are considered for study of the primary properties of kerogen and source-rock since gas generation is the focus of this study. The maturity levels of all samples coming from wells different than Gironville (besides of the deepest part of the Saulcy) are therefore suitable. In parallel, vitrinite reflectance measurements are presented in Figures III.3.2 and III.3.12, where it is distinctly apparent that nearly all sample values at a depth of 2 km, spanning the Stephanian and Westphalian D and C strata, exhibit vitrinite reflectance values that do not exceed 1%. The samples from the Westphalian B stratum may reach reflectance values of approximately 2%, and those from the Westphalian A can attain reflectance values between 5 and 6%.

These observations suggest interpretations of thermal maturity stages in accordance with multiple classification models. We consider three key classifications: (1) Dembicki (2009) model, based on Dow (1977) and Senftle and Landis (1991); (2) Sweeney and Burnham (1990) model; and (3) Sykes and Snowdon (2002) approach (Figures III.3.13, III.3.14, III.3.15 and Supplementary Data - Appendix 10).

1) According to Dembicki (2009) classification for gas-prone organic matter (OM), thermal maturity stages are defined as: Immature (<0.8% Ro), Early gas (0.8-1.2% Ro), Gas peak (1.2-2% Ro), and Late gas (>2% Ro).

2) Sweeney and Burnham (1990) classification for oil generation delineates the following stages: Immature (<0.6% Ro), Early oil (0.6-0.8% Ro), Peak oil (0.8-1% Ro), Late oil (1-1.35% Ro), Wet gas (1.35-2% Ro), and Dry gas (>2% Ro).

3) Notably, these classifications exhibit differences in stage boundaries. Furthermore, we incorporate Sykes and Snowdon (2002) method, which utilizes Bitumen Index (BI = S1/TOC)

and Quality Index (QI = (S1+S2)/TOC) to assess the petroleum potential of coals. The onset of oil generation is indicated by an increase in BI, while the threshold for oil expulsion and gas generation is marked by the peak in QI.

We constructed BI and QI graphs versus Tmax and Ro (Figures III.3.13 and III.3.14) using coal samples from the Folschviller, Coume, Diebling, and Gironville boreholes in the Lorraine Basin. Our analysis indicates that the onset of oil generation occurs at 0.6% Ro (425°C Tmax), with a maximum at 0.8% Ro (445°C Tmax), corresponding to the onset of gas generation in the Lorraine Basin. Given these observations, we propose adopting a gas-prone model for the Lorraine Basin, but with a narrow oil window between 0.6 and 0.8% Ro. At this stage, we limit our interpretations to these findings:

The data indicate that the Stephanian samples and those from the upper Westphalian D are situated within the immature window, exhibiting reflectance values less than 0.8%. The remaining samples, with vitrinite reflectance values ranging from 0.8% to 1.2% within some Westphalian D and C formations, are positioned within the early maturation window. Westphalian B samples, with reflectance values between 1.2% and slightly over 4%, correspond to the maturation zone. Reflectance values exceeding 4% indicate overmaturation of the Westphalian A samples, suggesting that all petroleum potential has been expended according to both classifications.

To accomplish this, all samples with vitrinite reflectance less than 0.8% or Tmax values lower than 445 (indicating immaturity according to classification 1, early maturation according to classification 2and 3) are filtered to analyze their characteristics regarding preservation state and primary source nature for petroleum potential, excluding samples that have generated gas according to both classifications.

These immature samples fall within the composition of bituminous coals, characterized by atomic ratios of H/C and O/C ranging between 0.6 and 1.1 and 0.08 and 0.2, respectively (Figure III.3.8), confirming the coal rank characteristics of the top of the Westphalian D and Stephanian formations (Section III.3.4.1) (Figure III.3.2).

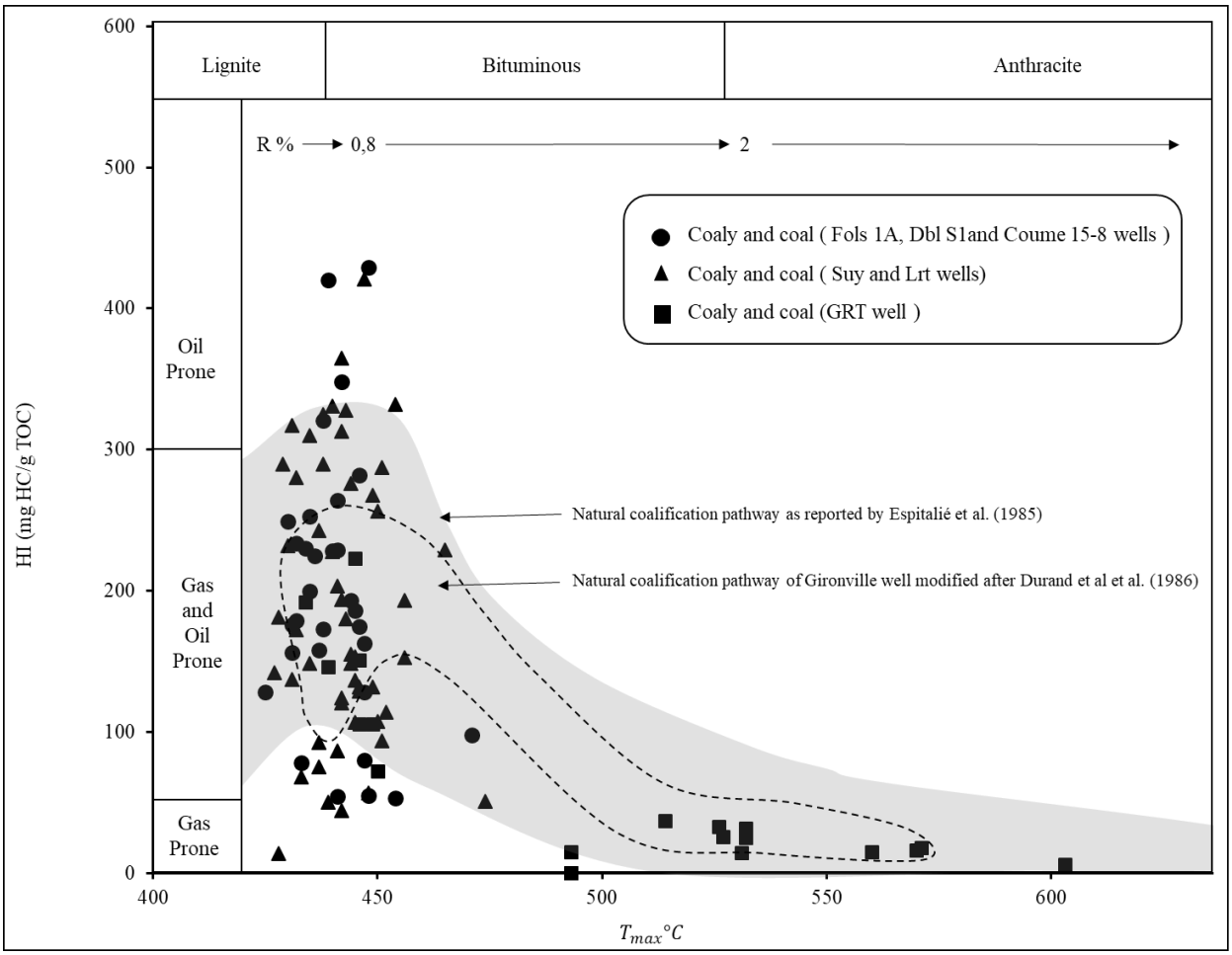


Figure III.3.12: Relationship between Hydrogen Index (HI) and Thermal Maturity (Tmax), as well as Vitrinite Reflectance, for samples from the Lorain Basin compared to the natural coalification pathway reported by Espitalié et al. (1985).

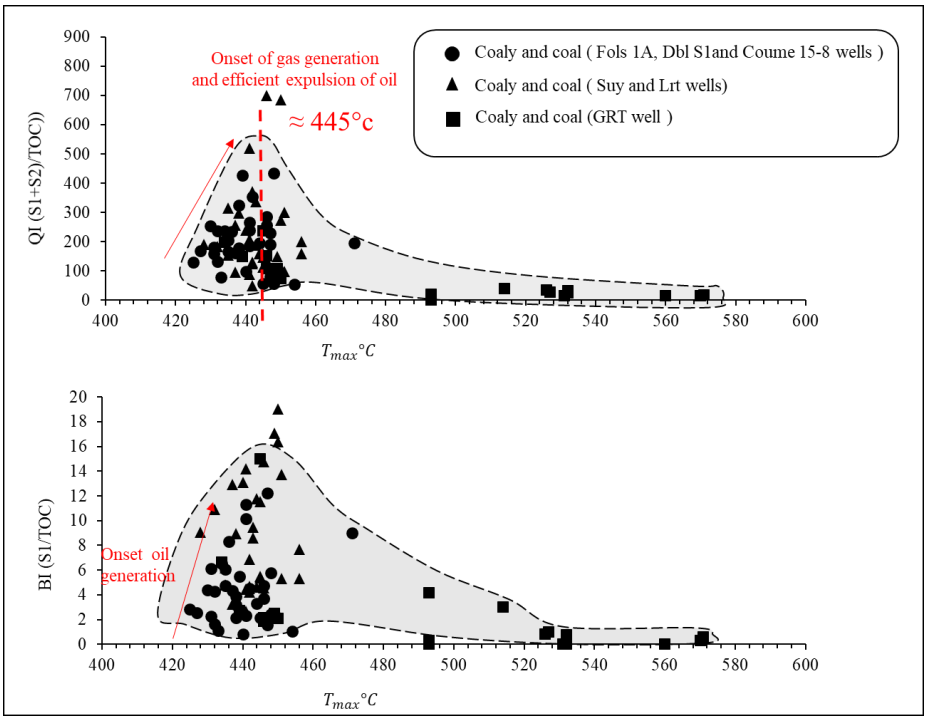


Figure III.3.13: Relationship between BI, QI and and Thermal Maturity (Tmax) for Coal samples from the Lorain Basin.

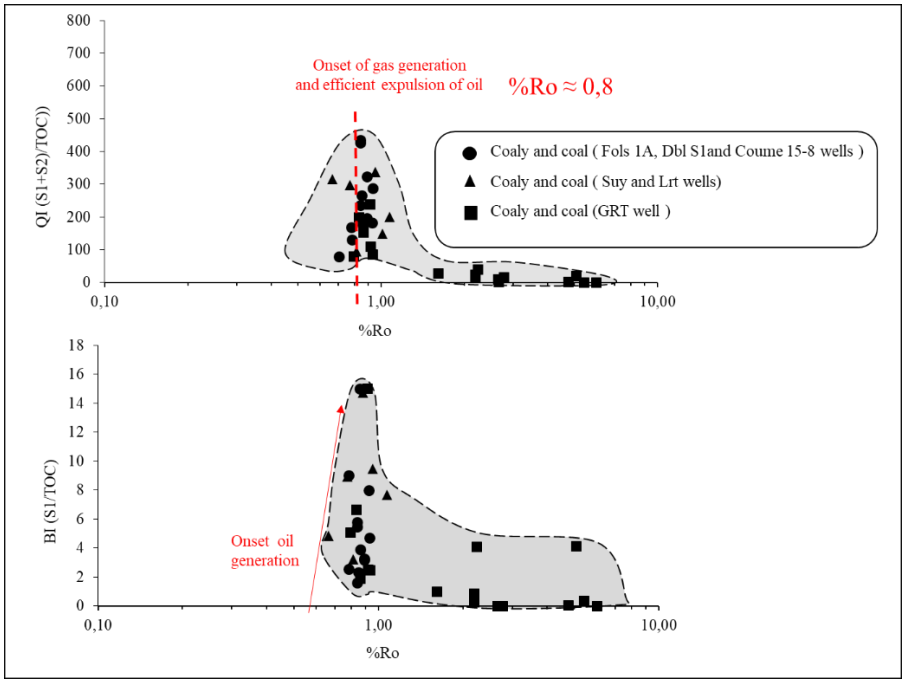


Figure III.3.14: Relationship between BI, QI and Vitrinite Reflectance (Ro %), for Coal samples from the Lorain Basin

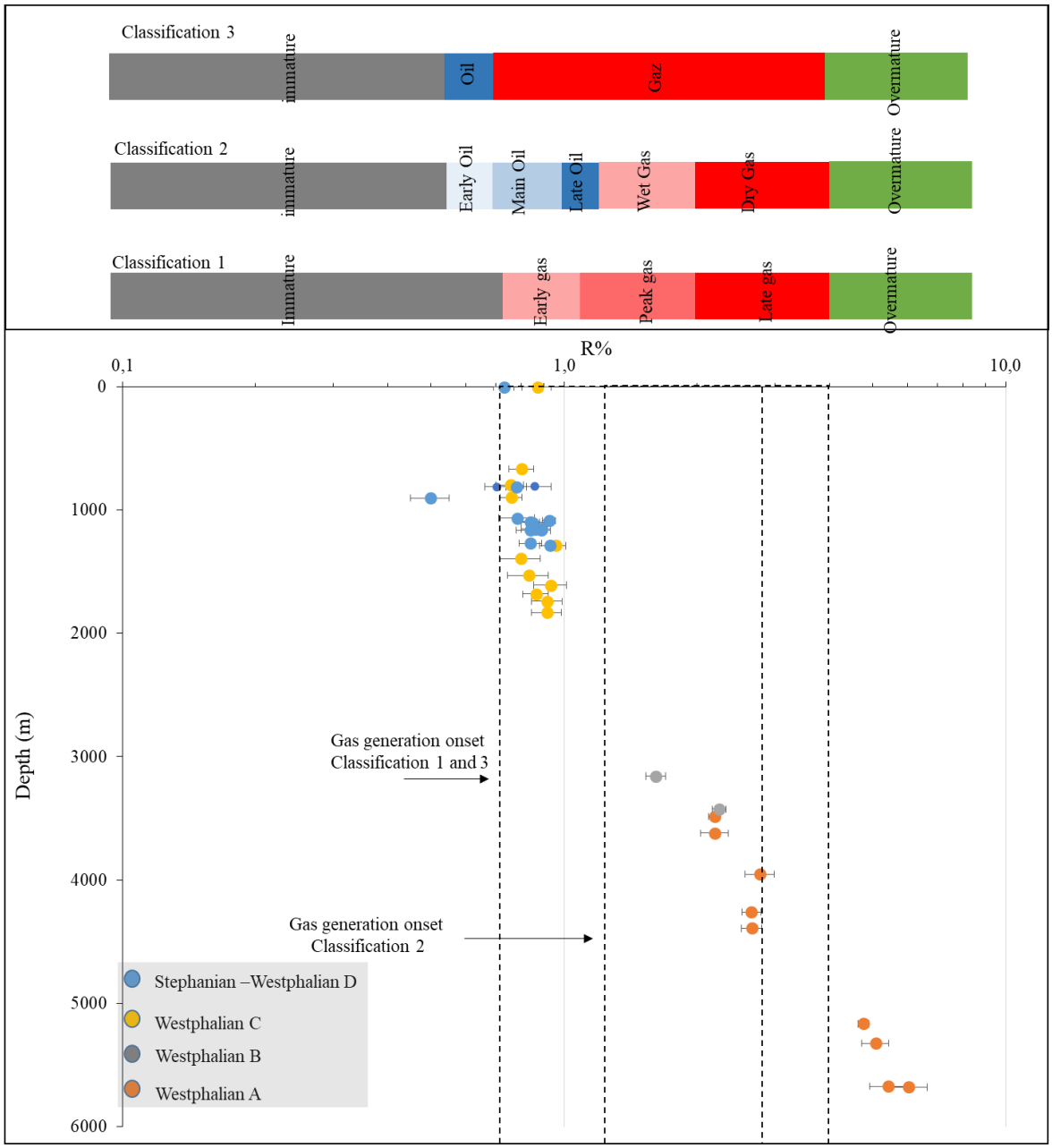


Figure III.3.15: Vitrinite reflectance of coal samples from the Carboniferous basin and their classification of Thermal zone maturity and hydrocarbon generation window according to two proposed classifications in organic geochemistry: Classification (1) by Dembicki (2009), based on Dow (1977) and Senftle and Landis (1991), and others, Classification (2) by Sweeney and Burnham (1990) and classification (3) by Sykes and Snowdon (2002).

III.3.5.2 Organic Matter Preservation and kerogen type

The maceral composition depicted in Table III.3.2 offers insights into the composition of coal. The prevalence of Collotelinite implies a significant contribution from vitrinite and indicates that these coal samples originate predominantly from terrestrial plant material (type III kerogen) (Supplementary data – Appendix 11). Vitrinite, derived from woody components like wood

and bark, implies that the coal-forming environment likely featured abundant vegetation, such as forests or swamps, during the deposition phase. The presence of liptinite macerals, including Sporinite and Alginite(Supplementary data – Appendix 12), indicates the occurrence respectively of higher spores % from continental plants in the Westphalian D than in the Westphalian C and algal from aquatic organic materials in the Westphalian D and C. This suggests the presence of water bodies or marshy environments during the deposition of the coal. Alginite specifically suggests the presence of aquatic plants or algae from Neunkirchen and Sulzbach outcrops (Westphalian C) and La Houve, Folschviller and Diebling boreholes (Westphalian D). Inertinite macerals typically form from plant material undergoing charring due to wildfires or prolonged exposure to oxygen. The limited content of inertinite macerals (11.09%) in the coal samples from the Westphalian C (Supplementary data – Appendix 13) and in Table III.3.2 suggests that exposure to fire or oxidative conditions during the deposition of the coal-forming material was limited, but are higher (25%) in the Laudrefang and Tritteling Fms (Westphalian D) from the Folschviller and Diebling boreholes. In summary, the coal samples seem to have formed in an environment characterized by a combination of terrestrial vegetation, input from aquatic sources, and occasional exposure to fire or oxidation.

The organic petrographic analyses conducted on the coals of the Lorraine Basin, involving the diagrams (TPI, GI, GWI, and VI), as well as ternary diagrams (TPI−VI-GI Ternary Facies plot and TPI-GI-GWI Ternary Facies plot), serve as tools to enhance the understanding of the depositional environmental conditions. These indices are employed for inferring the paleoenvironmental conditions of the deposits, fluctuations in groundwater levels, and variations in the vegetation type during the sediment accumulation period. But Wüst et al. (2001) showed that these maceral indices cannot use for recent peat environments and must be used carefully in the past. Sen et al. (2016) presented a recent review of these relationships between maceral indices and paleoenvironments.

The tissue preservation index (TPI) and the gelification index (GI), proposed initially by Diessel (1992), are respectively indicators of the plant-tissue preservation in the palaeomire and the contribution of arboreal vegetation to peat formation (TPI), and of the homogenization (sensu gelification) of the organic matter (GI). But, Sen et al. (2016) showed that the gelification is done during the peat stage, but also during the coal diagenesis, and TPI must not be used to tree-density because trees are not equal to wood.

The values of GI and TPI are presented on Diessel (1992) model, applying the correlation established by Kalaitzidis et al. (2004) (Supplementary data – Appendix 16) and (Figure III.3.16).

$$TPI = \frac{Telovitrinite + Corpogelinite + Fusinite + semifusinite}{Detrovitrinite + Gelinite + Inertodetrinite}$$

$$GI = \frac{Collotelinite + Collodetrinite + Gelovitrinite}{Telinite + Vitrodetrinite + Inertinite}$$

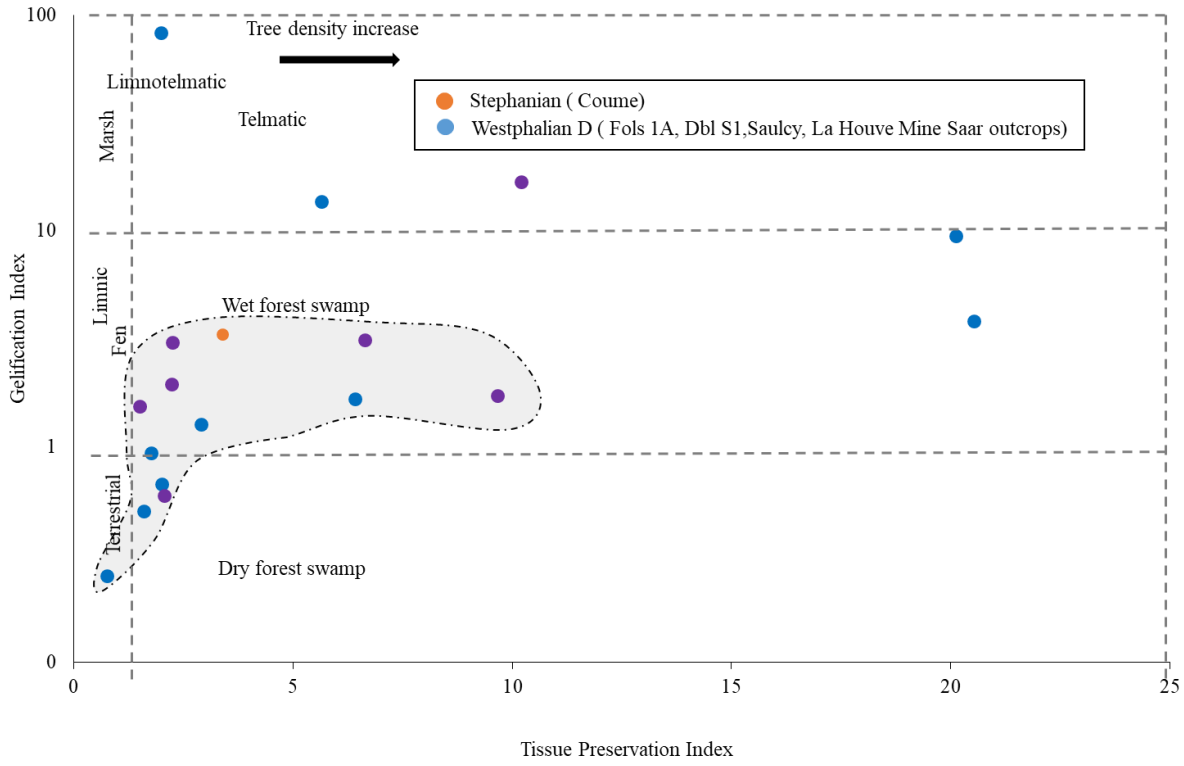


Figure III.3.16: Depositional Facies of Coal: Plot of Tissue Preservation Index and Gelification index

The examined coal facies are primarily characterized by a Gelification Index (GI) range of 0.2 to 4, and a Tissue Preservation Index (TPI) predominantly varying from 1 to 10 (Figure III.3.16). In the presented diagram, only samples possessing both TPI and GI values simultaneously are depicted, as some samples, such as those from the Westphalian C of Gironville, have maceral volumes used in the index calculations that are null (Supplementary data- Appendix 16).

The majority of samples are situated within the mid-GI and low-TPI region, indicative of a wet fen environment during the Westphalian D and Stephanian stages at locations such as Fols 1a, Dbl S1, Coume boreholes, and Saar outcrops. Samples from terrestrial environment at the top of the Westphalian D in the La Houve mine exhibit the lowest GI and low TPI.

High GI and low TPI values, representing a marsh environment, are observed during the Westphalian D (Folschviller). Mid-GI and highest TPI values are characteristic of the Stephanian stage in Coume and the top of the Westphalian D in the Folschviller borehole.

High GI and low TPI samples consist of high detrovitrinite and low inertinite content. Mid-GI and high TPI samples are dominated by high detrovitrinite and low inertinite content. Low GI and low TPI samples exhibit high detrovitrinite and high fusinite content. The data plotted on Diessel's diagram reveal a prevailing trend, with the majority of points transitioning from a Dry Forest Swamp environment in the terrestrial domain to a Wet Forest Swamp environment within the limnic domain. Additionally, a few points with notably high TPI values suggest a trend indicative of densely vegetated forest environments. The variation in these indices reflects a selective sampling constrained by age (Only Top of Westpalian D and early Stephanian), making it challenging to draw broad paleoclimatic interpretations. Thus, it is essential to readapt the sampling strategy in a manner that aligns with sedimentological evolution.

The Groundwater Influence (GWI) and Vegetation Index (VI), as originally introduced by Calder et al. (1991), serve as indicators for specific aspects: GWI reflects hydrological conditions, while VI characterizes the type of vegetation contributing to Coal formation. In this study, we applied the GWI and VI formulas as proposed by Kalaitzidis et al. (2004) (Supplementary data – Appendix 16) and (Figure III.3.17). Calder et al. (1991) opposited the strongly gelified macerals and mineral matter to weak gelified maceral in GWI, and lignin-poor aquatic plants and lignin-rich continental plants in VI. But, Sen et al. (2016) showed that the gelification is not only due to a ground water influence and that the low VI is not only due to aquatic or herbaceous plants. All these indices allow us to subdivide the recent peat environments in ombrotrophic environment (sphaigne peat and raised bog) owing their water to the rain, and rheotrophic environments owing their water to groundwater, subdivided into transitional (forest mixed peat and fen), telmatic (swamp peat), limnotelmatic (sedge and reed peat and marsh) and limnic (lake) environments. During the Carboniferous, the main plants contributor to the peat are arborescent pteridophytes (Lepidodendron and Calamites),

herbaceous lycopods and sphenopsids (Sphenophyllum) in the wet ombrotrophic area and the early gymnosperms (Cordaites) in more dry area located on highs from the swamp.

$$GWI = \frac{Detrovitrinite + Gelovitrinite + Mineral\ Matter}{Telovitrinite}$$

$$VI = \frac{Telovitrin. + cutin. + sporin. + resin. + suberin. + fusin. + semifusin.}{detrovitrinite + alginite + liptodetrinite + inertodetrinite}$$

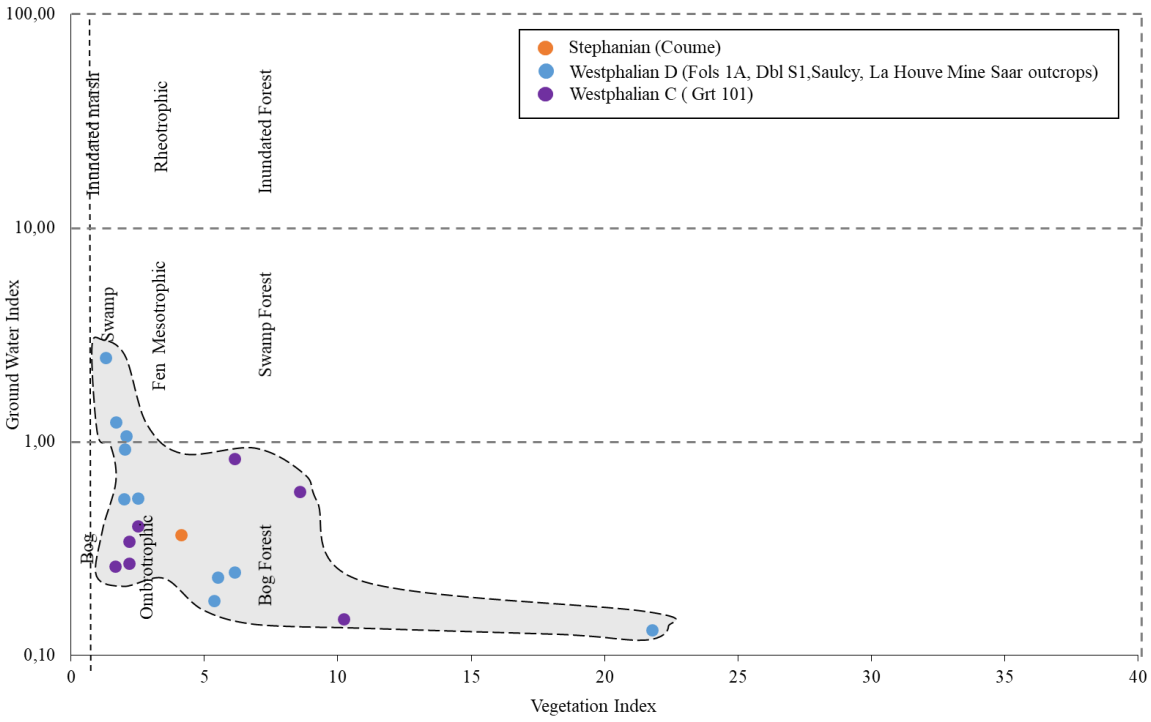


Figure III.3.17: Depositional Facies of Coal: vegetation index and ground water Index.

The analyzed samples indicate that all data points fall within the range of Groundwater Influence (GWI) values, which spans from 0.1 to 2.5, with the majority falling between 1 and 22 of VI (Figure III.3.17).

The large part of samples are located in the low GWI and VI from the Westphalian C (Gironville) and D (Coume, Folschviller and Diebling) and can be interpreted as ombrotrophic bog environment. The high GWI and low VI sample that are from Westphalian D in La Houve can be interpreted as Swamp environment with high detrovitrinite %. The low GWI and high

VI samples that are from Gironville (Westphalian C) can be explained by high telovitrinite and liptinite % and low inertinite %. This trend suggests that diverse ombrotrophic hydrological conditions prevailed within the depositional basin, influencing the interaction between the peat surface and the atmosphere. Notably, these results have been corroborated by Fleck et al. (2001), who conducted geochemical analyses on coals from Saulcy, Lorette, and Chamont. However, in this study, the difficulty arises in drawing paleoclimatic interpretations due to the restricted age range and the limited availability of samples in relation to the sedimentological evolution within the basin. Additionally, it is important to note that maceral indices, such as those used in this study, are not suitable for recent peat environments and must be employed with caution (Sen et al., 2016)

III.3.5.3 Source-rock characteristics and Hydrocarbon potential of coal and coaly facies.

The sedimentological investigation of the carboniferous deposits revealed fluvial to lacustrine depositional conditions involving conglomerates, sandstones, siltstones, claystones and coal layers. The Rock-pseudo-Van Krevelen diagram of Figure III.3.11 is consistent with the presence of type III organic matter in all facies, not only coal layers as depicted in the organic petrography section. Figure III.3.18 presents Rock-Eval TOC vs HI for a set of selected pre-catagenesis samples (Tmax<450°C) collected in siltstones, claystone and coal facies. Rock facies may be characterized by their TOC content: <1% to 10%: clay and siltstone; 10-50%: coaly clay to clayey coals; 50 to 90% clayey coals to coals.

In the S2 vs TOC diagram, all samples for which TOC>1% seem to align along the same trend, while samples with TOC<1% seem to be on a different trend. Most sample contain more than 1%TOC may therefore belong to a same organic matter compositional trend and be considered as a single family of hydrocarbon source-rocks (Hunt, 1979; Tissot et Welt, 1984). Overall decrease of TOC may then be attributed by dilution of a same organic matter type by mineral content.

However, HI values exhibit significant variability within each facies class suggesting that simple dilution by minerals is not the only factor for variability:

- For clayey coals to coal samples (50%<TOC<90%) HI values span from 130 to almost 450 mgHCs/gTOC). Decrease in TOC seems to be accompanied by increase in HI.

- For Clayey coals to coaly clay (10%<TOC<50%) HI decreases with TOC from about 300 mgHCs/gTOC to values <50 mgHCs/gTOC.
- For claystone and siltstone, HI decreases from about 130 mgHCs/gTOC to values lower than 5 mgHCs/gTOC. The Westphalian C lacustrine black shale from the Lorettes borehole shows a HI between 100 and 150 that corresponds to an organic matter type III. There is no type II or I in the Westphalian from the Lorraine Basin.

The quality of kerogen as observed by HI vs TOC (Figure III.3.18) may be attributed to the preservation conditions variability within the depositional systems from fluvial channel and true swamps (Fleck et al., 2001). Three major source-rock qualities may be distinguished: coal characteristic of swamp environments (TOC>50%), clayey coals, and coal-bearing clays typical of transitional environments between swamps and floodplain plains (10%<TOC<50%), and finally, silty clays and very fine facies characteristic of floodplains (TOC<10%). The variability of the HI within these groups may imply poorly preserved and/or altered organic matter for claystone and siltstone. Coal show lower HI than coaly clay to clayey coal, evidenced by a decrease of HI with increasing TOC.

Figure III.3.19 illustrates that the richness of the (Inertinite / Liptinite + Vitrinite) ratio increases with Total Organic Carbon (TOC). However, it is observed that certain samples exhibit high and highly variable Hydrogen Index (HI), such as coal, displaying varying inertinite values. Additionally, Figure III.3.20 confirms that samples with high TOC values and high inertinite content present variable values of HI, potentially explaining the drop in hydrogen content. Clayey coal may thus be considered as containing the best-preserved kerogen.

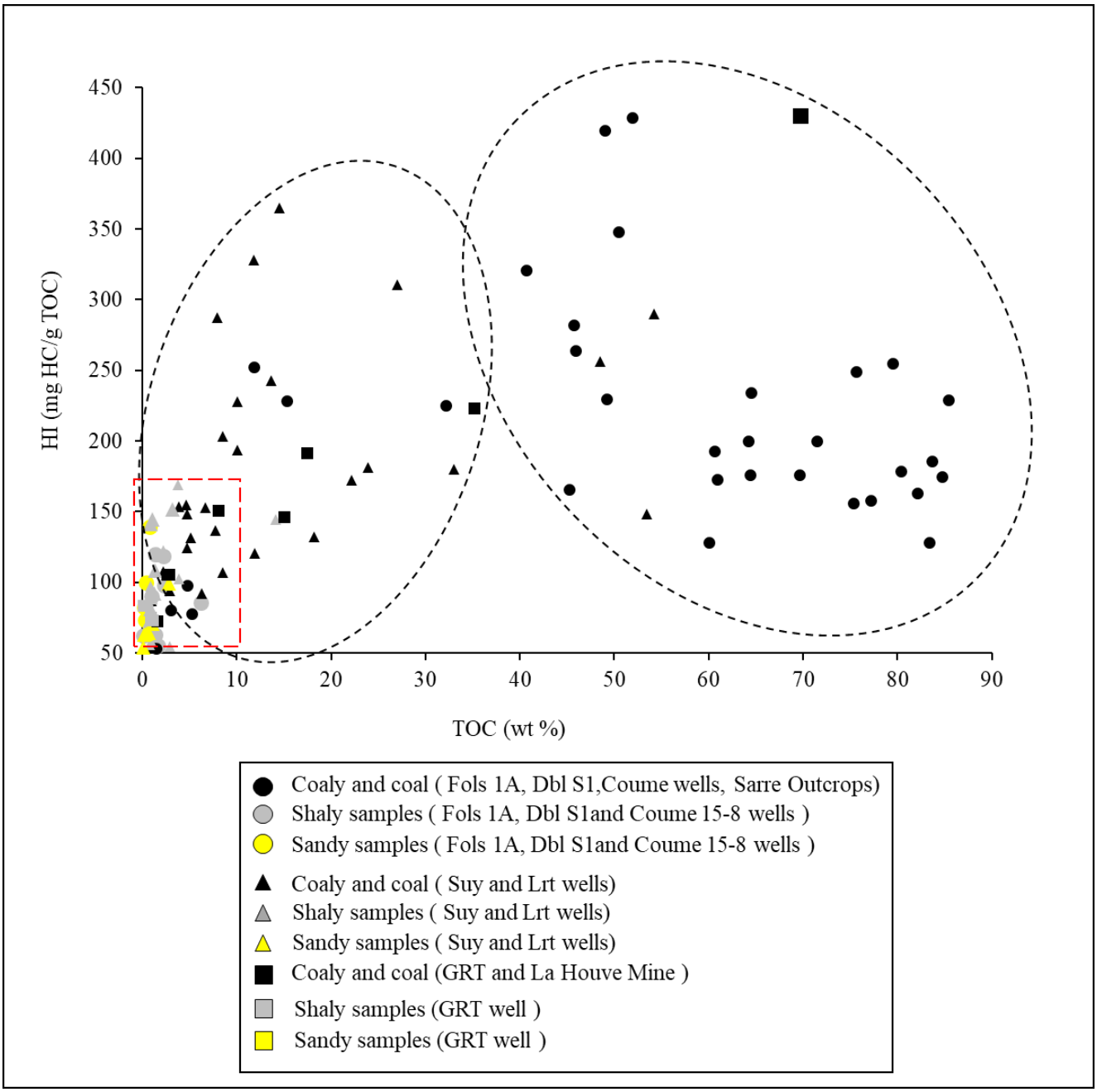


Figure III.3.18: Rock-Eval Hydrogen Index and TOC Correlation of samples presenting Tmax<450°C in the Lorraine Basin. Rock facies are characterized by their TOC content: <1% to 10%::clay and siltstone; 10-50%: coaly clay to clay rich coals; 50 to 80% clay rich coals to coals.

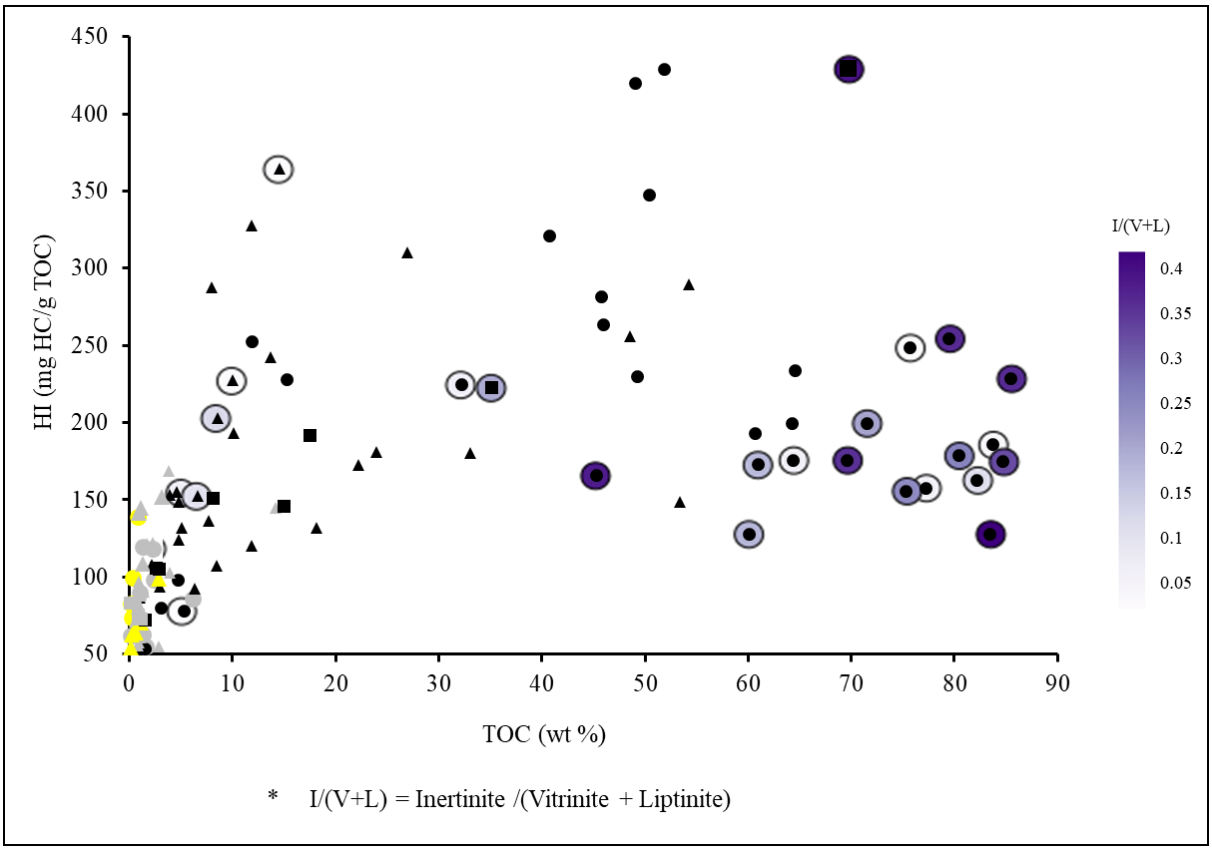


Figure III.3.19: Integration of Rock-Eval HI TOC with I/(V+L) Ratio from Maceral Analyses of Select Samples: In this diagram, the I/(V+L) ratio is represented by circles, where the abundance of inertinite is indicated by a color scale ranging from lighter to darker shades. The legend for the Rock-Eval samples is also provided within Figure III.3.18.

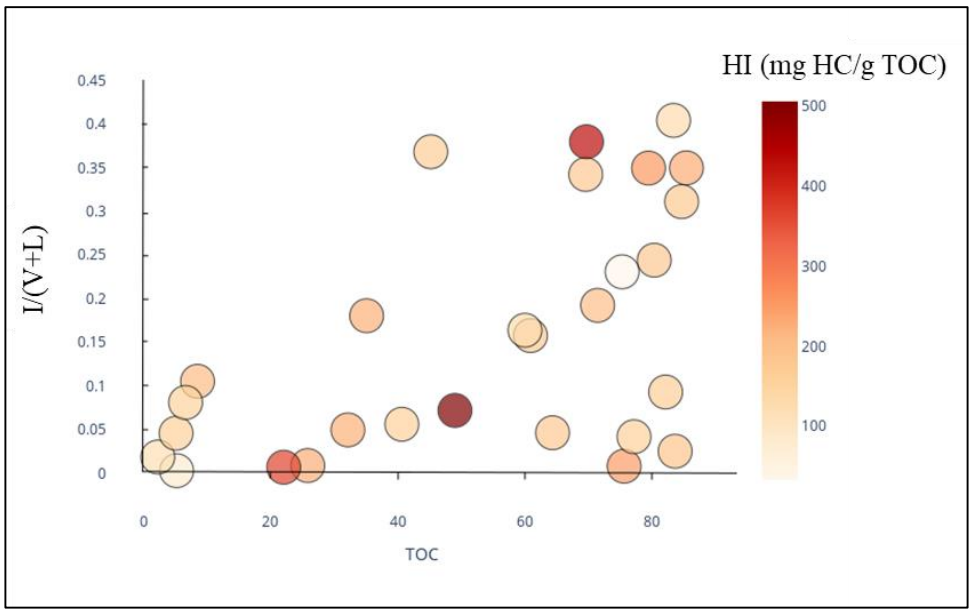


Figure III.3.20: Integration of Rock-Eval TOC vs. I/ (V+L) Ratio from Maceral with HI

The hydrocarbon potential (Rock-Eval S2) for coal to Coaly shale ranges from 14.29 to 202.29 mgHC/gRock, whereas for siltstone to claystone source rocks, it varies from 0.13 to 17.35 mgHC/gRock. These values indicate a petroleum potential ranging from good to excellent (Figure III.3.21) for samples considered immature. Data points for coal to coaly shale align along and average IH value of 198 gHC/gTOC, suggesting gas-prone source-rock quality. Silstone to claystones align along a different HI trend 82 mgHC/gTOC, which is indicates poor hydrocarbon potential. The dispersed organic matter in sandy and conglomeratic facies displays a very low TOC and consequently a very low petroleum potential and are therefore not considered as source-rocks.

Similarly to Figure III.3.19, Figure III.3.22 demonstrates that the (inertinite / (liptinite + vitrinite) ratio increases with TOC. However, S2 varies in a less pronounced manner compared to IH.

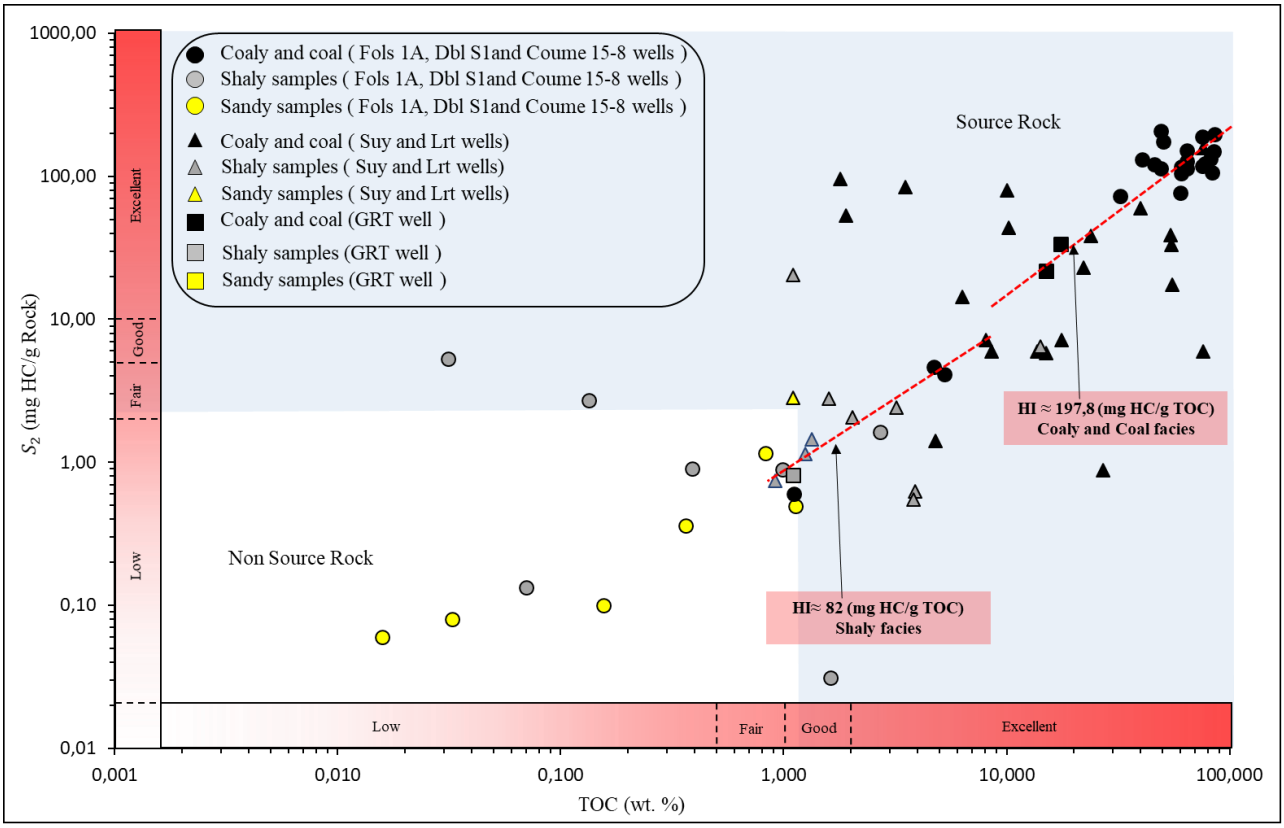


Figure III.3.21: Rock Eval S2 vs. TOC Diagram enables the definition of the petroleum potential quality of the Lorarin Carboniferous Basin.

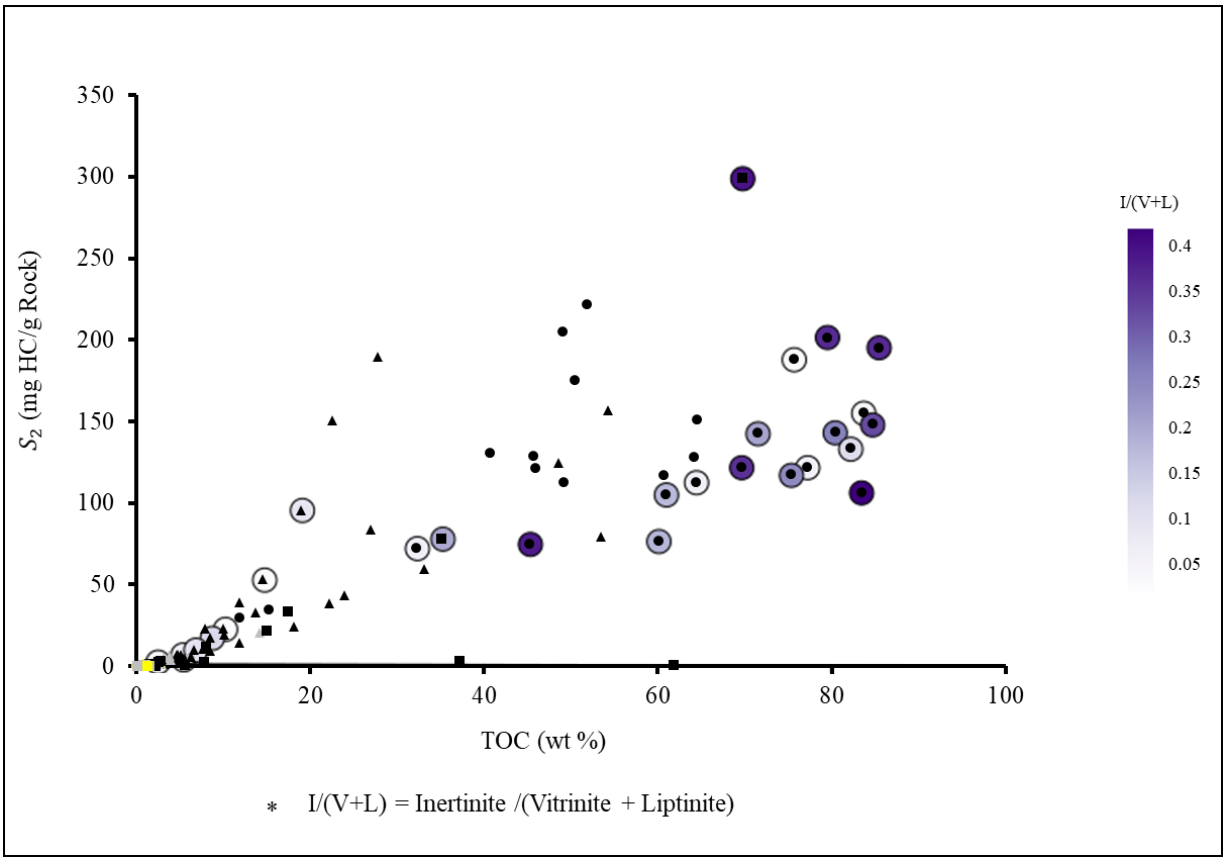


Figure III.3.22: Integration of Rock-Eval S2 - TOC with I/(V+L) Ratio from Maceral Analyses of Select Samples: In this diagram, the I/(V+L) ratio is represented by circles, where the abundance of inertinite is indicated by a color scale ranging from lighter to darker shades. The legend for the Rock-Eval samples is also provided within ***Figure*** *III.3.18.*

The vitrinite reflectances (section III.3.5.1 and Figure III.3.15) indicate that the Stephanian samples and those from the upper Westphalian D are situated within the immature window, exhibiting reflectance values less than 0.8%, as delineated by classification (1). This includes samples from La Houve at 900 m, Coume, Fols 1a at depths between 807 and 811 m, two samples from Saulcy at depths of 795.70 m and 894 m, as well as outcrop samples in Saar. Consequently, they have not generated any hydrocarbons. According to classification (2), these samples, except La Houve at 900 m, are classified at the onset of the early oil window, having produced minimal quantities of oil. This interval is considered capable of generating only very small quantities of oil, if any. Numerous references highlight the importance of evaluating liptinite percentages when estimating the potential for liquid hydrocarbon (oil) generation. For instance, Hunt (1991) suggests a liptinite percentage range between 15% and 20%, while Snowdon (1991) indicates that percentages exceeding 20% may be favorable for oil generation. In this study, the majority of samples do not exceed 20%, with only a few isolated points reaching this threshold (Figure III.3.23). This suggests that only very small quantities of oil are

generated. In addition, the diagram in Figure III.3.3 shows that the majority of the samples are situated within the gas region, with only a few samples falling into the mixed hydrocarbons category (comprising wet gas and oil).

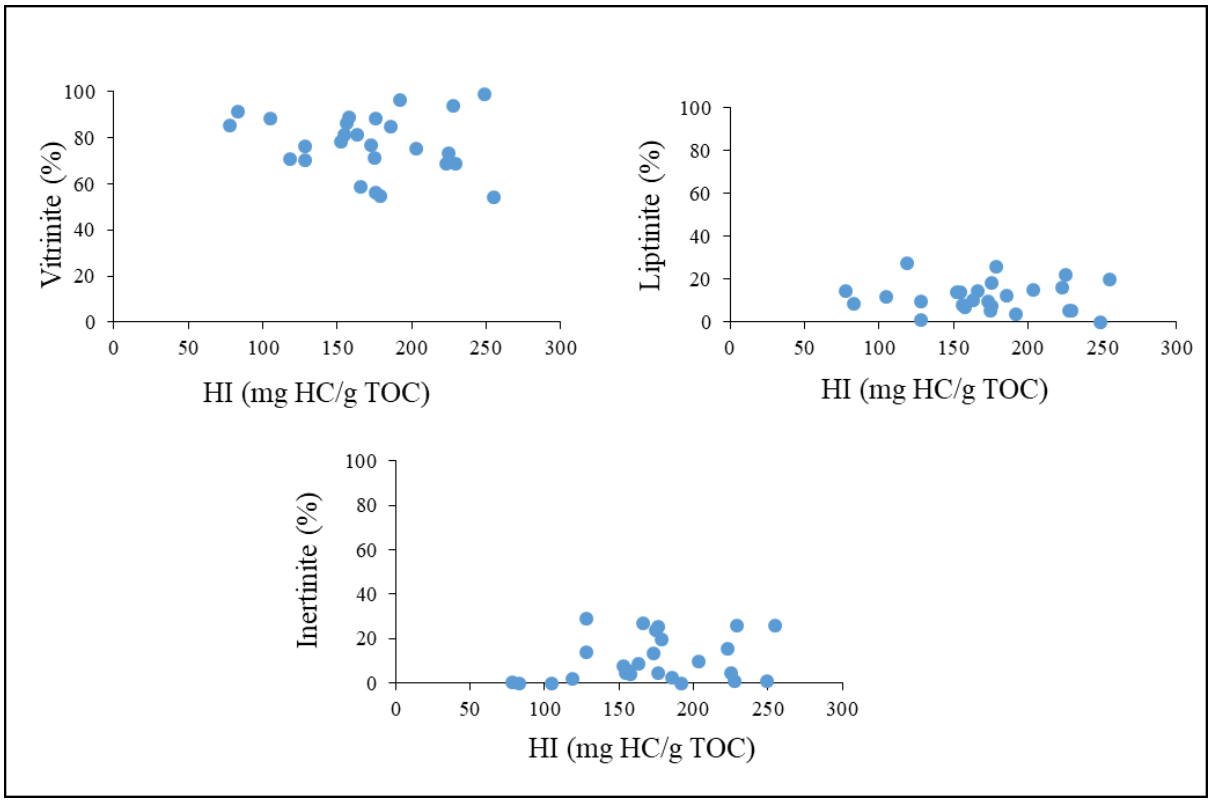


Figure III.3.23: Integration of Maceral group % of vitrinite Liptinite and inertinite with Rock-Eval HI

The remaining samples, with vitrinite reflectance values ranging from 0.8 to 1.2 within the Westphalian D and C strata, are positioned within the early maturation window and have started the generation of minor amounts of gas according with classification (1). Thies samples correspond to the peak oil generation phase as defined by classification (2) and (3) (Figure III.3.15)

The Westphalian B samples, with reflectance values between 1.2% and slightly over 2%, correspond to the peak gas generation phase according to classification (1) and the wet gas window according to classification (2) (Figure III.3.13).

The Westphalian A samples, with a vitrinite reflectance exceeding 2.4, indicate the late gas window according to classification (1) and dry gas generation according to classification (2). Values exceeding 4 denote overmaturation of the samples, indicating that all petroleum potential has been expended according to both classifications (Figure III.3.15)

III.3.6 Conclusion

The organic geochemical data indicate a predominance of Type III organic matter in the coal samples, confirmed by Rock-Eval and elemental analyses. These analyses validate the bituminous nature of the coals and reveal diverse origins, including terrestrial and aquatic sources, with occasional fire or oxidative conditions during deposition.

Thermal maturity assessments, based on %Ro data from various wells (including the Gironville well), indicate that Stephanian and upper Westphalian D samples are immature, with vitrinite reflectance values below 0.8% at Tmax 445°C, indicating limited hydrocarbon generation. Samples with vitrinite reflectance values between 0.8% and 1.2% from the Westphalian D and C formations fall within the very early maturation window, signaling minor gas and early oil generation. These immature samples with Tmax less than 445°C are ideal for studying primary kerogen properties.

- Petrographic analyses, considering maceral composition and indices (TPI, GI, GWI, VI), further elucidate depositional environments, groundwater level fluctuations, and vegetation types during coal formation. The maceral composition shows a predominance of terrestrial plant material (Type III kerogen), with significant vitrinite and liptinite contributions and limited inertinite.
- Variations in hydrogen index (HI) and total organic carbon (TOC) within different coal facies enhance the understanding of organic matter preservation in environments ranging from swampy to floodplain conditions. Rock-Eval analysis identifies three major source-rock qualities based on TOC content and HI values: Coaly facies with TOC >10% and an average HI of 198 mg HC/g TOC, Shale and Siltstone with TOC <10% and an average HI of 84 mg HC/g TOC.

Westphalian B samples, with reflectance values between 1.2% and slightly over 2%, are within the peak gas generation phase. Westphalian A samples, with reflectance values exceeding 2.4%, indicate the late gas window, with reflectance over 4% denoting overmaturation and depleted petroleum potential.

Acknowledgements: This research was funded through REssources GAzières de LORraine (REGALOR) - Research program cofounded Etat (Pacte Lorraine), Région (Région Grand Est) and Europe (Fond Européen de DEveloppement Régional - FEDER); 2018-2023.

Quatrième partie

Bilan gazier du bassin houiller lorrain

Sommaire

IV. BILAN GAZIER DU BASSIN HOUILLER LORRAIN 231

IV.1 Approche intégrée à partir des données Rock-Eval et des diagraphies 231

IV.1.1 Détermination du potentiel pétrolier initial (choix de Tmax) 233

IV.1.2 Passage des TOC actuels déterminé par diagraphies aux potentiels pétroliers (S2) actuels (Relation S2 vs. TOC) 234

IV.1.3 Taux de Génération des Hydrocarbures dans le puis Gironville 101. 238

IV.1.4 Méthodes de calcul du potentiel pétrolier initial, du maximum des volumes des hydrocarbures générés et de l'efficacité du système pétrolier. 240

IV.1.4.1 Du TOC résiduel au potentiel pétrolier résiduel 240

IV.1.4.2 Du Potentiel pétrolier résiduel au potentiel pétrolier initial 240

IV.1.4.3 Calcul des volumes maximaux d'hydrocarbures générés et perdus 241

IV.1.5 Résultats de l'application du workflow à partir des diagraphies 241

IV.1.5.1 Calcul des potentiels pétrolier S2 résiduel et initial 242

IV.1.5.2 Détermination des volumes d'hydrocarbures 243

IV.2 Maturation artificielle 244

IV.2.1 Caractéristiques géochimiques et pétrographiques des échantillons pour la maturation artificielle. 244

IV.2.1.1 Paramètres Rock-Eval et réflectance de la vitrinite 244

IV.2.1.2 Analyses macérales 247

IV.2.2 Résultats de la maturation artificielle 249

IV.2.2.1 Analyse des effluents de pyrolyse par TD-MDGC des roches-mères après maturation artificielle…. 249

IV.2.2.1.1 Evolution du pourcentage molaire des gaz en fonction de la température de pyrolyse confinée……. 250

IV.2.2.1.2 Evolution des quantités de CO_2 et d'hydrocarbures en fonction de la température de pyrolyse confinée 252

IV.2.2.1.3 Evolution des quantités de CH_4 en fonction de la température de pyrolyse confinée 255

IV.2.2.2 Analyse Rock-Eval des échantillons après maturation 257

IV.2.2.3 Estimation des Volumes Maximaux d'Hydrocarbures Générés dans le Bassin 262

IV.3 Estimation des réserves pour le forage Fols 1A, Dbl S1 et JHS 1 (Bilan par forage) 265

IV. Bilan gazier du bassin houiller lorrain

L'objectif principal de ce chapitre est de réaliser un inventaire exhaustif de l'ensemble des volumes de gaz générés, de les comparer aux saturations des volumes actuels dans les couches de charbon, afin d'estimer les volumes de gaz potentiellement expulsés dans le bassin. Cette démarche permettra d'évaluer l'efficacité du système pétrolier. Deux workflows différents pour explorer ces volumes de gaz sont proposés:

Le premier concerne l'évolution des propriétés des kérogènes le long de la pile sédimentaire (nature, teneur, maturité, potentiel pétrolier). Le travail se base sur les données Rock-Eval du forage de Gironville (Figure IV.1.1) où les données sont les plus complètes. Les résultats servent de référence pour les autres forages du bassin houiller lorrain pour lesquels les données géophysiques de puits sont utilisées (saturation en gaz calculée dans la section III.1, valeurs de TOC telles que calculées dans la section III.2). La deuxième méthode consiste à calculer directement les volumes de gaz générés à partir de la maturation artificielle d'échantillons immatures prélevés, soit dans le forage de Fols 1A, soit sur les affleurements en Sarre (Figure IV.1.1). Cette approche prend en compte trois lithologies principales (charbon, argilites, et argilites charbonneuses) et fournit des quantités de gaz en fonction de la température de pyrolyse, correspondant au degré de maturité des échantillons. L'avantage de ce workflow réside dans sa capacité à déterminer la composition spécifique des gaz générés selon un profil de maturité thermique, de la diagénèse à la méthagénèse.

IV.1 Approche intégrée à partir des données Rock-Eval et des diagraphies

Le workflow appliqué dans ce chapitre prend en considération deux paramètres essentiels (Figure IV.1.2). Le premier paramètre concerne la valeur de Tmax à partir duquel les échantillons voient la valeur de leur IH chuter. Il s'agit du début de la catagenèse thermique (Tissot et Welt, 1984) pour laquelle la genèse de gaz hydrocarboné commence.

Cette sélection fixe la limite maximale du potentiel gazier (IH initial) à partir de laquelle la courbe de décroissance de l'IH permet d'établir une loi de génération des hydrocarbures en fonction de la profondeur spécifique au bassin houiller lorrain. Le deuxième paramètre concerne la relation entre le TOC (teneur en carbone organique) et le potentiel pétrolier en fonction de l'état de maturité des échantillons. Cette relation facilite le calcul direct du potentiel pétrolier actuel (résiduel) et du TOC actuel, quel que soit l'état de maturité. Tout cela s'inscrit

dans le cadre d'une condition préalable selon laquelle tous les sites des puits ont subi une histoire thermique très similaire pendant l'enfouissement du bassin (Izart et al., 2016) et (section III.3.5.1).

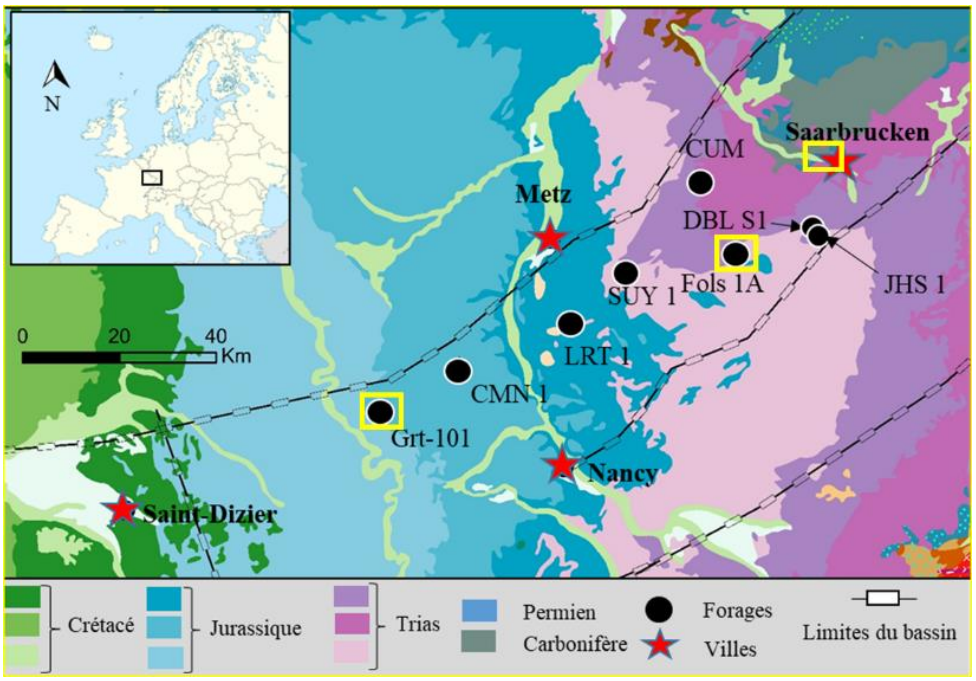


Figure IV.1.1: Localisation forage de référenve Gironville (Grt-101) utilisé pour l'approche intégrant données Rock-Eval et diagraphies, des affleurements du Carbonifère en Sarre et du forage de Folschviller (Fols 1A) pour les échantillons utilisés pour la maturation artificielle.

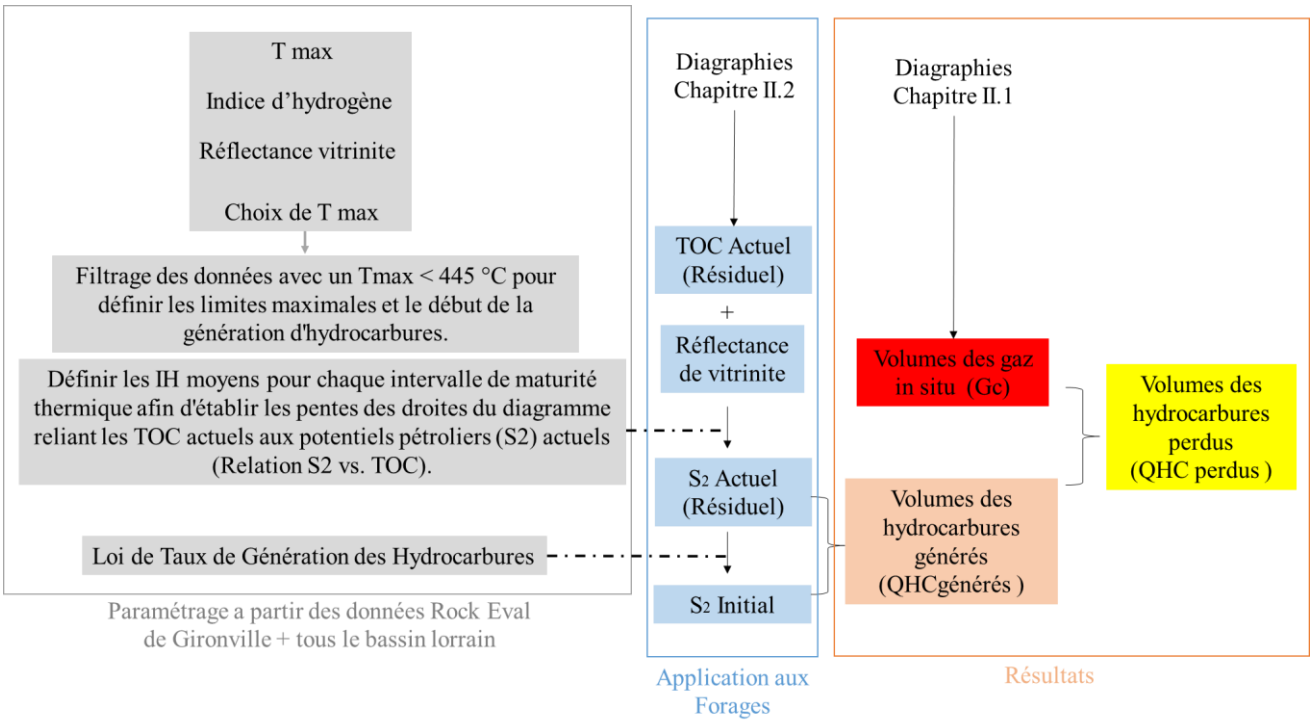


Figure IV.1.2 Workflow utilisé pour le calcul du maximum d'hydrocarbures générés par l'approche intégrée à partir des données de Rock-Eval et des diagraphies

IV.1.1 Détermination du potentiel pétrolier initial (choix de Tmax)

Pour la sélection de Tmax dans cette étude, les données issues de Durand et al. (1986) ainsi que les données de Rock-Eval nouvellement acquises sur Gironville 101 ont été utilisés. Seules les données d'indice d'hydrogène (IH), de Tmax, et de réflectance de la vitrinite ont été prises en considération, car elles représentent les données accessibles et publiées. Il est à noter que les données Rock-Eval de cette étude sont statistiquement moins abondantes en comparaison avec les données publiées par Durand et al. (1986) mais couvrent les mêmes domaines d'évolution. La Figure IV.1.3 présente ainsi la variation de l'indice d'hydrogène en fonction de la profondeur pour le puits de Gironville 101 comparé à l'évolution de la maturité thermique (%Ro et Tmax). D'abord l'indice d'hydrogène augmente avec la profondeur, indiquant l'augmentation du potentiel pétrolier vers un maximum qui présente un plateau entre les profondeurs de 1700 à 1900 mètres. Cette augmentation est liée à la perte préférentielle de CO_2 et H_2O pendant la phase de diagenèse du charbon qui conduit à un enrichissement relatif en hydrogène (Van Krevelen et al., 1961; Durand et Paratte, 1983) ainsi qu'à des réactions de recombinaisons et d'aromatisation associées (Sykes and Snowdon, 2002). Du méthane accompagne cette phase, mais les quantités sont négligeables par rapport aux stades de catagenèse et métagenèse et impossible à quantifier sur la base de l'évolution de l'indice d'hydrogène. En effet, ce dernier augmente plus vite que la perte d'hydrogène et de carbone sous forme d'hydrocarbures. Seule la maturation artificielle permet de quantifier les hydrocarbures libérés pendant ce stade d'évolution.

Le déclin de l'indice d'hydrogène débute à une profondeur d'environ 1900 mètres, correspondant à un Tmax de 445°C (%Ro=0.80). Cette profondeur marque le seuil de maturité pour lequel la consommation du potentiel pétrolier est mesurable ce qui indique le début de la catagenèse. Les échantillons avec Tmax < 445°C sont donc classés comme immatures. Leurs caractéristiques Rock-Eval ont été utilisées pour déterminer les propriétés de la roche-mère (Section III.3.4.3) et le Tmax de 445°C est employé comme paramètre pour définir le potentiel pétrolier initial. A partir de cette valeur, l'évolution décroissante de l'IH permet le calcul de la loi de genèse (Section IV.1.3).

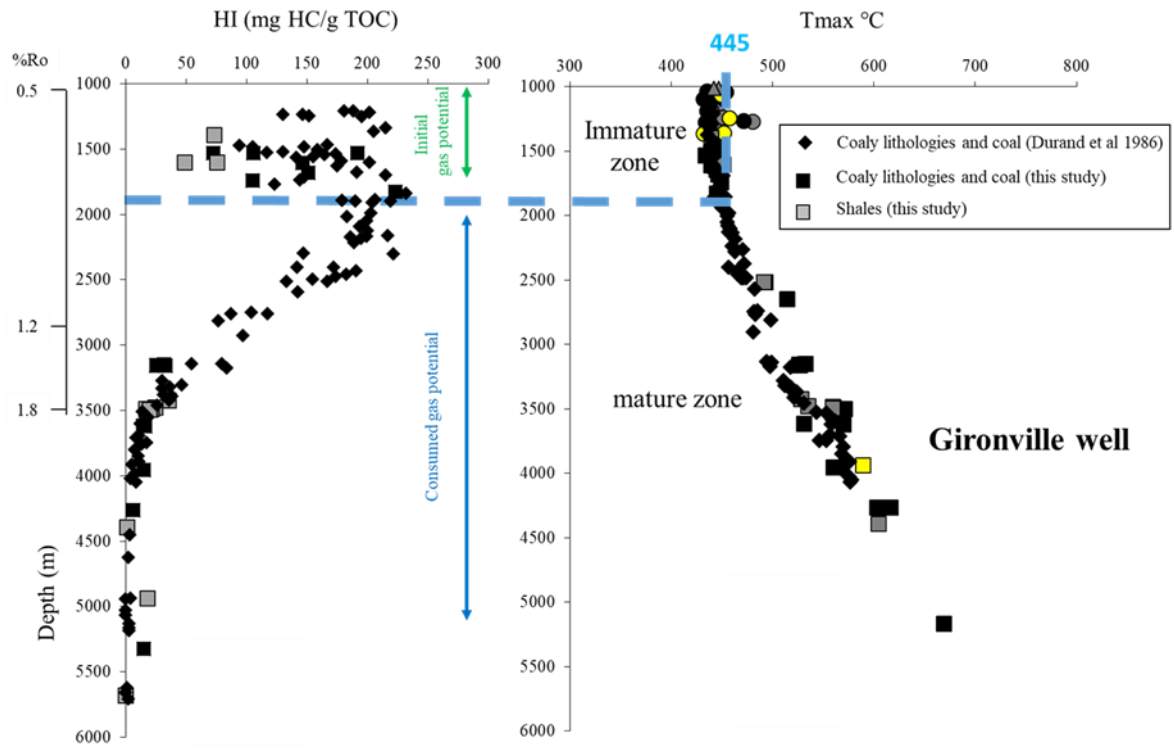


Figure IV.1.3: Données de Rock-Eval disponibles en fonction de la profondeur et de la réflectance de la vitrinite dans le forage de Gironville.

IV.1.2 Passage des TOC actuels déterminé par diagraphies aux potentiels pétroliers (S2) actuels (Relation S2 vs. TOC)

La démarche habituelle pour transposer un signal de TOC actuel calculé à partir des diagraphies en un signal de potentiel pétrolier actuel consiste à multiplier la valeur du TOC par la valeur moyenne de l'indice d'hydrogène, à l'aide de l'équation (IV.1.1) . Cette opération s'effectue pour une sélection d'échantillons présentant un degré de maturité spécifique, où la pente dans la relation représente également l'indice d'hydrogène liant ces deux paramètres.

$$S_2 = \frac{IH * TOC}{100} \qquad \text{(IV.1.1)}$$

Passey et al. (1990) proposent un diagramme de calcul qui établit des relations entre le potentiel pétrolier S2 et le TOC pour les kérogènes de type II, avec un TOC <20 wt % (Figure IV.1.4). Ce diagramme est également automatisé selon l'équation (IV.1.2) dans (Techlog©) (Cappuccio et al., 2021), permettant de calculer l'indice d'hydrogène en fonction du degré de maturité thermique (LOM) des échantillons (Hood et al., 1975).

$$IH = 0.2924 * lOM^4 - 11.64 * LOM^3 + 169.57 * lOM^2 - 1099 * LOM + 2863.2 \quad \text{(IV.1.2)}$$

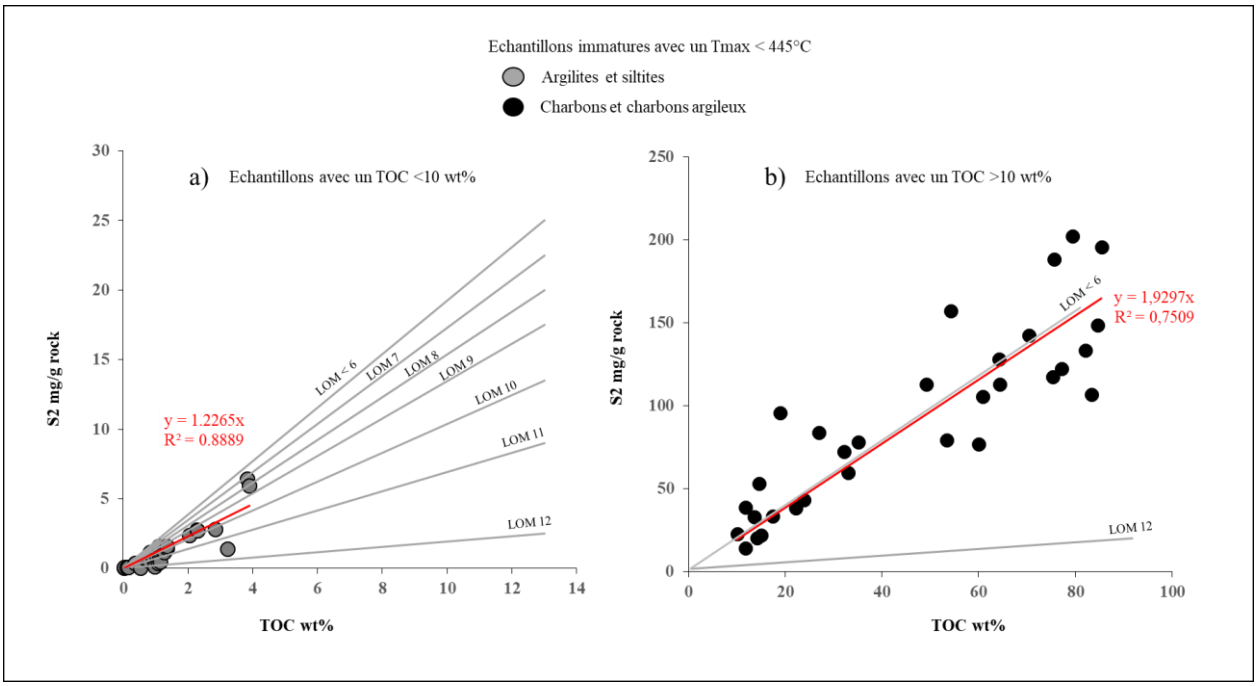


Figure IV.1.4: Relation TOC vs S2 des argilites et siltites riches en matière organique (a) ainsi que des échantillons de charbons et charbons argileux (b) pour Tmax<445°C du bassin houiller lorrain. Les données sont superposées aux droites de corrélations proposées par Passey et al. (1990).

Pour les argilites et siltites riches en matière organique (TOC<10%) les plus immatures (Tmax<445°C) la corrélation entre S2 et TOC se superpose à l'une des droites proposées par Passey et al. (1990). Cette droite correspond à la droite de LOM d'une valeur de 10, caractérisant des réflectances de vitrinite entre 0.80 et 0.92 pour ces échantillons (Figure IV.1.4). En revanche, pour les échantillons les plus immatures avec un TOC > 10%, une corrélation différente entre le potentiel pétrolier S2 et le TOC est observée par rapport à celle proposée par Passey et al. (1990) pour le même degré de maturité. En effet, la pente des charbons lorrains est plus importante que celle des kérogènes du diagramme, ce qui se traduit par un IH moyen plus élevé. En fait, la droite de corrélation des charbons lorrains avec un LOM de 10 correspond à la droite de corrélation de LOM de 6 tel que proposé par Passey et al. (1990).

Ce caractère évolutif de la relation en fonction de la maturité thermique des échantillons a été également démontré par les diagrammes de Passey et al. (1990). À mesure que la maturité des échantillons augmente, l'indice d'hydrogène diminue en raison de la consommation du potentiel pétrolier (Pelet, 1985; Passey et al., 1990; Biteau et Baudin, 2023). Cette variation de pente

régit le comportement de la relation TOC-S2, avec une diminution de la pente en fonction de la maturité, comme illustré dans la Figure IV.1.4.

C'est pourquoi il est nécessaire d'établir un nouveau diagramme S2 en fonction de TOC basée sur l'évolution des Indices d'Hydrogène (IH) associés aux intervalles de réflectance de la vitrinite dans le forage de Gironville 101. L'objectif est d'attribuer, pour chaque intervalle de réflectance de la vitrinite, un IH moyen, représentant la pente des droites de corrélation de S2 en fonction de TOC. La Figure IV.1.5 illustre les regroupements de valeurs d'IH en fonction des intervalles de réflectance de la vitrinite, en utilisant les médianes comme pentes représentatives (IH_{Moy}) des droites de corrélation (Figure IV.1.6). Ce diagramme permet finalement de réaliser une transition appropriée des TOC actuels calculés à partir des diagraphies vers les potentiels pétroliers actuels (résiduels) le long du forage, quel que soit le degré de maturité des charbons.

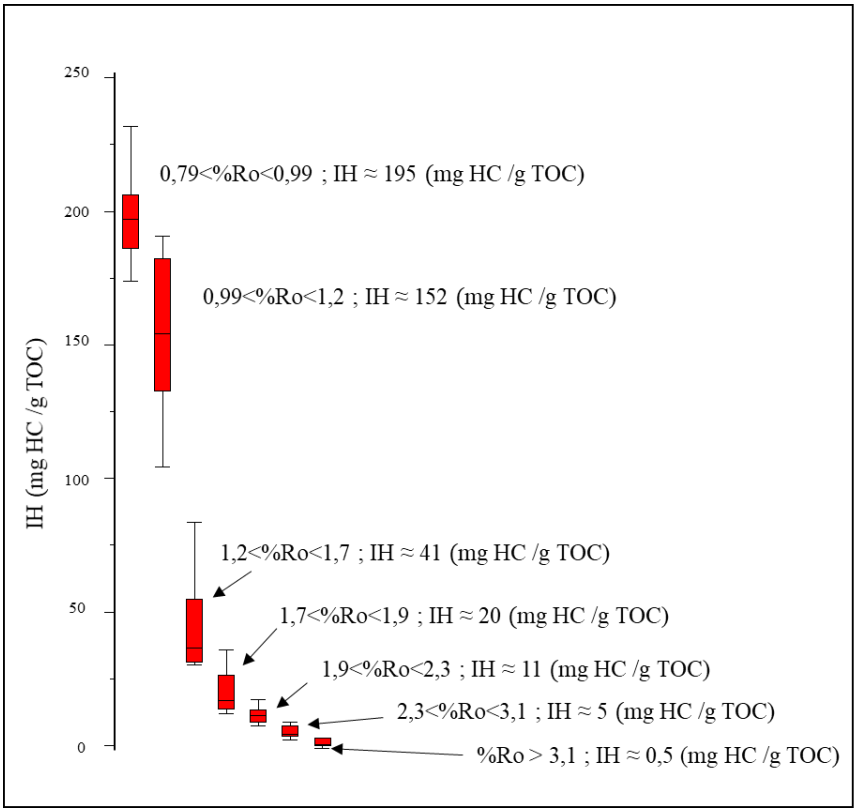


Figure IV.1.5: Variation de l'Indice d'Hydrogène en fonction de la maturité thermique dans le forage de Gironville 101. Les boîtes à moustaches sont construites à partir du regroupement des valeurs d'IH en fonction des intervalles de réflectance de la vitrinite (%Ro).

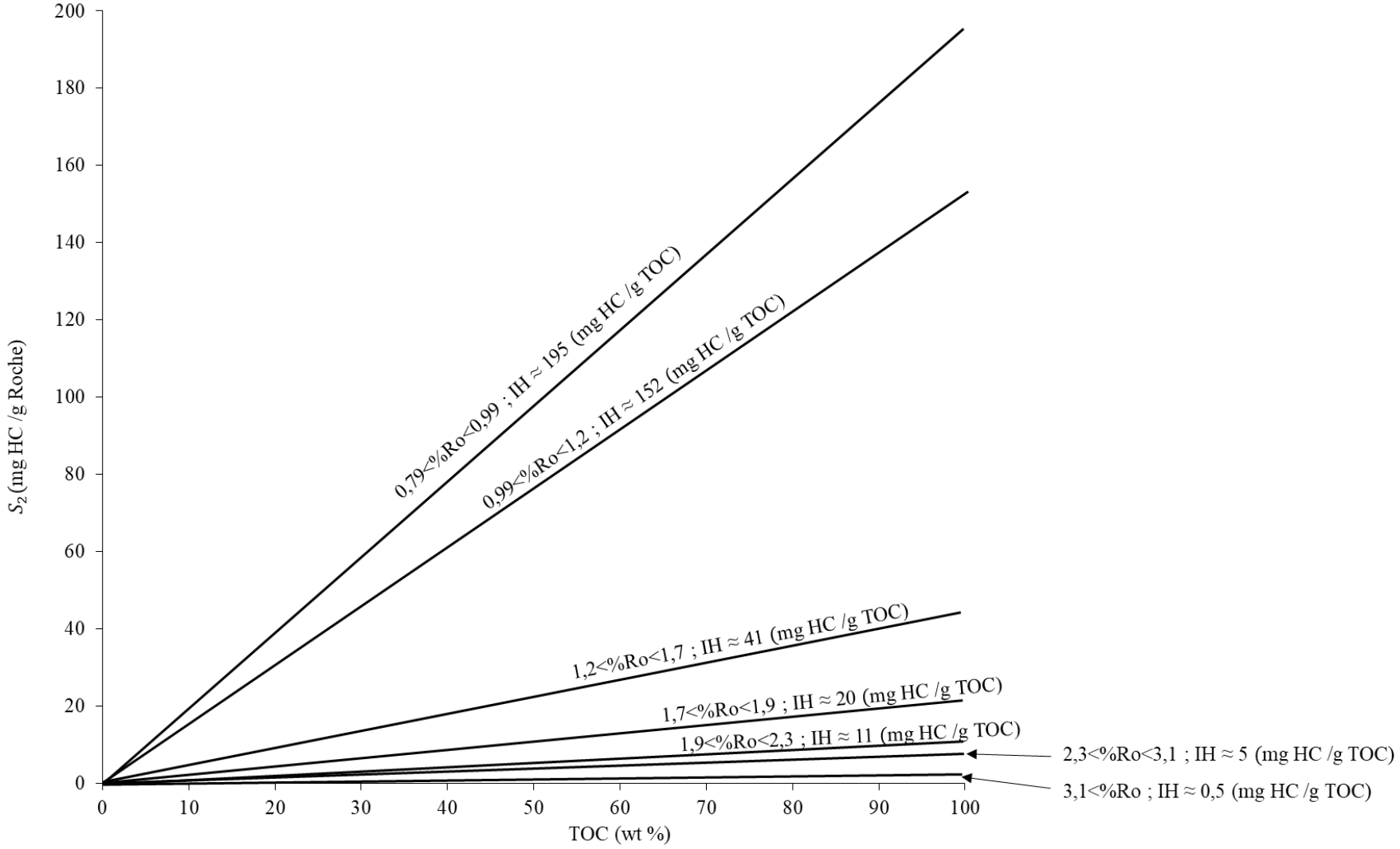


Figure IV.1.6: Relation de TOC (%) avec le potentiel pétrolier S2 (mgHc/groche) pour le kérogène de type III du bassin houiller lorrain déterminée à partir des données Rock-Eval et de réflectance de vitrinite (%Ro) du puits de Gironville 101.

IV.1.3 Taux de Génération des Hydrocarbures dans le puis Gironville 101.

Le taux de génération (TG), correspondant au taux de transformation tel que décrit par Pelet (1985), est calculé selon l'équation (IV.1.3) qui formule la loi de génération des hydrocarbures en fonction de la profondeur et, par conséquent, des niveaux de maturité des échantillons. Ce calcul repose sur les données du forage de Gironville 101 pour lequel le potentiel pétrolier initial (IH_0) correspond au niveau de maturité Tmax=445°C ou %Ro=0.80.

$$TG = \frac{1200 * (IH_0 - IH)}{IH_0 * (1200 - IH)} \quad \text{(IV.1.3)}$$

Avec :

IH_0 = 230 mg HC /g TOC.

IH : IH lu à une réflectance de vitrinite donnée.

La Figure IV.1.7 illustre l'évolution du taux de génération (TG) des hydrocarbures (taux de consommation d'IH) dans le bassin lorrain en fonction de la réflectance de la vitrinite. Elle permet d'établir l'équation (IV.1.4)

$$TG(VR) = -0.18 * VR^2 + 1.15 * VR - 0.70 \quad \text{(IV.1.4)}$$

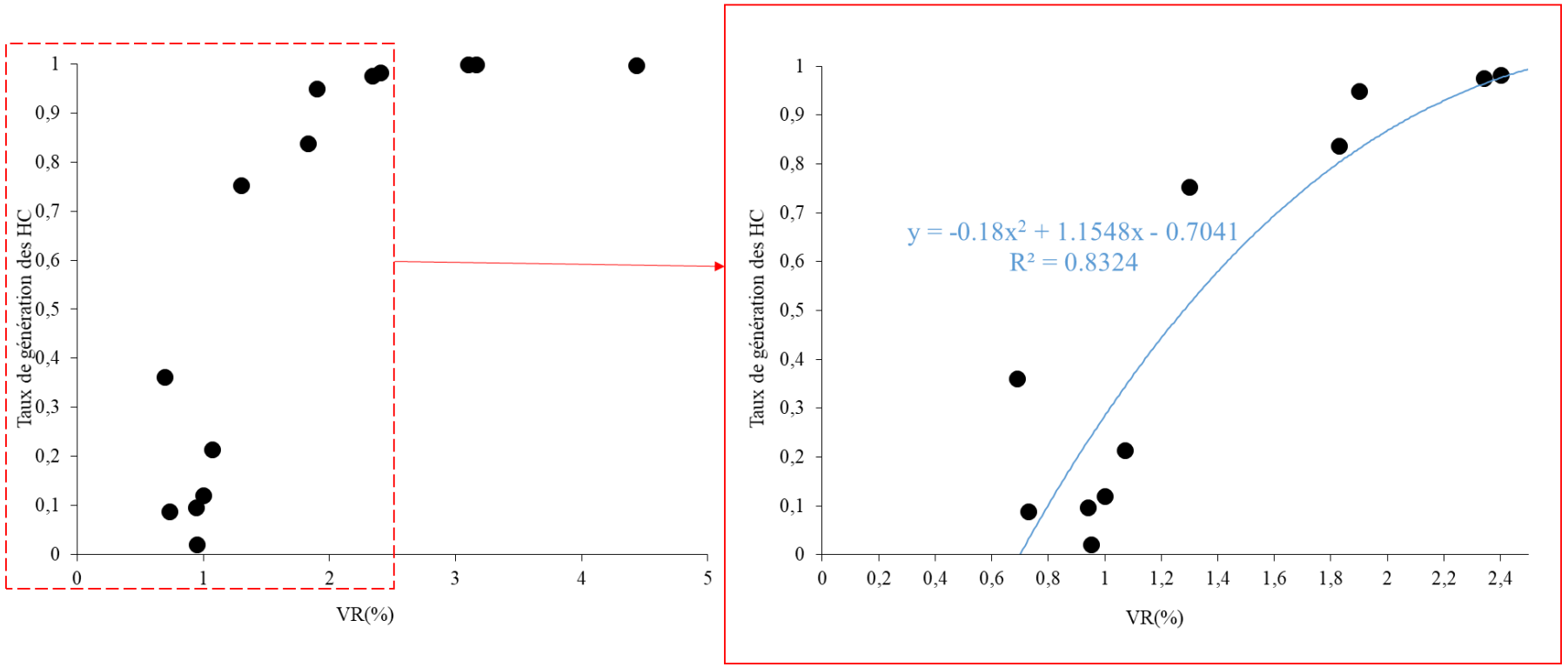


Figure IV.1.7: Évolution du taux de génération des hydrocarbures dans le bassin lorrain en fonction de la réflectance de la vitrinite dans le puits de Gironville 101.

IV.1.4 Méthodes de calcul du potentiel pétrolier initial, du maximum des volumes des hydrocarbures générés et de l'efficacité du système pétrolier.

IV.1.4.1 Du TOC résiduel au potentiel pétrolier résiduel

Les valeurs de TOC déduites à partir des signaux géophysiques tels que la résistivité, le sonique (delta log R) et le log de densité (Schmoker), sont évaluées le long des profils de forage avec le pas d'échantillonnage de la résolution diagraphique (section III.2).

Il est essentiel de souligner que ces TOC calculés représentent exclusivement des TOC actuels, considérés comme résiduels, résultant de la consommation du potentiel pétrolier pendant la genèse.

Pour les lithologies argileuses, la transition de ces TOC vers le potentiel pétrolier correspondant se réalise soit par l'équation de la Figure IV.1.4 soit par celle proposée dans le diagramme de Passey et al. (1990), ce qui équivaut à l'équation (IV.1.2) de Schlumberger. L'application de ces deux équations conduit aux mêmes résultats, car la corrélation entre le S2 (potentiel pétrolier) et le TOC des échantillons argileux du bassin lorrain coïncide avec la droite proposée par Passey et al. (1990) (Section IV.1.2) pour un LOM de 10.

En revanche, pour les lithologies présentant un TOC supérieur à 10%, il est obligatoire d'opter pour l'application des équations des droites illustrées dans la Figure IV.1.6, mieux adaptées aux lithologies charbonneuses du bassin houiller lorrain. Dans notre cas, les échantillons correspondant à une maturité d'entrée dans la catagenèse (Tmax=445°C ; %Ro=0.80 à 1%) présentent un IH moyen de 195 mgHC/g TOC (Figure IV.1.6) et un IH maximal de 230 mgHC/gTOC (Figure IV.1.5).

IV.1.4.2 Du Potentiel pétrolier résiduel au potentiel pétrolier initial

Afin de pouvoir calculer la quantité totale théorique d'hydrocarbures générée par les niveaux charbonneux en fonction de la profondeur, il est nécessaire le déterminer leurs potentiels pétroliers initiaux. Ceci est possible par l'intermédiaire de l'équation (IV.1.5), où TG(VR) est le taux de consommation du potentiel pétrolier en fonction du niveau de maturité thermique (tel que calibré dans la Figure IV.1.7, équation (IV.1.4)).

$$S_{2initial} = \frac{S_{2\ Actuel(\ Résiduel)}}{1 - \mathrm{TG}(VR)} \quad \text{(IV.1.5)}$$

L'équation est appliquée le long du profil des forages à chaque profondeur en utilisant les valeurs correspondantes de la réflectance de la vitrinite.

IV.1.4.3 Calcul des volumes maximaux d'hydrocarbures générés et perdus

Le calcul du volume maximum des hydrocarbures générés ($QHCgénérés$) est désormais possible à cette étape, sachant que pour chaque profondeur le long d'un forage, nous disposons de son potentiel initial et résiduel. L'équation (IV.1.6) permet simplement de calculer le potentiel pétrolier consommé, traduisant effectivement les quantités maximales d'hydrocarbures générés.

$$QHCgénérés\ =\ S_{2initial} - S_{2actuel(\ Résiduel)} \quad \text{(IV.1.6)}$$

*QHCgénérés est en mgHC/g de roche

Les volumes maximaux d'hydrocarbures générés sont calculés en tenant compte du fait que plus de 98 % du gaz généré dans les forages est du méthane, dont la densité est d'environ 0.7 kg/m³. Ainsi, la quantité d'hydrocarbures générés (QHCgénérés) calculée par l'équation (IV.1.6) est convertie en volume d'hydrocarbures générés (VHCmax) (équation (IV.1.7). Une prédiction des volumes d'hydrocarbures est également envisageable à cette étape en comparant les volumes maximum d'hydrocarbures générés avec les volumes in situ actuels des gaz (Gc) calculés dans le chapitre II.1 pour chaque profondeur le long d'un forage.

$$V\ HC\ perdus\ =\ V\ HCgénérés - Gc \quad \text{(IV.1.7)}$$

*V HC perdus est en (m^3 /tonne de roche)

IV.1.5 Résultats de l'application du workflow à partir des diagraphies

Dans le cadre de cette thèse, l'application des méthodes de calcul des volumes d'hydrocarbures à partir des diagraphies se concentre sur les puits qui disposent d'un jeu de données exhaustif,

incluant les diagraphies permettant déjà une estimation préliminaire des volumes de gaz in situ adsorbés dans les formations de charbon. Ces puits sont Fols 1A, DblS1 et Jhs 1 pour lesquels une évaluation des volumes de gaz adsorbés est proposée (section III.1). Cette démarche permet de comparer les volumes des gaz actuels avec les volumes maximum d'hydrocarbures générés dans les formations traversées par ces puits suite à l'histoire d'enfouissement du bassin houiller lorrain.

IV.1.5.1 Calcul des potentiels pétrolier S2 résiduel et initial

Les figures des annexes 17, 18 et 19 présentent l'application de l'approche à partir des diagraphies (Section III.2) pour les trois forages : Fols 1A, DblS1 et Jhs 1. À partir des signaux TOC (TRACK 1) (TOC modified Schmoker pour Fols 1A et DblS1, et TOC Multivariable Regression pour JHS S1) calculés dans la Section III.2,il a été possible d'estimer le S2 résiduel correspondant à ces données, tel qu'indiqué dans l'équation de la Figure IV.1.4 pour les lithologies charbonneuses. Le passage du potentiel pétrolier résiduel au potentiel initial se fait par l'équation (IV.1.5), et les résultats sont représentés dans la Figure IV.1.8. Cette figure représente le S2 résiduel et initial des couches de charbons, incluant les lithologies charbonneuses et argilites charbonneuses, dans le Carbonifère supérieur traversé par les trois forages de Fols 1A, Dbl S1 et Jhs1. Les valeurs sont regroupées dans des boîtes à moustaches, mettant en évidence une médiane d'un S2 initial (variable entre 105 et 115 mg/g de roches) et des valeurs de S2 résiduel variables entre (90 et 95 mg/g roche). La figure illustre ainsi une diminution du potentiel pétrolier entre l'état initial et l'actuel, d'environ 10 mgHC /g de roche.

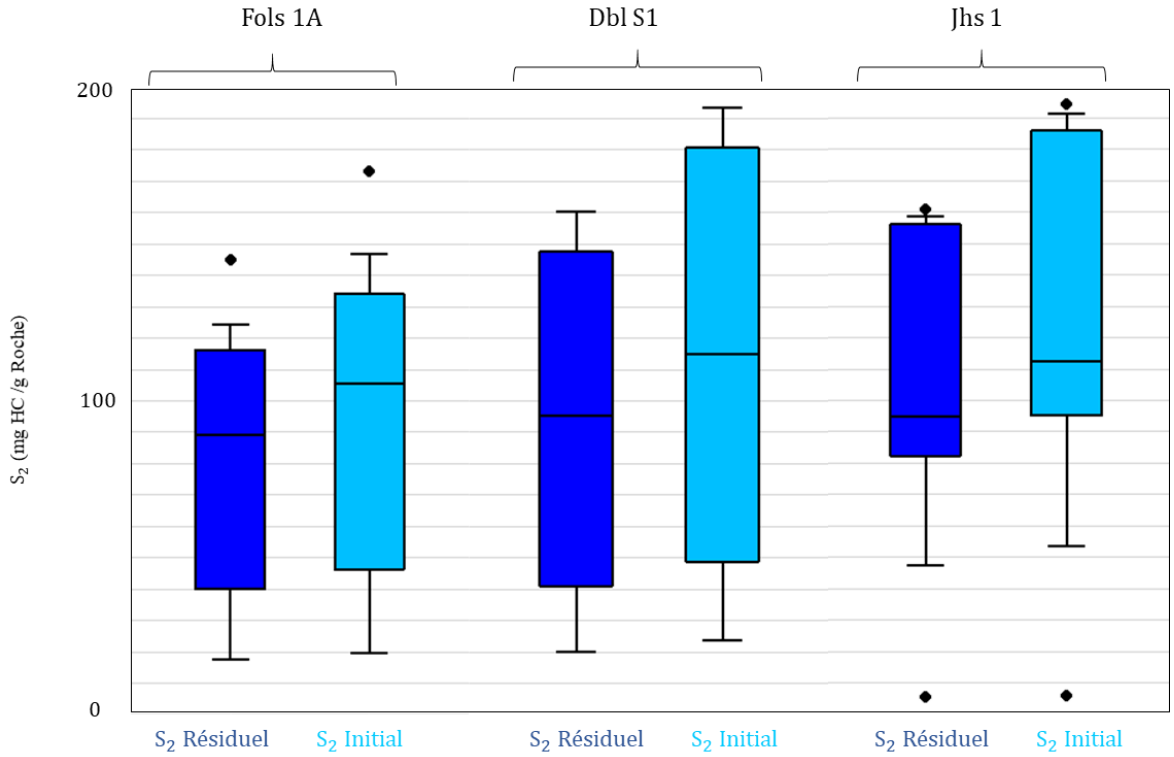


Figure IV.1.8: Potentiel pétrolier S2 résiduel et initial calculé à partir des diagraphies pour les forages de Fols 1A, Dbl S1 et Jhs1.

IV.1.5.2 Détermination des volumes d'hydrocarbures

L'application des équations (IV.1.5) et (IV.1.6) pour le calcul des volumes générés pendant l'histoire du bassin et leur comparaison avec les volumes actuels dans les forages de Fols 1, DBL S1 et JHS 1 dans le Carbonifère supérieur est présentée dans les figures des annexes 17, 18 et 19 (Track 5 et 6). Ces valeurs ont été analysées et représentées dans des diagrammes Box plot dans la Figure IV.1.9. Le volume des hydrocarbures adsorbés dans les couches de charbon présente une médiane variant entre 12 et 14 (m^3 /tonne de roche). Les volumes maximum générés dans les forages présentent des médianes variant entre 23 et 30 (m^3 /tonne de roche). La différence entre ces deux derniers volumes permet d'obtenir les volumes d'hydrocarbures perdus par l'équation (IV.1.7). Les valeurs représentent des moyennes variables entre 10 et 17 (m^3 /tonne Roche), indiquant une migration d'environ 45 % à 60 % des quantités totales des hydrocarbures générés initialement et traduisent l'efficacité du système pétrolier. Il faut prendre en compte que le volumes QHC perdues ne sont pas des systèmes clos. Les gaz migrés venant du bas peuvent remplacer progressivement les gaz produits dans la veine de charbon.

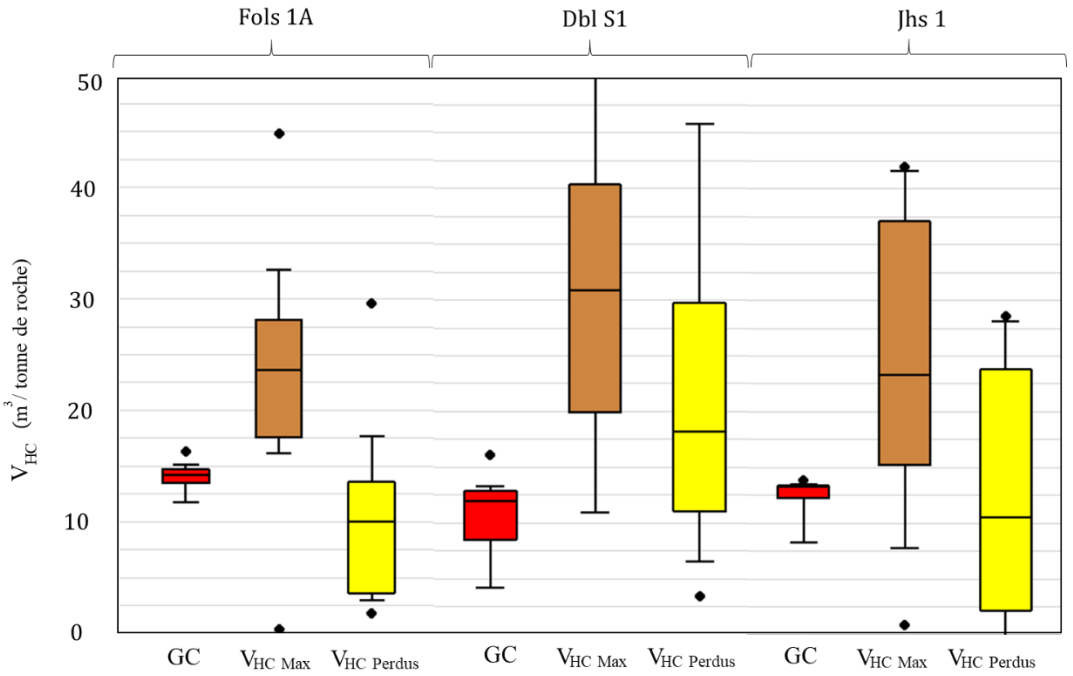


Figure IV.1.9: Volumes d'hydrocarbures calculés à partir des diagraphies pour les forages de Fols 1A, DBL S1 et JHS1 avec (GC : Hydrocarbures en place, V HC Max : Hydrocarbures max générés, V HC Perdus : Hydrocarbures perdus).

IV.2 Maturation artificielle

Cette approche vise à déterminer directement les volumes de gaz générés à partir de la maturation artificielle d'échantillons immatures prélevés, soit dans le forage de Fols 1A, soit sur les affleurements en Sarre (Figure IV.1.1). Les échantillons provenant des niveaux de roches-mères ont été soumis à la maturation artificielle par pyrolyse confinée en capsules d'or, dans le but d'identifier les différentes compositions de gaz et les volumes correspondants en fonction de la température de pyrolyse. Trois types de roches mères ont été utilisés pour ces expériences : deux charbons provenant du forage de Fols 1A et d'un affleurement à Burbach en Sarre, ainsi qu'une argilite charbonneuse de Fols A en Lorraine. Ces échantillons ont été choisis car ils représentent des états immatures, avec une (Tmax) inférieure à 450 °C et une réflectance de la vitrinite inférieur à 0,8.

IV.2.1 Caractéristiques géochimiques et pétrographiques des échantillons pour la maturation artificielle.

IV.2.1.1 Paramètres Rock-Eval et réflectance de la vitrinite

Le choix des échantillons utilisés pour la maturation artificielle est motivé par la nature de leur faciès et leur état de maturité. La connaissance de leurs paramètres géochimiques et

pétrographiques initiaux (Table IV.2.1 et Table IV.2.2) est essentielle car ils sont caractéristiques du potentiel pétrolier maximal de chaque échantillon. Leurs valeurs seront comparées à celles obtenues en fonction du niveau de maturation artificielle atteint après pyrolyse confinée.

L'échantillon de charbon de Burbach provient d'un affleurement d'âge Westphalien D localisé en Sarre). Il s'agit d'un charbon (High volatile bituminous B) constitué de 60% de vitrinite et 20% de liptine et 15% d'inertinite (Section III.3) avec une réflectance de vitrinite de 0,73 %, le classant dans la fenêtre immature, n'ayant généré aucun hydrocarbure (Section III.3.5.3).

Selon Dembicki (2009) basé sur Dow (1977), Senftle and Landis (1991), il est également classé dans la fenêtre de très faible maturité. Cet échantillon représente le charbon le moins mature de toute notre sélection de charbons. Son potentiel pétrolier est de IH=200mgHC/g COT.

Le charbon Sal017 a été prélevé à une profondeur de 860,7 mètres dans le puits Fols1a est issu de la formation de Trittelling (Westphalien D). Il est classé comme « High Volatile Bituminous A » en raison de sa réflectance de vitrinite de 0,76 % et sa composition macérale est de 97% de vitrinite. Cet échantillon est considéré comme étant immature à faiblement mature, avec aucune génération ou une génération limitée d'hydrocarbures selon les classifications de Dembicki (2009) et de Sweeney et Burnham (1990). Son potentiel pétrolier est de IH=249mgHC/g COT.

L'argilite Sal009 et le charbon argileux Sal005 proviennent de la formation de Laudrefang (Westphalien D) du forage Fols 1A, aux profondeurs respectives de 1184 mètres et 1270 mètres. Ces échantillons présentent des réflectances de vitrinite de 0,88 et 0.91% et sont donc plus matures que les charbons décrits ci-dessous, mais toutefois à la limite de l'amorce de la catagenèse tel que définit plus haut (Section III.3.5.1). Leurs potentiels pétroliers sont de IH=118mgHC/gCOT pour l'argilite et de 225mgHC/gCOT pour le charbon argileux.

Pour déterminer l'état de maturité des niveaux traversés par le forage Fols 1a, spécifiquement aux profondeurs où les échantillons de maturation artificielle ont été prélevés, une calibration a été effectuée. Cette calibration repose soit sur la détermination de la réflectance de la vitrinite à partir du Rock-Eval T max de tous les échantillons soumis à cette étude (Section III.3) (Figure IV.2.1a), soit sur la détermination de la réflectance équivalente de la vitrinite en utilisant l'équation d'évolution de la %Ro en fonction de la profondeur du forage Fols 1a (Figure IV.2.1b).

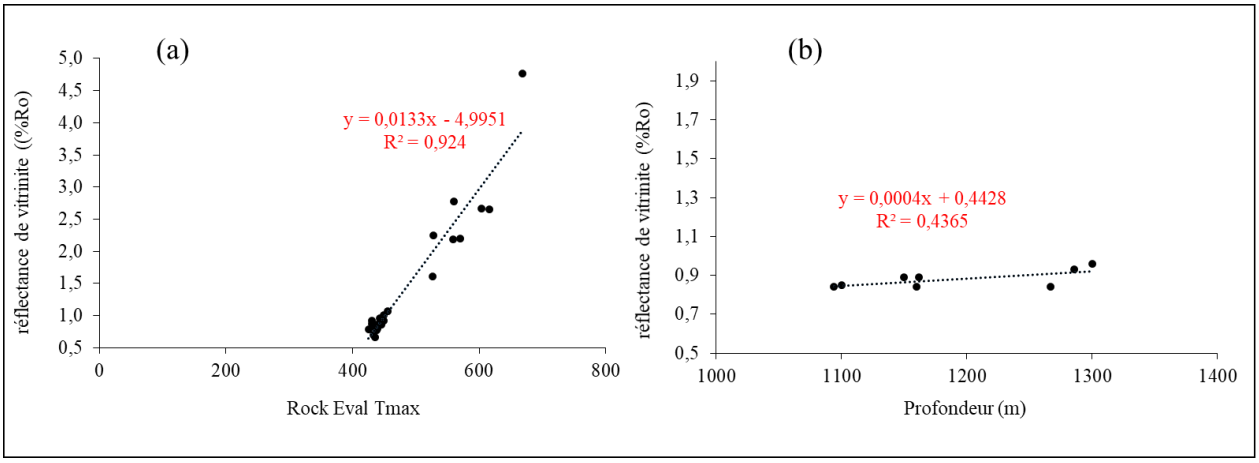


Figure IV.2.1: Équations utilisées pour l'estimation de la réflectance de la vitrinite à Fols 1A : (a) Équivalence entre Tmax et % de réflectance de la vitrinite pour tous les échantillons du bassin carbonifère lorrain (b) Évolution de la réflectance de la vitrinite en fonction de la profondeur dans le forage Fols 1A

L'application des deux équations présentées dans la Figure IV.2.1 permet de convertir les valeurs de Tmax obtenues par Rock-Eval ainsi que les profondeurs des échantillons en valeurs équivalentes de réflectance de la vitrinite pour les échantillons utilisés dans la maturation artificielle. Dans cette étude, la réflectance de la vitrinite considérée est la moyenne des valeurs obtenues à partir des deux équations respectives (Table IV.2.1).

Forage/Affleurement	ID	Lithologie	Profondeur	Age	%R Min (Figure IV.2.1a)	%R Max (Figure IV.2.1b)	%R moyenne
Fols 1a	Sal 017	Charbon	860.50	Westphalien D	0.72	0.79	**0.76**
Fols 1a	Sal 005	Charbon argileux	1270.50	Westphalien D	0.80	0.95	**0.88**
Fols 1a	Sal 009	Argile	1184.00	Westphalien D	0.91	0.92	**0.91**

Table IV.2.1: Estimation de la réflectance de la vitrinite des échantillons utilisés pour la maturation artificielle du forage Fols 1A

Location	ID	Profondeur (m)	Formation	Lithologie	S1(mg/g)	S2(mg/g)	PI	Tmax (°C)	TOC (%)	HI (mgHC/gTOC)	OI ($mgCO_2$/gTOC)	PRV (%R)
Burbach	Sal 104	Affleurement	Westphalian D	Charbon	1.87	143.03	0.01	428	71.45	200	20	0.66
FOLS 1a	SAL 017	860.5	Westphalian D	Charbon	3.32	188.57	0.02	430.00	75.62	249.00	9.00	0.76
FOLS 1a	SAL 005	1270.5	Westphalian D	Charbon Argileux	2.68	72.49	0.04	436.00	32.18	225.00	4.00	0.88
FOLS 1a	SAL 009	1184	Westphalian D	Argilite	0.06	2.70	0.02	444.00	2.28	118.57	9.21	0.91

Table IV.2.2: Paramètres Rock-Eval des échantillons utilisés dans la maturation artificielle.

IV.2.1.2 Analyses macérales :

L'analyse macérale a été conduite comme décrite dans la section III.3.2.1.3. Les résultats sont présentés dans la Table IV.2.3 et les macrophotographies des groupes macéraux des deux charbons sont représentées dans la Figure IV.2.2. Les deux échantillons de charbon contiennent peu de matière minérale (<3,20 %). Le charbon de Burbach est un duroclarite avec 63,52 % de vitrinite, représentée principalement par la collotelinite et la vitrodetrinite. Le charbon de Fols 1A est une vitrite avec 99,21 % de vitrinite, majoritairement représentée par la collotelinite et la desmocollinite. Les pourcentages d'inertinite sont de l'ordre de 15 %, majoritairement sous forme de fusinite, tandis que les liptinite sont autour de 19 % dans le charbon de Burbach, réparties entre l'alginite, la sporinite, la cutinite et la résinite. Par contre, les pourcentages de liptinite et d'inertinite sont pratiquement nuls dans le charbon de Fols 1A (Table IV.2.3).

Les deux échantillons, le charbon argileux et l'argilite de Fols 1a, présentent une fraction minérale plus élevée que les deux charbons, avec des valeurs de 13 % et 12 % respectivement pour le charbon argileux et l'argilite. Ces échantillons se caractérisent par une microlithotype de Duroclarite, principalement composée de vitrinite à hauteur de 63 % et 62 % respectivement sous forme de collotelinite, suivie de 19 % de liptinite sous forme de sporinite pour le charbon argileux et de 24 % de liptinite sous forme de sporinite et liptodetrinite pour l'argilite. Ils contiennent également 4 % et 2 % d'inertinite sous forme de semifusinite et de fusinite pour le charbon argileux et l'argilite respectivement (Table IV.2.3).

Location	ID	Profondeur (m)	Lithologie	Vitrinite (%)	Inertinite (%)	Liptinite (%)	Matière minérale (%)	Microlithotype (%)
FOLS1A	SAL 017	860.5	charbon	97.18	0.78	0.00	2.05	Vitrite
BURBACH	Sal104	affleurement Sarre	Charbon	61.49	15.62	19.69	3.20	Duroclarite
FOLS1A	SAL 005	1270.50	Charbon argileux	63.00	4.00	19.00	13.00	Duroclarite
FOLS1A	SAL 009	1184.00	Argilites	62.00	2.00	24.00	12.00	Duroclarite

Table IV.2.3: Pourcentage des groupes macéraux et de lmatière minérale des charbons utilisés dans la maturation artificielle (Les pourcentages des sub-macéraux sont dans les Annexes 11,12 et 13)

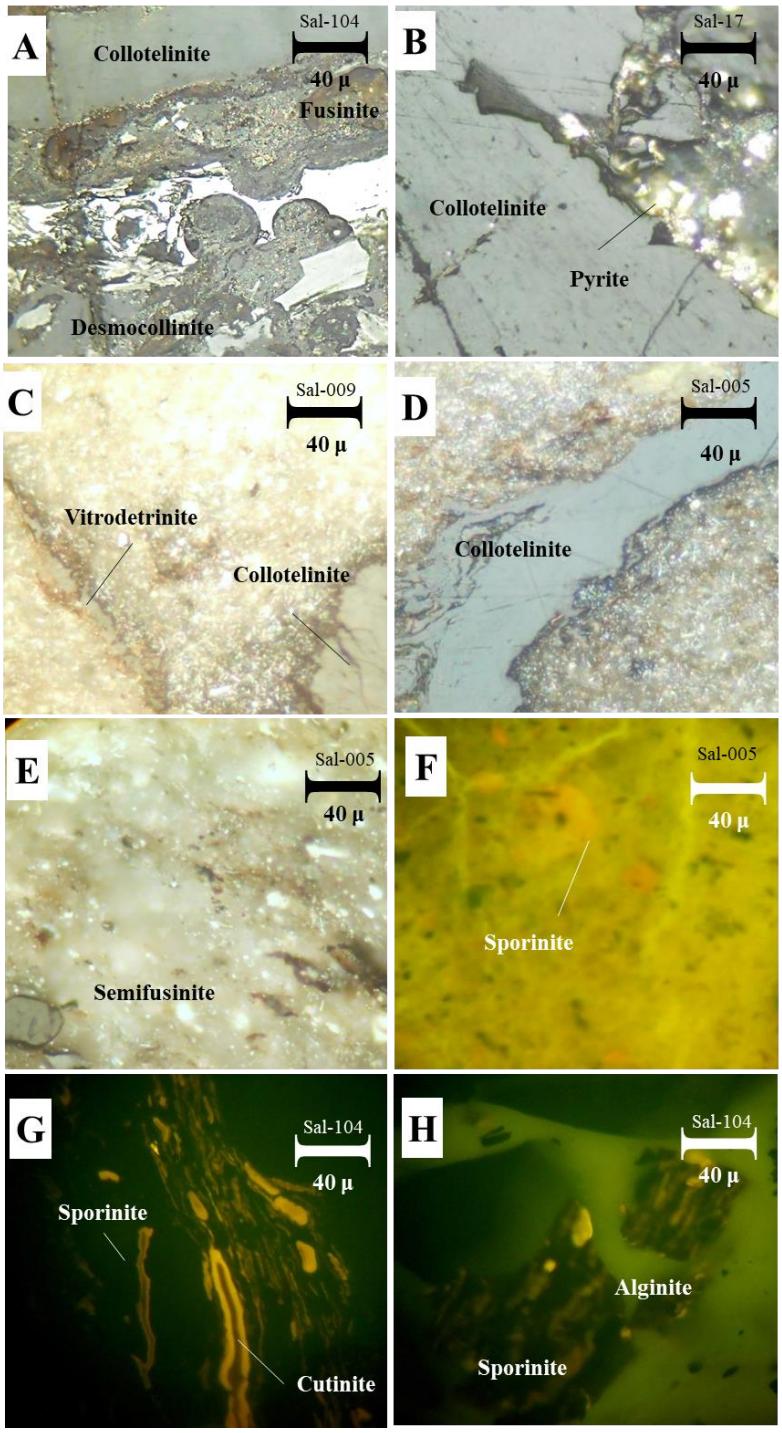


Figure IV.2.2: Exemples d'observations sur des sections polies de roches totales en lumière blanche réfléchie et en lumière bleue, illustrant les groupes macéraux des charbons choisis pour la maturation artificielle. En lumière blanche réfléchie : A : Charbon de Burbach, B : Charbon de Fols 1A, C : Argilite de Fols 1A, D et E : Charbon argileux de Fols 1A. En lumière bleue : F : Charbon argileux de Fols 1A, G et H : Charbon de Burbach.

IV.2.2 Résultats de la maturation artificielle

Le charbon de Burbach a été pyrolysé à des températures de 300, 330, 350, 380, 400, 450, et 470°C à 300b pendant 24h, tandis que les échantillons de Fols 1A (charbon, charbon argileux et d'argilite) ont été pyrolysés à des températures de 300, 330, 350 et 450°C à 300b pendant 24h. Ces conditions expérimentales permettent d'amener les échantillons d'un état de maturité correspondant à la diagenèse jusqu'à la métagenèse.

IV.2.2.1 Analyse des effluents de pyrolyse par TD-MDGC des roches-mères après maturation artificielle.

Les résultats de l'analyse par TD-MDGC indiquent qu'au cours de la maturation artificielle, les échantillons ont généré du dioxyde de carbone, du méthane, de l'éthane, du propane, de l'isobutane et du n-butane ainsi que des hydrocarbures nC_5^+ (Figure IV.2.3).

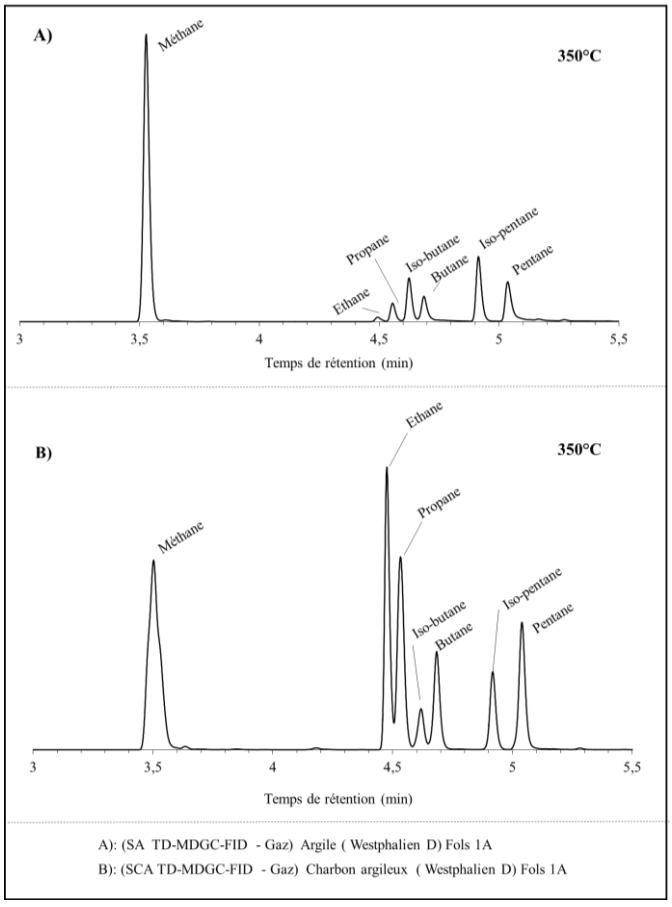


Figure IV.2.3: Chromatogrammes des gaz générés par les échantillons d'argilite et de charbon argileux de Fols 1A après pyrolyse confinée à 350°C, 300b pendant 24h.

Les gaz générés pendant la maturation artificielle des roches mères en fonction des températures sont quantifiés à partir du protocole décrit dans la section II.3.2.1.6. Les résultats de la maturation sont exprimés en pourcentage molaire et en mg HC/g TOC et en mg HC/g roche.

IV.2.2.1.1 Evolution du pourcentage molaire des gaz en fonction de la température de pyrolyse confinée

La Figure IV.2.4 montre les pourcentages molaires de la génération des différents gaz en fonction des températures de pyrolyse pour les quatre échantillons disponibles. Les premiers résultats indiquent que le CO_2 est majoritaire.

- Pour les charbons de Burbach et de Fols1a, on observe que le CO_2 diminue de manière constante, passant de 86% à 300°C à 20% à 470°C, tandis que le CH_4 augmente significativement, passant de 10.05% à 300°C à 69.91% à 470°C. À 380°C, le méthane devient majoritaire par rapport au CO_2. Les autres hydrocarbures (C_2H_6, C_3H_8, iC_4, nC_4) augmentent jusqu'à environ 400°C, puis diminuent ou stagnent.
- Pour l'échantillon de charbon de Fols1a, le CO_2 est très élevé à 250°C (98.71%) et diminue progressivement à 32.19% à 400°C. Le CH_4 augmente avec la température, atteignant 44.80% à 400°C, et les autres hydrocarbures (C_2H_6, C_3H_8, iC_4, nC_4) augmentent de manière plus marquée à des températures plus élevées.
- Pour l'échantillon de charbon argileux, le CO_2 diminue de 97.87% à 250°C à 22.15% à 450°C, tandis que le CH_4 augmente significativement, particulièrement après 350°C. Les hydrocarbures (C_2H_6, C_3H_8, iC_4, nC_4) présentent une augmentation progressive jusqu'à environ 400°C, puis une légère diminution.
- Pour l'échantillon d'argilite, le CO_2 diminue de 95.98% à 250°C à 43.16% à 450°C, et le CH_4 augmente de 3.70% à 50.87% sur la même plage de température. Les autres hydrocarbures augmentent progressivement avec des variations plus marquées à des températures plus élevées.

Entre 300 et 350°C, le CO_2 est prédominant, ce qui correspond à la décomposition de groupes fonctionnels oxygénés tels que les carboxyles et carbonyles, marquant ainsi la diagénèse. Entre 350 et 400°C, la production de méthane, d'éthane et de propane augmente, indiquant le craquage du kérogène, ce qui correspond au stade de catagenèse. Entre 450-470°C, le méthane devient largement dominant, ce qui est caractéristique du stage de métagenèse.

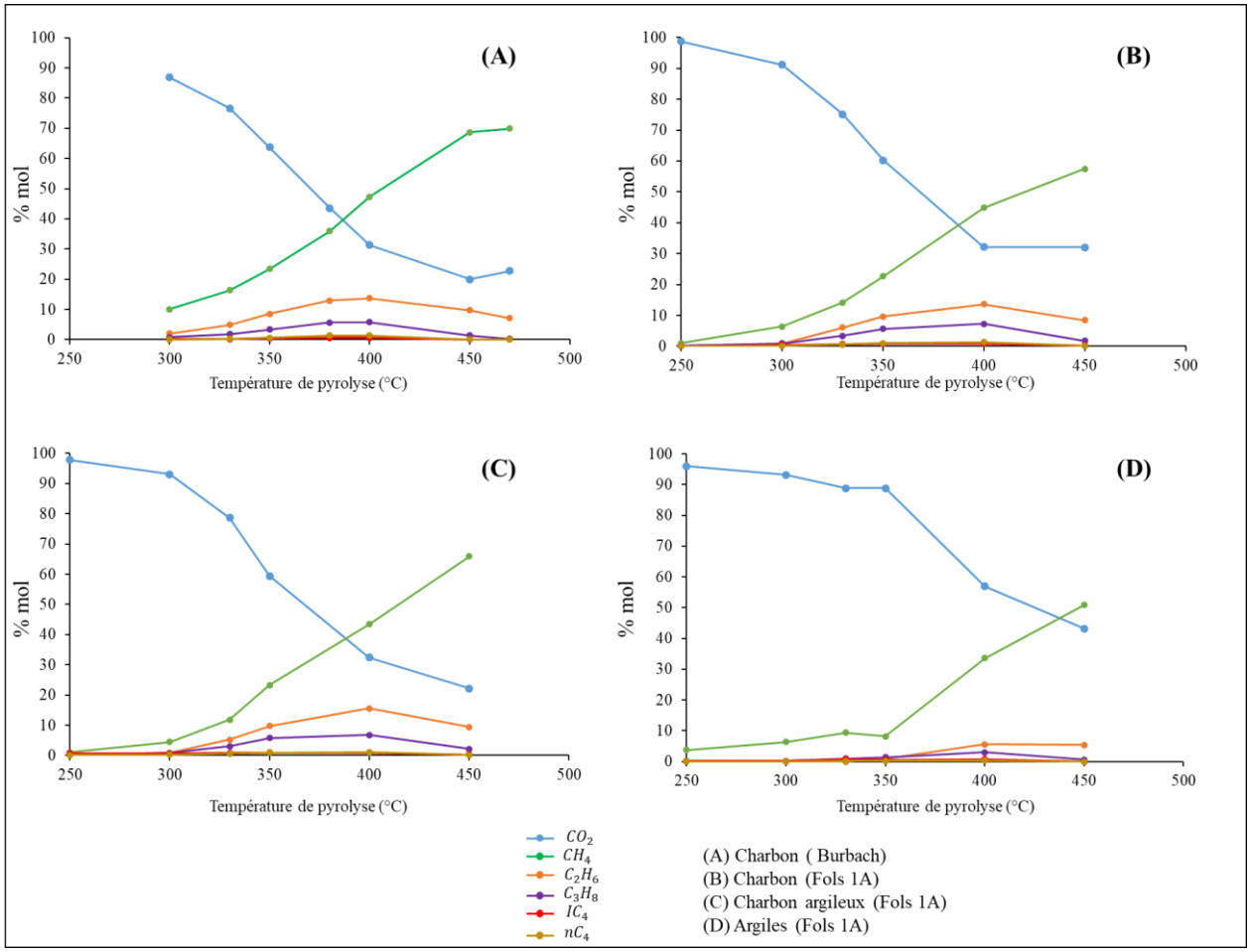


Figure IV.2.4: Evolution pourcentages molaires de gaz et d'hydrocarbures générés au cours de la maturation artificielle des roches mères de bassin lorrain.

La Figure IV.2.5 présente l'évolution des pourcentages molaires des hydrocarbures en excluant le CO_2. On observe clairement que CH_4 est le constituant hydrocarboné majoritaire avec des proportions de 50% à 90% par rapport aux autres hydrocarbures.

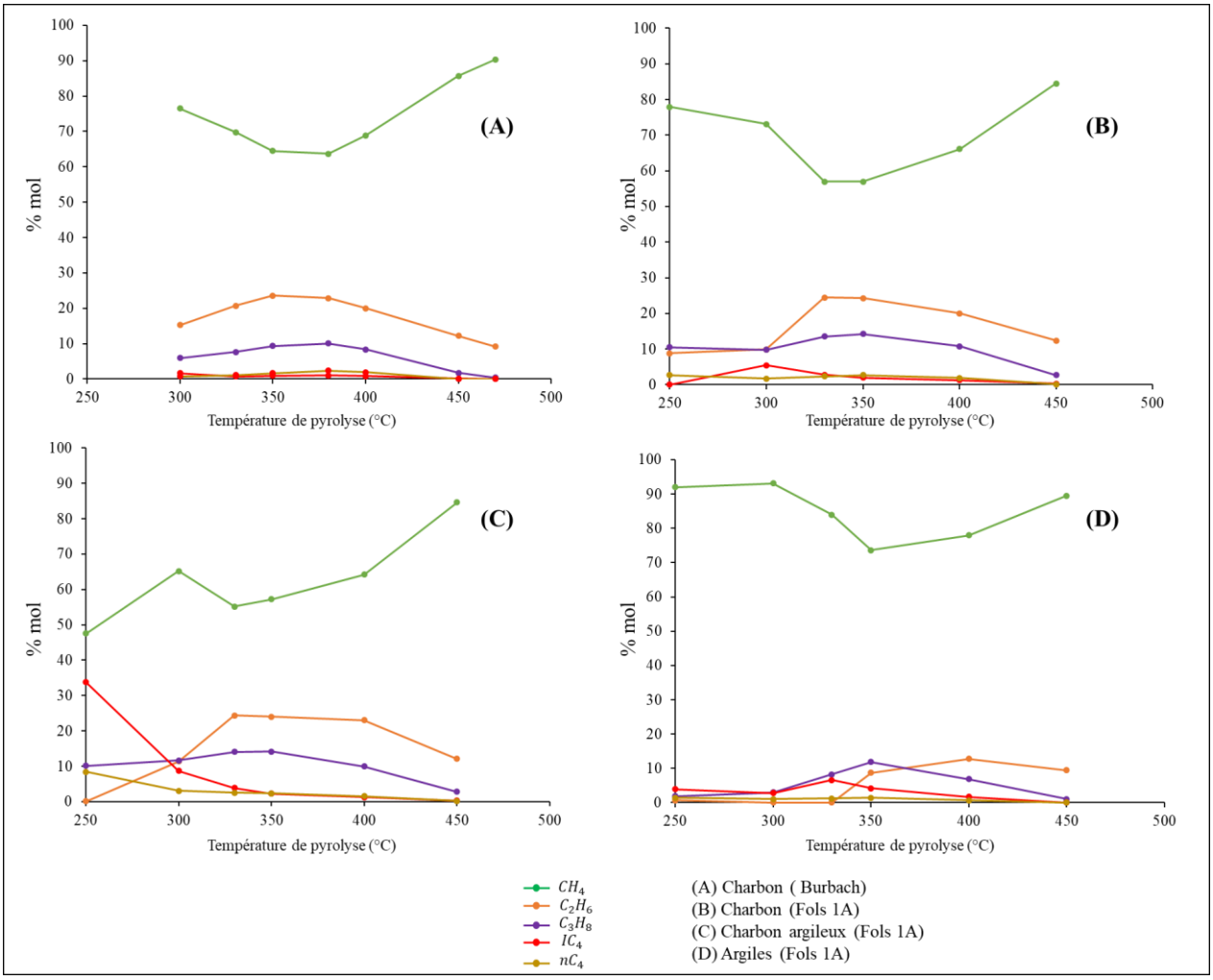


Figure IV.2.5: Évolution des pourcentages molaires d'hydrocarbures générés au cours de la maturation artificielle des roches mères du bassin carbonifère lorrain en excluant le CO_2 du bilan.

IV.2.2.1.2 Evolution des quantités de CO_2 et d'hydrocarbures en fonction de la température de pyrolyse confinée

Les données des volumes de gaz en fonction de la température de pyrolyse sont également représentées en quantité de gaz en mg d'hydrocarbures par gramme de roche (Figure IV.2.6) afin d'observer l'évolution de la génération en quantité. De plus, elles sont présentées en mg d'hydrocarbures par carbone organique, en tenant compte du TOC Rock-Eval des roches mères du bassin lorrain (Figure IV.2.7).

La Figure IV.2.6 montre que les échantillons de roches mères du bassin commencent à générer des gaz représentés majoritairement par le CO_2. Ce dernier augmente de 60 mg/g de roche pour le charbon de Burbach, de 20 mg/g de roche pour le charbon de Fols1a, d'environ 10 mg/g de roche pour le charbon argileux de Fols1a, et de 3 mg/g de roche pour l'argilite de Fols1a à une

température inférieure à 300°C. En revanche, la production de méthane et des autres hydrocarbures reste très faible pour tous les échantillons.

La quantité de CO_2 continue d'augmenter jusqu'à une température d'environ 425°C, où le méthane devient majoritaire, dépassant les 80 mg/g de roche pour le charbon de Burbach. Pour le charbon de Fols1a même à 450°C le CO_2 reste majoritaire.

Pour le charbon argileux de Fols1a, les quantités de méthane et d'autres gaz hydrocarbures augmentent significativement, le méthane dépassant les quantités de CO_2 à environ 420°C, atteignant plus de 25 mg/g de roche. Cette tendance n'est pas observée pour l'échantillon d'argilite Fols1a, qui montre une faible production de méthane, passant de 0.04 mg/g à 250°C à 2.04 mg/g à 450°C. Le CO_2 présente une augmentation modérée, de 3.02 mg/g à 250°C à 4.75 mg/g à 450°C, et les autres hydrocarbures restent en quantités très faibles tout au long de la gamme de températures. Ceci est attribuable à la faible quantité de TOC, impliquant une comparaison basée sur des unités en mg par gramme de TOC (Figure IV.2.7).

La Figure IV.2.7 représente l'évolution des gaz générés en fonction de la température de pyrolyse, normalisée par les quantités de matière organique en mg/g TOC. Ces valeurs seront discutées dans la section (IV.2.2.1.3) en comparant le méthane généré par chaque échantillon dans le même graphe, permettant ainsi de décrire la génération des gaz en fonction de la qualité des roches mères, caractérisée par leur TOC.

En résumé, à basse température (300-350°C), le CO_2 est le gaz dominant, ce qui peut être attribué à la décomposition des groupes fonctionnels oxygénés tels que les carboxyles et les carbonates. À des températures intermédiaires (350-400°C), la production de méthane, éthane et propane augmente, indiquant la rupture des structures organiques plus complexes. À haute température (450-470°C), le méthane devient largement dominant, suggérant une maturation avancée des échantillons où les hydrocarbures plus légers sont générés.

La Figure IV.2.7 indique que les rendements en CO_2 sont les plus élevés pour les kérogènes des argilites de Fols1A (jusqu'à 208 mgCO_2/g COT à 450°C), suivi du charbon Burbach (153 mgCO_2/g COT à 470°C). Le charbon et le charbon argileux de Fols 1A génèrent moins de CO_2 (72 et 74 mg CO_2/g COT à 450°C respectivement).

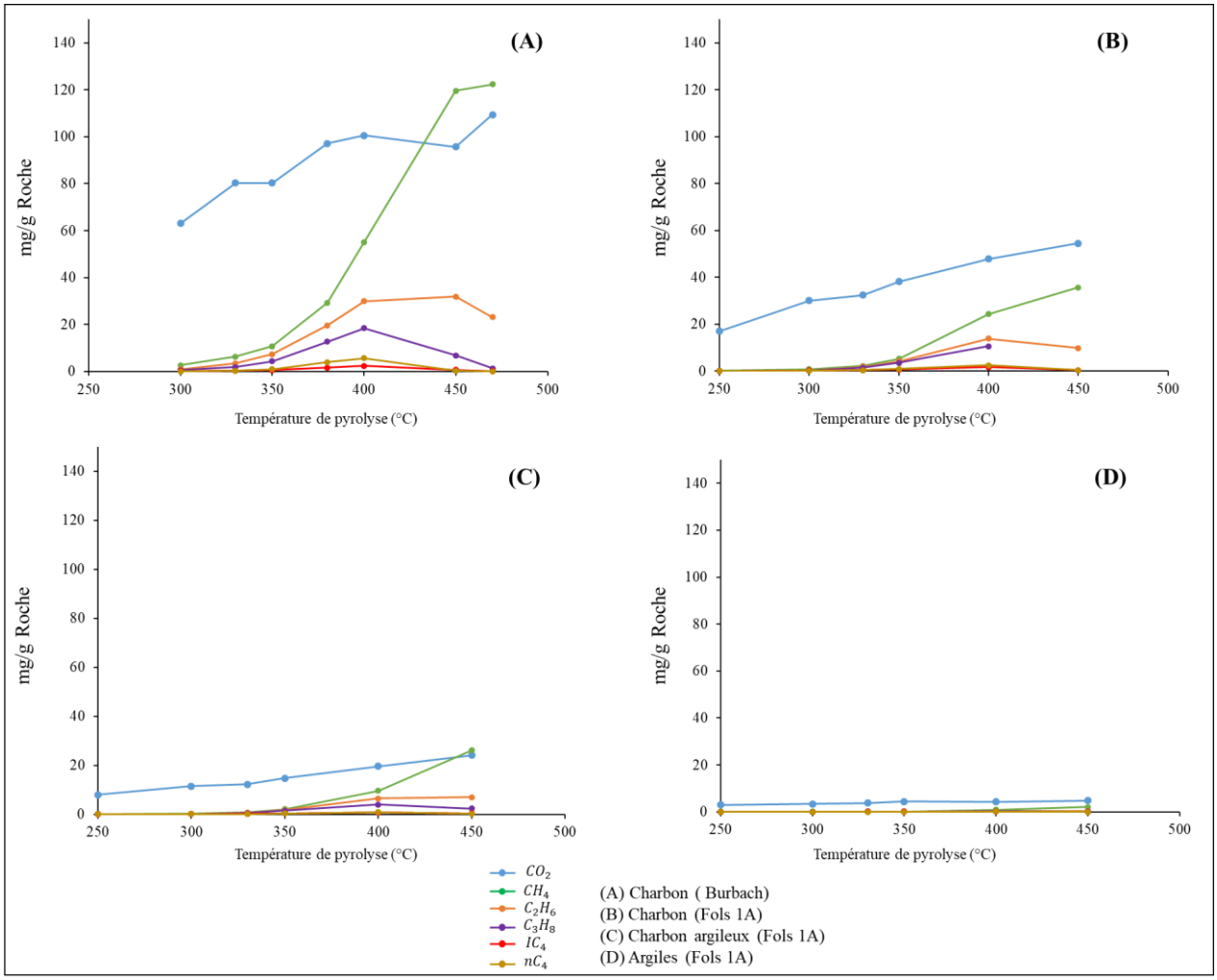


Figure IV.2.6: Évolution des quantités de gaz en mg /g roche générés au cours de la maturation artificielle des roches mères du bassin lorrain.

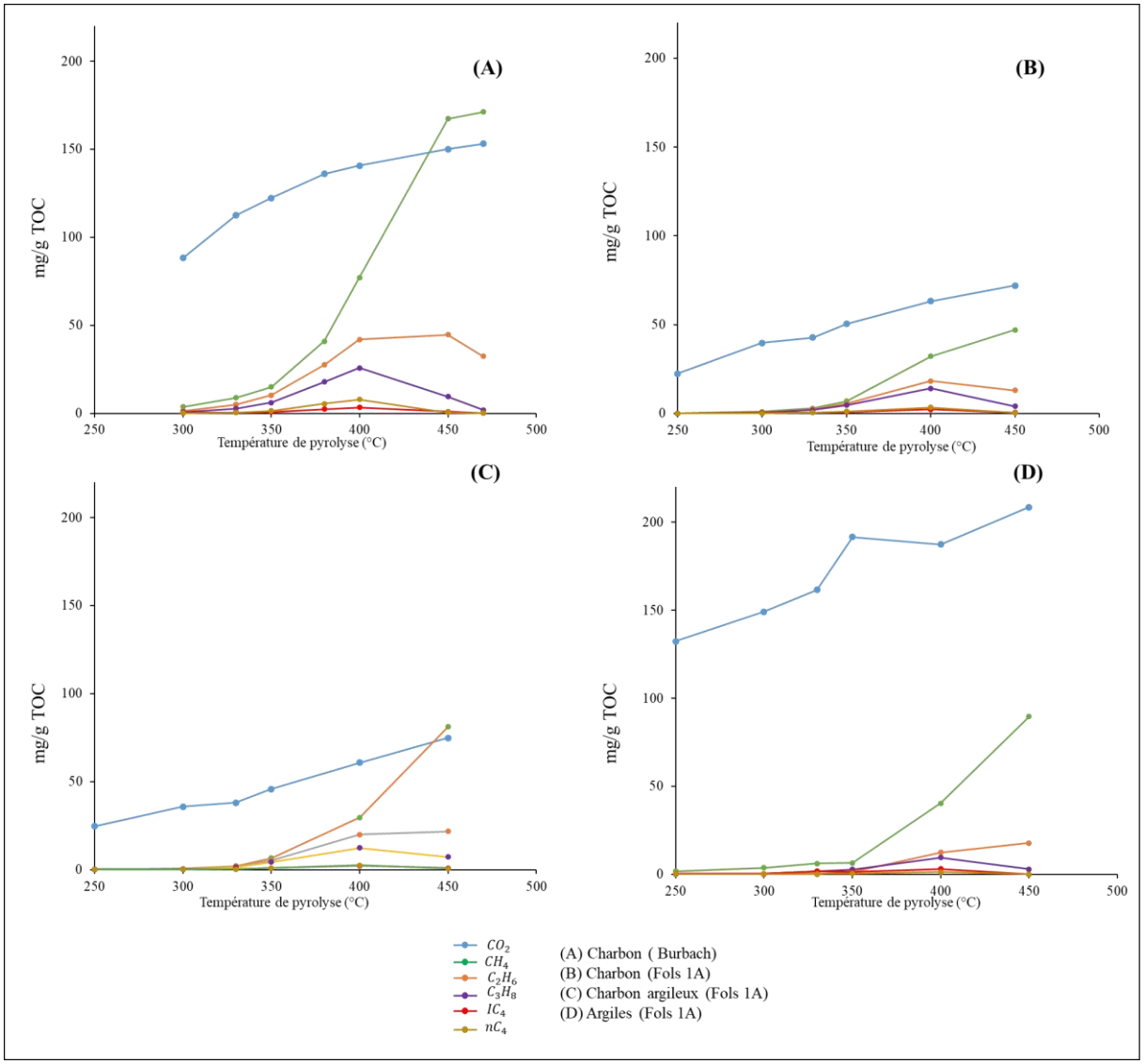


Figure IV.2.7: Évolution des quantités de gaz en mg /g TOC générés au cours de la maturation artificielle des roches mères du bassin lorrain.

IV.2.2.1.3 Evolution des quantités de CH_4 en fonction de la température de pyrolyse confinée

La Figure IV.2.8 représente la combinaison des résultats des quantités de méthane générées en fonction des températures de pyrolyse des quatre échantillons dans un même diagramme. En observant cette figure, on constate que les quantités de méthane générées par les charbons sont nettement supérieures à celles des deux échantillons de charbon argileux et d'argilite.

En effet, à une température de pyrolyse de 450°C, le charbon de Burbach génère environ 120 mg/g de roche de méthane et 35 mg/g de roche pour le charbon de Fols 1A. Cette différence peut être attribuée à la composition macérale des charbons. Le charbon de Burbach contient

20% de liptinite, qui craque plus précocement que la vitrinite qui constitue 97% de la composition macérale du charbon de Fols 1A.

Pour l'échantillon de charbon argileux de Fols 1A, le comportement de génération des gaz est similaire à celui observé pour les charbons de Burbach et de Fols 1A. Le méthane dépasse 25 mg/g de roche (Figure IV.2.8.a). Les argilites montrent également une augmentation de la génération des hydrocarbures avec la température, le méthane atteignant 2.04 mg/g de roche (Figure IV.2.8.a), ce qui est très faible par rapport aux trois roches mères précédentes.

La normalisation des quantités de méthane généré par la quantité de matière organique, exprimée en mg/g de COT, permet de pallier le problème de richesse en TOC des différents échantillons (Figure IV.2.8.b). Ainsi pour le charbon, le charbon argileux et l'argilite de Fols1a, à 450°C, les valeurs de genèse de méthane sont de 47 mg/g COT pour le charbon Sal017, 82 mg/g COT pour le charbon argileux Sal005 et 89 mg/g COT pour l'argilite Sal009 de Fols 1A. Ceci suggère que le poteniel gazier net des kérogènes provenant des faciès de charbons argileux et d'argilite ne sont pas négligeables par rapport à des charbons comme Sal017.

Cependant, le charbon de Burbach présente une valeur de genèse de méthane nettement plus élevée à la même température de pyrolyse, avec 171 mg/g COT (Figure IV.2.8.b). Cela indique une meilleure qualité de génération de méthane à cette température, probalement liée à un pourcentage plus élevé de liptinite dans cet échantillon.

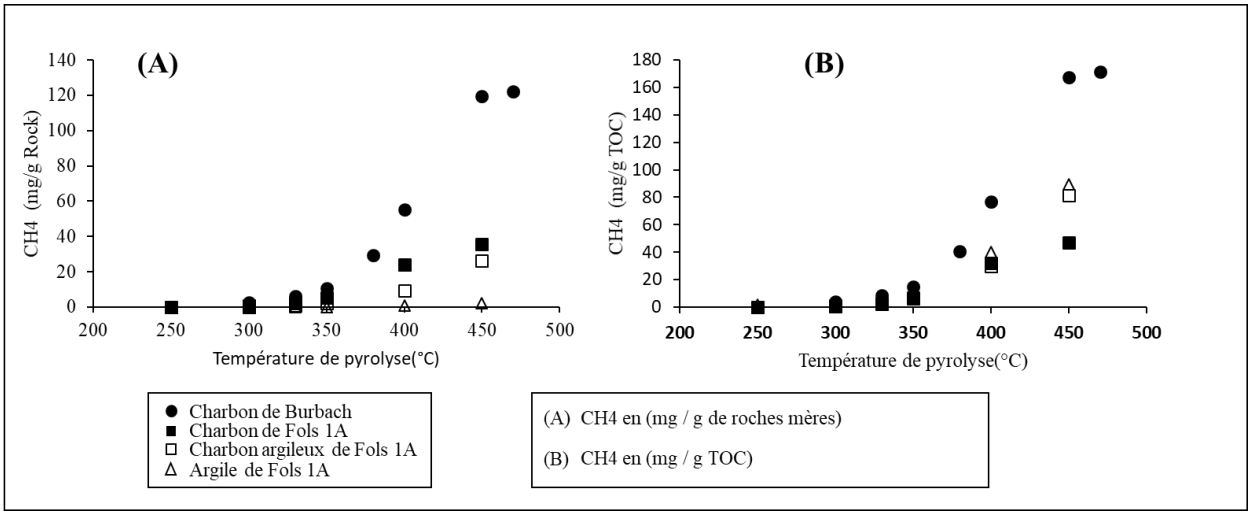


Figure IV.2.8: Évolution des quantités de méthane en mg /g TOC générés au cours de la maturation artificielle des roches mères du bassin lorrain.

IV.2.2.2 Analyse Rock-Eval des échantillons après maturation

Pour évaluer les volumes d'hydrocarbures générés en fonction de la maturité de la matière organique, et donc de la température de pyrolyse, les effluents solides issus de la maturation artificielle à chaque température de pyrolyse sont soumis à une analyse Rock-Eval. Cela permet de comparer le potentiel pétrolier S2 de chaque état de maturité au potentiel initial et de calculer la différence entre ces deux paramètres, ce qui traduit directement les volumes d'hydrocarbures maximum générés à pour chaque état de maturité.

Pour cela, il est nécessaire d'établir une correspondance entre la température de pyrolyse et les états de maturité de la matière organique, représentée par la réflectance de la vitrinite. Cette correspondance est illustrée dans la Figure IV.2.9 et les Tables IV.2.4, IV.2.5 et IV.2.6, qui montrent la calibration de la pyrolyse confinée et la réflectance de la vitrinite des charbons de Burbach et de Fols 1A. les valeurs des VR correspondant à ces températures de pyrolyse changent avec la durée de chauffe. Ainsi, pour un type de faciès donné (charbon, charbon argileux, argilite), il est possible pour un niveau de maturité spécifique atteint en maturation artificielle (identifié par la réflectance de la vitrinite) de déterminer le potentiel pétrolier (Figure IV.2.9a), les quantités de méthane et de CO_2 générés (Figures IV.2.9 et IV.2.10).

Formation	Réflectances de vitrinite	Température de pyrolyse (°C)	S2 initial (mg/g roche)	S2 (mg/g roche)	Q HC max (mg/g roche)	Méthane (mg/g roche)
Stéphanien-Westphalien D sup	<0.8 %	< 290	188.57	188 > S2 >160	0.57 < Q HC < 28.57	0.06 < CH_4 < 0.77
Westphalien D-C	0.8% < VR < 1.2%	290 < T (°C) < 340	188.57	160 > S2 > 140	28.57 < Q HC < 48.57	0.77 < CH_4 < 3.00
Westphalien B	1.2% < VR < 2%	340 < T (°C) < 400	188.57	140 > S2 > 49.67	48.57 < Q HC < 138.9	3.00 < CH_4 < 24.27
Westphalien A	> 2.4 %	> 420	188.57	30 > S2 > 19.16	158.9 < Q HC < 169.41	24 < CH_4 < 35.6

Table IV.2.4: Quantités d'hydrocarbures générés en fonction du degré de maturité des échantillons de charbon SAL017 (Fols 1A), en comparant les potentiels pétroliers S2 avant et après maturation, ainsi que les quantités de méthane généré par maturation artificielle

Formation	Réflectances de vitrinite	Température de pyrolyse (°C)	S2 initial (mg/g de roche)	S2 (mg/g de roche)	Q HC Max (mg/g de roche)	Méthane (mg/g de roche)
Stéphanien-Westphalien D sup	<0.8 %	< 290	183	183 > S2 >143	0 < Q HC < 40	< 2.65
Westphalien D-C	0.8% < VR < 1.2%	290 < T (°C) < 340	183	183 > S2 > 126	0 < Q HC < 57	2.56 < CH_4 < 10.73
Westphalien B	1.2% < VR < 2%	340 < T (°C) < 400	183	126 > S2 > 56.22	57 < Q HC < 126.78	10.73 < CH_4 < 55.07
Westphalien A	> 2.4 %	> 420	183	40 > S2 > 14.53	143 < Q HC < 168.47	55.04 < CH_4 < 122

Table IV.2.5: Quantités d'hydrocarbures générés en fonction du degré de maturité de l'échantillon de charbon de Burbach, en comparant les potentiels pétroliers S2 avant et après maturation, ainsi que les quantités de méthane généré par maturation artificielle.

Formation	Réflectances de vitrinite	Température de pyrolyse (°C)	Charbon argileux	Argilite
Stéphanien-Westphalien D sup	<0.8 %	< 290	<0.2	<0.08
Westphalien D-C	0.8% < VR < 1.2%	290 < T (°C) < 340	0.2 < CH_4 < 2.10	0.08 < CH_4 < 0.15
Westphalien B	1.2% < VR < 2%	340 < T (°C) < 400	2.10 < CH_4 < 9.56	0.15 < CH_4 <1
Westphalien A	> 2.4 %	> 420	10 < CH_4 < (Max =30 ?)	1 < CH_4 < (Max =2 ?)

Table IV.2.6: Quantité de d'hydrocarbures générés en fonction du degré de maturité les échantillons de charbon argileux et argilite de Fols 1A.

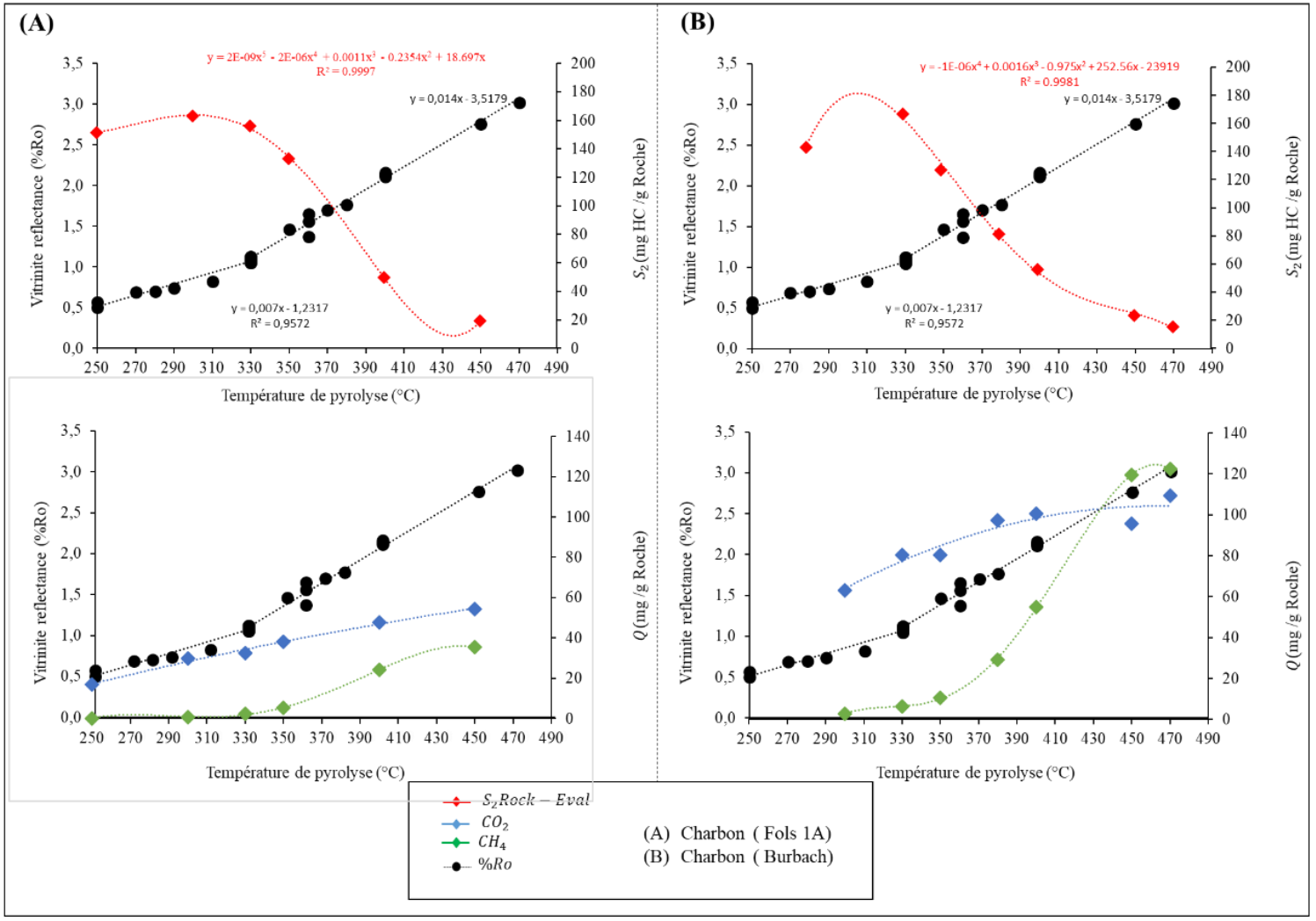


Figure IV.2.9: Corrélation entre la réflectance de la vitrinite, la température de pyrolyse, la consommation du potentiel pétrolier S2 Rock-Eval et des quantités de CH_4 et CO_2 pour les charbons de Burbach et Fols 1A.

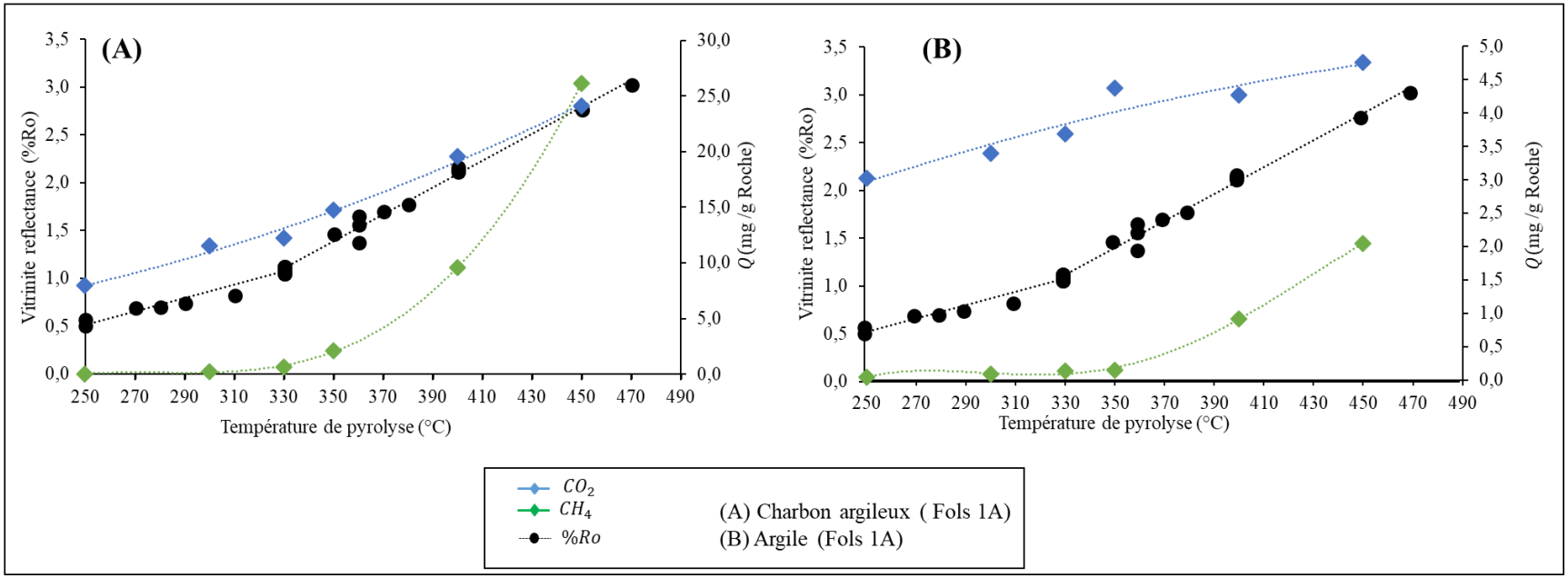


Figure IV.2.10: Corrélation entre la réflectance de la vitrinite, la température de pyrolyse, la consommation du potentiel pétrolier S2 Rock-Eval et des quantités de CH_4 et CO_2 pour le charbon argileux et l'argilite du forage Fols 1A.

IV.2.2.3 Estimation des Volumes Maximaux d'Hydrocarbures Générés dans le Bassin

Dans cette section, les résultats sont présentés conformément aux conclusions de la section III.3 où chaque formation est attribuée à un intervalle de degrés de maturité. Par exemple, dans l'est du bassin, autour des forages de Fols 1A, Dbls 1 et Jhs 1, le Stéphanien et le Westphalien supérieur sont caractérisés par une réflectance de vitrinite inférieure à 0,8 %. Le Westphalien D et C présentent des valeurs de réflectance comprises entre 0,8 et 1,2 %, tandis que dans l'ouest du bassin, autour des forages de Gironville, le Westphalien B affiche des valeurs comprises entre 1,2 et 2 %, et le Westphalien A dépassent 2,4 %.

Les Tables IV.2.4 et IV.2.5 présentent les valeurs initiales de S2 utilisées pour les calculs, ainsi que les valeurs de S2 obtenues en maturation artificielle aux intervalles de degrés de maturité définis ci-dessus. Étant donné que les valeurs de S2 n'ont pas été mesurées par Rock Eval pour les échantillons de charbon argileux et argilites de Fols 1A après la maturation artificielle, seules les quantités de méthane sont indiquées dans la Table IV.2.6, en fonction des intervalles de maturité.

Pour cette partie de l'étude, et afin de faciliter la comparaison, seuls le potentiel génétique moyen initial et celui à la température de pyrolyse souhaitée ont été pris en compte. Cela permet d'estimer les quantités maximales d'hydrocarbures générés pour chaque formation du bassin carbonifère, définies par l'équation (IV.2.1).

$$QHC\ générés\ =\ S_{2_{initial}} - S_{2_{T°(c)\ de\ pyrolyse}} \qquad \text{(IV.2.1)}$$

L'application de l'équation (IV.2.1) permet d'estimer les quantités maximales d'hydrocarbures générés pour chaque formation du bassin carbonifère :

- Le Stéphanien et le Westphalien D supérieur considérés comme immatures ou peu matures (%R<0.8), les quantités maximales totales des hydrocarbures générées par les charbons atteignent jusqu'à 40 mg/g de roche et entre 0,57 et 25 mg/g de roche suivant les résultats de maturation des charbons de Burbach et de Fols 1A respectivement. Une prédominance de CO_2 est observée avec très peu de méthane produit. Les quantités de méthane atteignent jusqu'à 2,65 mg/g de roche pour l'échantillon de Burbach et varient entre 0,06 et 0,77 mg/g de roche pour l'échantillon de Fols 1A. Dans le forage de Fols 1A, le charbon argileux et l'argilite génèrent très peu de méthane, avec des quantités ne

dépassant pas 0,2 mg/g et 0,08 mg/g de roche, respectivement (Tables IV.2.4, IV.2.5 et et Figures IV.2.9 et IV.2.10).

- Le Westphalien D et le Westphalien C sont caractérisés par des réflectances de vitrinite comprises entre 0,8 et 1,2 %. Les charbons de ces formations indiquent le début de la génération de gaz de charbon et la consommation du potentiel pétrolier S2. Les quantités maximales totales des hydrocarbures générées atteignent jusqu'à 57 mg/g de roche selon les résultats de maturation de Burbach et de 25 à 32 mg/g de roche pour le charbon de Fols 1A. On observe ici la prédominance du CO_2 par rapport au méthane, qui est généré en quantités bien supérieures par rapport au Stéphanien : entre 2,56 et 10,73 mg/g de roche pour le charbon de Burbach, et entre 0,77 et 3 mg/g de roche pour celui de Fols 1A (Tables IV.2.4 et IV.2.5 et Figure IV.2.9). Cette différence entre Burbach et Fols 1A s'explique par la composition macérale des deux charbons. Concernant les deux roches mères, à savoir le charbon argileux et l'argilite de Fols 1A, la génération de méthane varie entre 0,2 et 2,10 mg/g de roche pour le charbon argileux et entre 0,15 et 1 mg/g de roche pour l'argilite (Table IV.2.6 et Figure IV.2.10). Ces valeurs restent faibles par rapport au CO_2 généré par ces deux échantillons et sont également faibles comparées au méthane généré par les charbons pour le même degré de maturité (Figure IV.2.9)

- Dans le Westphalien B les réflectances de vitrinite sont comprises entre 1,2 et 2 %. A cette maturité, le charbon génère des quantités maximales totales des hydrocarbures entre 57 et 127 mg / g de roche et entre 32 et 102 mg/g de roche selon les résultats de maturation de Burbach et de Fols 1A respectivement, avec une augmentation significative du méthane par rapport au CO_2. Le méthane se situe entre 10,73 et 55,07 mg/g de roche pour les échantillons de Burbach, et entre 3 et 24,27 mg/g de roche pour ceux de Fols 1A (Tables IV.2.4 et IV.2.5 et Figure IV.2.9), cette différence entre les résultats des deux charbons de Burbach et de Fols 1a étant également attribuée à la composition macérale discutée précédemment. Les deux roches mères de cette formation, à savoir le charbon argileux et les argilites de Fols 1A, génèrent entre 2,10 et 10 mg/g de roche de méthane pour le charbon argileux et entre 0,15 et 1 mg/g de roche de méthane pour l'argilite (Table IV.2.6 et Figure IV.2.10).
- Le Westphalien A est caractérisé par une réflectance de vitrinite supérieur à 2,4 %. A ce niveau de maturité les masses de gaz produites varient entre 143 et 169 mg/g de roche et entre 121 et 157 mg/g de roche selon les résultats de maturation de Burbach et Fols 1A respectivement. Le CO_2 passe en dessous des quantités de méthane, avec des valeurs

de méthane allant de 55,07 à 122 mg/g de roche pour le charbon de Burbach et de 24 a 35 mg/g de roche pour le charbon de Fols 1a. Par contre, le charbon argileux génère plus de 26 mg/g de roche de méthane pour une réflectance de vitrinite de 3 %. L'argilite produit plus de 2 mg/g de roche de méthane à une réflectance équivalente de 3 %. Cela indique une augmentation significative de la génération de gaz pour le charbon argileux et l'argilite à ce stade de maturité, bien qu'elle reste toujours minoritaire par rapport à celle générée par le charbon (Tables IV.2.4 et IV.2.5 et Figures IV.2.9 et IV.2.10).

Les quantités de méthane générées à partir de l'échantillon de Fols 1A, estimées par maturation artificielle dans la Table IV.2.4 pour une température entre 290°C et 340°C (réflectance entre 0,8 % et 1,2 %) sont de 3 mg/g de roche. Ces valeurs sont nettement inférieures aux quantités actuelles de méthane de 10 mg/g de roche mesurées en puits par les FDE, qui correspondent à la même gamme de température ou de réflectance de vitrinite.

Cette différence peut être expliquée par l'état de maturité initial de l'échantillon Sal017. En effet, ce dernier provient d'une profondeur de 802m dans le forage Fols 1A et a atteint un degré de maturité correspondant à %Ro=0.76. Du méthane est présent dans ce forage à cette profondeur, indiquant que les charbons ont déjà entamé la consommation de leur potentiel pétrolier. Or ce gaz (10mg/g de roche) va manquer dans le bilan de masse des expériences de maturation artificielle. Ainsi, aux températures expérimentale de 290°C à 340°C (correspondant à la gamme de réflectance de la vitrinite 0.8% à 1.2%), la quantité totale de méthane devrait être de 10+3=13mg /g de roche.

Concernant l'échantillon de Burbach dont la maturité initiale (%Ro=0.73) est plus faible que celle du charbon Sal017 de Fols 1A (%Ro=0.76), les quantités de méthane générées à partir de la maturation artificielle (Table IV.2.4) pour une température entre 290°C et 340°C (réflectance entre 0,8 % et 1,2 %) sont de 10 mg/g de roche. Cette valeur correspond aux 10 mg/g de roche mesurés par la FDE dans la même formation que Fols 1A. Cela indique que cet échantillon peut être considéré comme représentatif de l'immaturité la plus prononcée dans notre sélection dans le bassin houiller lorrain.

Bien que cette différence pourrait être attribuée à la maturité initiale des échantillons, leurs compositions macérales des charbons doivent aussi être prise en compte. En effet, le charbon de Burbach contient 60% de vitrinite et 20% de liptinite tandis que le charbon de Fols 1A est constitué à 100% de vitrinite.

Suite à ces considérations, l'échantillon de Burbach est considéré comme référence pour les calculs des réserves. Ainsi, les résultats dans le Westphalien D de Fols 1A, Dbl et JHS1 (réflectance de vitrinite de 0,8 à 1 %) indiquent des volumes de réserves de méthane d'environ 14 m³/tonne de roche, que ce soit par maturation artificielle ou par analyse diagraphique. Cette valeur est confirmée par des études indépendantes de la FDE et de l'IFP (Franlab, 2012; Franlab, 2015; Gunzburger, 2019), ou par des valeurs calculées à la base des modélisations thermiques (Izart et al., 2016), pour des formations de même niveau de maturité. Les résultats révèlent également un potentiel significatif de méthane dans le bassin carbonifère, pouvant atteindre jusqu'à 122 mg/g de roche (Table IV.2.5), un potentiel très important comparé aux bassins houillers comme le bassin de Donets avec 81 mg/g (Alsaab et al., 2008).

IV.3 Estimation des réserves pour le forage Fols 1A, Dbl S1 et JHS 1 (Bilan par forage)

Les quantités d'hydrocarbures calculées dans la section IV.2.2.3 résultent de la différence entre le potentiel pétrolier initial et résiduel pour chaque formation donnée, dans un intervalle de maturité spécifique, comme indiqué par l'équation (IV.2.1). L'équation (IV.3.1) permet d'estimer le potentiel de génération des hydrocarbures d'une formation à un degré de maturité donné, également appelé SPI (Source Potential Index) (Tissot et al., 1980 ; Demaison et Huizinga., 1991).

$$SPI = \frac{h * (S_1 + S_2) * \rho}{1000} \qquad \text{(IV.3.1)}$$

Où h : épaisseur de la roche-mère

ρ : densité de la roche-mère

S1 : S1 Rock-Eval

S2 : S2 Rock-Eval

Dans cette section, l'évaluation de la ressource est basée sur les résultats des deux workflows précédemment décrits (maturation artificielle ou diagraphies). Cette approche estime la quantité et le volume total des hydrocarbures générés par unité de surface autour des forages de la FDE (Fols 1a, Dbl S 1 et JHS 1), exprimés en unités massiques ou volumiques par mètre carré (mg/m² ou m³/m²) (Figure IV.3.1).

L'application de cette approche nécessite la disponibilité des données de forage (Table IV.3.1) avec une profondeur minimale et maximale des formations. Ces données comprennent des descriptions lithologiques et diagraphiques continues, permettant de différencier les roches mères et d'estimer les épaisseurs utiles de charbon, de faciès charbonneux (charbon argileux et argilites charbonneuses) et des argilites. Une estimation de leurs densités (masse volumique) est calculée à partir des diagraphies (Section III.1). Dans la Table IV.3.1, une synthèse des valeurs est présentée pour : 1) la quantité d'hydrocarbures générés durant la maturation artificielle (section IV.2.2.3), 2) les valeurs calculées à partir des diagraphies (Section III.1), 3) les quantités de méthane générées par la maturation artificielle (section IV.2.2.3), et 4) les valeurs calculées à partir des diagraphies (Section III.1). Toutes ces données sont caractéristiques des trois forages de Fols 1A, Dbl S1 et JHS 1 dans le permis d'exploration de la FDE, correspondant au potentiel pétrolier pour une réflectance de vitrinite comprise entre 0,8 % et 1 %. Dans cette étude, le calcul des volumes unitaires a été effectué en prenant en compte les épaisseurs cumulatives de chaque roche mère. Cette approche a été appliquée aux faciès charbonneux, aux faciès argilo-charbonneux ainsi qu'aux argiles. Les épaisseurs ont été déterminées à partir des diagraphies de densité, en sommant les valeurs sur les zones où un signal géophysique était disponible. Ainsi, la quantité unitaire représente une estimation pour une épaisseur cumulée sur une extension d'un mètre carré. Cette méthodologie facilite l'estimation du volume en 3D, obtenue par la multiplication des volumes unitaires par la surface d'exploration considérée.

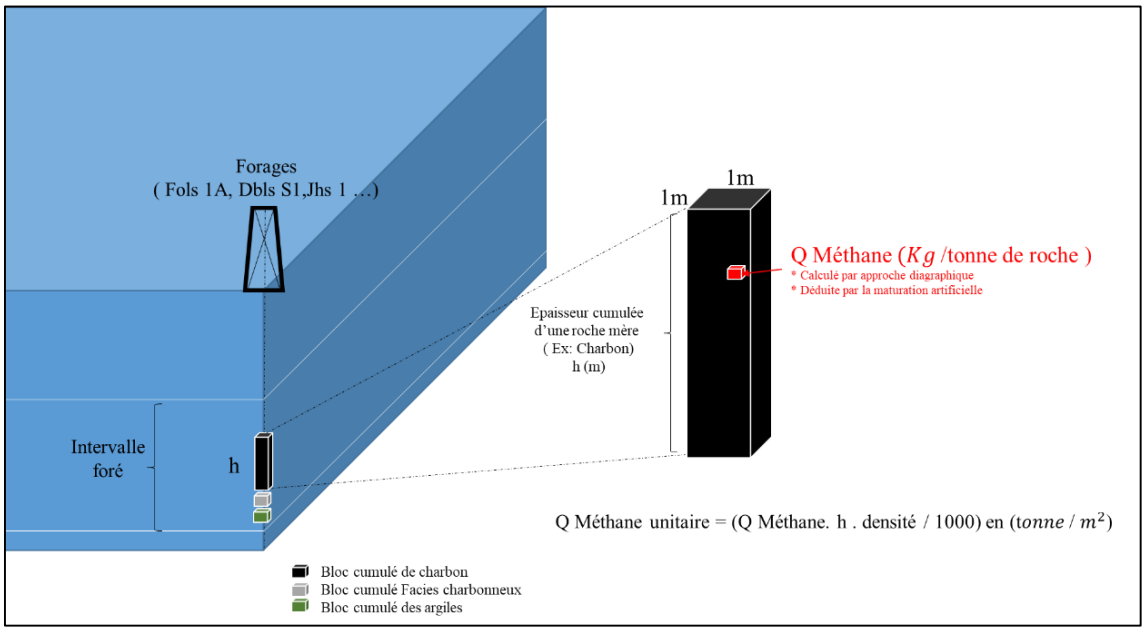


*Figure IV.3.1: Approche appliquée pour le calcul des quantités et volumes de méthane généré par unité de surface, comme indiqué dans la **Table IV.3.2**. Exemple pour une roche mère telle que le charbon.*

Forage	Lithologie de la roche mère	Propriétés de la roche mère		Maturation artificielle	Approche diagraphique	Maturation artificielle	Approche diagraphique
		Epaisseur Cumulée h(m)	Densité moyenne (*g/cm³*)	Q(HC) (mg/g de roche)	Q(HC) (mg/g de roche)	Q Méthane (mg/g de roche)	Q Méthane (mg/g de roche)
Fols 1A	Charbon	41.6	1.4	28	20	10.73	10
	Charbon argileux et argilites charbonneuses	49	2	ND*	6.9	2.1	4
	Argilites	143	2.46	ND*	0.05	0.15	ND**
Dbl S1	Charbon	44.35	1.4	28	25	10.73	11.55
	Charbon argileux et argiles charbonneux	33.65	2	ND*	7.69	2.1	2.415
	Argilites	128.4	2.46	ND*	0.03	0.15	ND**
Jhs 1	Charbon	19.8	1.4	28	20	10.73	9.289
	Charbon argileux et argiles charbonneux	40	2	ND*	4.5	2.1	2
	Argilites	135	2.46	ND*	0.03	0.15	ND**

Table IV.3.1: Caractéristiques des roches mères du Carbonifère lorrain utilisées pour le calcul des réserves de gaz: lithologies, épaisseur, densité, quantités d'hydrocarbures de Q(HC) en mg/g de roche et quantité de méthane maximale déterminées à partir de la maturation artificielle et calculées à partir de la diagraphie pour une réflectance de vitrinite entre 0,8 et 1 %. (Aucune donnée disponible sur le potentiel pétrolier consommé pour les argiles et les faciès charbonneux. **Aucun calcul disponible à partir des diagraphies sur le méthane généré dans les faciès argileux) (mg/g roche = kg/tonne de roche et g/cm³ = t/m³).*

Pour Fols 1A, Dbl S1 et JHS 1 respectivement, les quantités totales d'hydrocarbures générées ont été sommées pour les trois types de roches mères, et s'élèvent à 1,86 t/m², 2 t/m² et 0,92 t/m² par approche diagraphique (Table IV.3.2). Les quantités de méthane produites, sommées pour les trois types de roches mères, sont de 0,88 t/m² par maturation artificielle et 0,97 t/m² par approche diagraphique pour Fols 1A ; 0,85 t/m² par maturation artificielle et 0,87 t/m² par approche diagraphique pour Dbl S1 ; et 0,41 t/m² par maturation artificielle et 0,51 t/m² par approche diagraphique pour JHS 1 (Table IV.3.2). Ces valeurs correspondent à des volumes de 1262,12 m³/m² par maturation artificielle et 1392 m³/m² par approche diagraphique pour Fols 1A, 1221 m³/m² par maturation artificielle et 1256 m³/m² par approche diagraphique pour Dbl S1, et 596 m³/m² par maturation artificielle et 736 m³/m² par approche diagraphique pour JHS 1 respectivement (Table IV.3.2).

Forage	Lithologie de la roche mère	Maturation artificielle	Approche diagraphique	Maturation artificielle	Approche diagraphique	Maturation artificielle	Approche diagraphique
		Q(HC) (T/m^2)	Q(HC) (T/m^2)	Q Methane (T/m^2)	Q Methane (T/m^2)	Q Methane (m^3/m^2)	Q Methane (m^3/m^2)
Fols 1A	Charbon	1.63	1.16	0.62	0.58	892.74	832.00
	Charbon argileux et argiles charbonneux	ND*	0.68	0.21	0.39	294.00	560.00
	Argilites	ND*	0.02	0.05	ND**	75.38	ND**
	Total	-	1.86	0.88	0.97	**1262.12**	**1392.00**
Dbl S1	Charbon	1.74	1.55	0.67	0.72	951.75	1024.49
	Charbon argileux et argiles charbonneux	ND*	0.52	0.14	0.16	201.90	232.19
	Argilites	ND*	0.01	0.05	ND**	67.69	ND**
	Total	-	2.08	0.85	0.88	**1221.34**	**1256.67**
Jhs 1	Charbon	0.78	0.55	0.30	0.26	424.91	367.84
	Charbon argileux et argiles charbonneux	ND*	0.36	0.17	0.16	240.00	228.57
	Argilites	ND*	0.01	0.05	ND**	71.16	ND**
	Total	-	0.92	0.52	0.42	**736.07**	**596.42**

Table IV.3.2: Estimation des réserves de gaz dans les forages Fols 1A, Dbl S1 et Jhs1. Résultats des calculs de volumes maximaux d'hydrocarbures et de méthane basés sur les quantités générées par maturation artificielle et estimées par l'approche diagraphique : (Aucune donnée disponible sur le potentiel pétrolier consommé pour les argiles et les faciès charbonneux. **Aucun calcul disponible à partir des diagraphies sur le méthane généré dans les faciès argileux). Notes : Q méthane (Maturation artificielle) : Quantité de méthane générée directement de l'expérience par la maturation artificielle. Q méthane (Approche diagraphique) : Quantité calculée et calibrée à partir des données diagraphiques dans la section III.1. Q HC (Maturation artificielle): Quantité maximale d'hydrocarbures générée en comparant le S2 Rock Eval avant et après maturation artificielle. Q HC (Approche diagraphique) : Quantité d'hydrocarbures calculée dans la section IV.1 en calibrant le S2 Rock Eval initial et final à partir des diagraphies*

Cinquième partie

Conclusions et perspectives

Sommaire

V. CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES 273

V.1 Conclusions générales ----- 273

V.1.1 Caractérisation des dépôts fluviatiles du carbonifère supérieur du bassin Lorrain et estimation de leur teneur en gaz de charbon par l'analyse des diagraphies et des carottes 273

V.1.2 Estimation du carbone organique total (COT) par diagraphies dans le bassin carbonifère 275

V.1.3 Caractérisation organopétrographique et géochimique des dépôts houillers du bassin carbonifère sarro-lorrain 276

V.1.4 Bilan gazier du bassin houiller lorrain 277

V.2 Perspectives ----- 278

V.2.1 Optimisation du calcul du carbone organique total et du volume de gaz in-situ par l'intégration des applications de machine learning dans le bassin carbonifère lorrain 278

V.2.2 Amélioration de l'estimation du COT dans les faciès charbonneux : intégration des mesures pétrophysiques de laboratoire au modèle Delta Log R 280

V.2.3 Etude des mécanismes de stockage du méthane par rapport au CO_2 dans les charbons lorrains : implications pour l'exploration et l'exploitation du gaz de charbon 281

V.2.4 Perspectives de Recherche sur l'exploration de l'Hydrogène dans les Charbons Lorrains 282

V.2.5 Évaluation du potentiel multi-ressources du bassin carbonifère lorrain : vers une exploitation géothermique et énergétique innovante 283

V. Conclusions et perspectives

V.1 Conclusions générales

V.1.1 Caractérisation des dépôts fluviatiles du carbonifère supérieur du bassin Lorrain et estimation de leur teneur en gaz de charbon par l'analyse des diagraphies et des carottes

Cette étude a permis de caractériser les séries fluviatiles du Carbonifère supérieur du bassin lorrain en termes d'électrofaciès et de propriétés pétro-diagraphiques, ainsi que d'évaluer les volumes de gaz de charbon (CBM) à travers l'analyse géophysique des puits et des carottes des forages Fols 1A, Dbl S1 et Jhs-1.

La première partie de cette étude consistait à l'intégration des électrofaciès et des descriptions lithologiques et sédimentologiques sur carottes afin de définir les successions typiques des dépôts carbonifères lorrains et de caractériser les éléments architecturaux des environnements fluviatiles sur ces trois forages (incluant des chenaux, lobes de crevasse, plaines d'inondation et les marécages associés aux couches de charbon). Ainsi, L'analyse systématique des histogrammes de Gamma Ray, sonique et densité a permis de discriminer les différentes familles lithologiques en termes de leurs caractéristiques pétrophysiques. Le gamma-ray différencie les formations « propres » des formations argileuses, mais l'identification lithologique nécessite un couplage avec d'autres diagraphies. L'outil de densité permet de distinguer les faciès denses (grès, conglomérats et siltites-argilites) des faciès moins denses associés aux couches de charbon. La diagraphie sonique discrimine également deux pôles de faciès : les faciès plus compacts (grès, conglomérats et argilites) par rapport au charbon. L'utilisation de diagrammes intégrant ces trois diagraphies est proposée pour le bassin lorrain, montrant la variation des propriétés pétrophysiques par élément architectural.

Cette distribution des propriétés pétrophysiques permet ainsi de discriminer les différents éléments architecturaux du système fluviatile, depuis les chenaux jusqu'aux environnements marécageux, en passant par les plaines d'inondation, reflétant les variations lithologiques et la distribution de la matière organique au sein de la séquence sédimentaire. Les faciès de chenaux sont caractérisés par de faibles valeurs de Gamma ray, indicatives d'une faible argilosité. La transition de ces faciès de chenaux vers les faciès de plaine d'inondation est marquée par une augmentation progressive des valeurs de gamma-ray, suggérant un enrichissement en argile, tout en conservant des valeurs de densité relativement élevées. Des configurations analogues

sont observées dans les diagrammes pour les séquences marines, où une légère diminution de la densité et du gamma-ray est associée à l'influence de la matière organique. La transition vers les faciès d'environnements marécageux est quant à elle caractérisée par l'augmentation de la teneur en matière organique et de la diminution concomitante de l'argilosité, caractérisées par une baisse des valeurs de densité et de gamma-ray.

La deuxième partie de cette étude s'est concentrée sur l'évaluation des ressources en gaz de charbon (CBM), nécessitant un workflow adapté, différent de celui des ressources conventionnelles en raison des caractéristiques singulières des séries sédimentaires contenant les couches de charbon. En effet, les couches de charbon forment des réservoirs de gaz particuliers du fait de leur faible porosité et perméabilité. Dans la littérature, trois séquences distinctes d'écoulement des fluides, régies par les interactions eau-gaz, sont observées : la désorption du gaz de la matrice du charbon, l'écoulement à travers le réseau de porosité matricielle, et le transport à travers les fractures ouvertes ("cleat system") principalement remplies d'eau. Pour caractériser les propriétés réservoirs des couches de charbon par rapport aux autres faciès, il a été nécessaire de calculer les porosités effectives dans toutes les lithologies, particulièrement la porosité effective dans les charbons. Cette dernière correspond essentiellement à la porosité de fracture. L'étude a ensuite établi des équations empiriques permettant d'évaluer les propriétés intrinsèques du charbon (carbone fixe, cendres, humidité, matières volatiles et gaz). Ces équations ont ensuite été utilisées pour estimer les volumes de gaz in situ (Gc).

Les résultats montrent que la porosité calculée pour les réservoirs gréseux varie de 9,6 % dans le Westphalien D à 5 % dans le Westphalien C. Dans les veines de charbon, considérées comme des roches-mères et réservoirs, la porosité totale moyenne est d'environ 4,1 % dans le Westphalien D, dont principalement 3 % de porosité de fracture. Cette porosité de fracture est cruciale pour comprendre le flux de fluides et la dépressurisation au sein des formations houillères, permettant la désorption du CBM.

L'étude a établi des relations empiriques entre les composants de l'analyse immédiate et les diagraphies de densité. Les volumes de gaz adsorbés dans les couches de charbon ont été estimés entre 7 et 11 m^3/tonne de charbon dans les formations du Westphalien D pour une gamme de réflectance de vitrinite de 0.8% à 1.2%.

V.1.2 Estimation du carbone organique total (COT) par diagraphies dans le bassin carbonifère

Cette étude a permis d'évaluer quantitativement la matière organique, en particulier le carbone organique total (COT), paramètre fondamental pour estimer le potentiel gazier et définir la qualité du kérogène des roches-mères.

L'étude a exploité les avantages de la géophysique des puits dans les workflows d'exploration gazière. La disponibilité des données diagraphiques, couplée à un nombre significatif de mesures géochimiques Rock-Eval sur carottes, a rendu possible la prévision continue du COT le long des profils sédimentaires. Il s'agit d'une avancée importante car les mesures directes sur échantillons sont rares dans le bassin (sauf pour le forage Gironville 101). Cette recherche a également permis d'évaluer quantitativement l'abondance de kérogène non seulement dans les faciès charbonneux, mais aussi dans les lithologies environnantes (argilites, siltites, grès et conglomérats), aspect jusqu'alors négligé dans le bassin carbonifère sarro-lorrain. De plus, l'étude a testé l'applicabilité des méthodes diagraphiques conventionnellement utilisées dans les séries marines à un environnement continental fluviatile, de contexte peu étudié sous cet angle.

Les résultats démontrent que pour les puits du bassin carbonifère lorrain, la méthode de Schmoker est préférable lorsque les diagraphies de densité sont disponibles. En l'absence de ces dernières, les équations modifiées de Delta Log R sont recommandées pour les données de résistivité et soniques, la méthode Delta Log R originale sous-estimant significativement les valeurs pour les lithologies charbonneuses. Lorsque les données de gamma-ray, soniques et de résistivité sont toutes disponibles, les équations dérivées de l'analyse de régression multivariée sont préconisées.

L'application de ce protocole sur les deux puits de référence (Fols 1A et Dbl S1) a permis d'obtenir des profils continus de COT malgré la complexité et la variabilité de faciès de ces environnements de dépôts. Dans le puits Fols 1a, la teneur médiane en COT varie de 3,5 % à 4,5 % dans les argilites, et de 40 % à 50 % dans les couches de charbon. Pour le puits Dbl S1, ces valeurs oscillent entre 4,8 % et 6,2 % dans les argilites, et entre 30 % et 45 % dans les couches de charbon. Ces résultats, obtenus par les méthodes de Schmoker, Delta Log R modifiée et régression multivariée, permettent d'identifier les volumes de potentielles roches-mères sur la base du COT en considérant les seuils coupures suivant : 1 à 10% pour les argilites

et siltites, 10 à 50% pour les argilites charbonneuses aux charbons argileux >50% pour les charbons.

V.1.3 Caractérisation organopétrographique et géochimique des dépôts houillers du bassin carbonifère sarro-lorrain

Cette étude pétrographique (analyses macérales, réflectance de la vitrinite) et géochimique (Rock-Eval, analyses élémentaires) inclut des échantillons de lithologies charbonneuses et argileuses provenant de forages et d'affleurements et a permis de caractériser le type de kérogène, d'évaluer la maturité thermique, et de déterminer le potentiel pétrolier initial en fonction des environnements de dépôt.

Les données révèlent une prédominance exclusive de matière organique de type III dans les échantillons quelle que soit la lithologie.

Les analyses pétrographiques, considérant la composition en macéraux informent sur les environnements de dépôt et les types de végétation lors de la formation du charbon. La composition en macéraux montre une prédominance de matériel végétal terrestre (kérogène de Type III), avec une forte prédominance de la vitrinite (60 à 80%) et des contributions significative de liptinite (0 à 20%) et une proportion limitée d'inertinite (<10%).

Les variations de l'indice d'hydrogène (IH) et du carbone organique total (COT) au sein des différents faciès charbonneux immatures améliorent la compréhension de la préservation de la matière organique dans des divers cortèges de dépôts (chenaux, plaine d'inondation, marécage). L'analyse Rock-Eval identifie deux qualités majeures de roche-mère basées sur le contenu en COT et les valeurs d'IH : faciès charbonneux (COT >10%, IH moyen de 198 mg HC/g COT), les argilites et siltites (COT <10%, IH moyen de 84 mg HC/g COT).

L'évolution du potentiel pétrolier avec la maturité thermique tel qu'observé dans le puits Gironville 101 a permis d'identifier que le potentiel pétrolier maximal des roches-mères était acquis en fin de diagenèse, soit à Tmax=445°c et %Ro= 0.8%. Au-delà de ce niveau de maturité commence la catagenèse qui se traduit par une consommation nette du potentiel pétrolier. Ainsi, l'évaluation de la maturité thermique, basée sur les données de %Ro de Tmax Rock-Eval indique que les échantillons du Stéphanien et du Westphalien D supérieur sont immatures (Ro < 0,8%, Tmax < 445°C), suggérant un potentiel de génération d'hydrocarbures limité. Les échantillons du Westphalien D et C, avec des valeurs de réflectance entre 0,8% et 1,2%, se

situent dans la fenêtre de maturation très précoce, signalant une génération mineure de gaz. Les échantillons du Westphalien B, avec des réflectances entre 1,2% et 2%, se situent dans la phase de génération maximale de gaz. Les échantillons du Westphalien A, avec des réflectances dépassant 2,4%, indiquent la fenêtre à gaz tardive, les réflectances supérieures à 4% dénotant une surmaturité et un potentiel pétrolier épuisé.

V.1.4 Bilan gazier du bassin houiller lorrain

Ce chapitre propose un bilan des volumes d'hydrocarbures générés dans les trois puits Fols 1A, Dbl S1 et Jhs-1, comparant ces estimations aux saturations actuelles dans les couches de charbon. Cette approche a permis d'évaluer les volumes de gaz potentiellement expulsés et par conséquent, l'efficacité du système pétrolier. L'étude a mis en œuvre deux workflows distincts : i) Une approche diagraphique intégrant les données Rock-Eval et la géophysique des puits, permettant d'estimer les potentiels pétroliers actuels et initiaux et ii) une approche expérimentale basée sur la maturation artificielle d'échantillons immatures, quantifiant directement les gaz générés en fonction de la maturité thermique.

Le protocole diagraphique développé se déroule en trois étapes clés : 1) Conversion des COT actuels en potentiels pétroliers (S2) via une relation S2 vs. COT étendue aux fortes teneurs en COT (>20%), dépassant les limites des modèles antérieurs ; 2) Estimation du potentiel pétrolier initial à partir du potentiel actuel, intégrant les taux de génération d'hydrocarbures issus de l'interprétation des données Rock-Eval du puits Gironville 101 ; 3) Calcul des volumes maximaux d'hydrocarbures générés et expulsés par différence entre les potentiels initiaux et actuel. Cette approche, basée sur l'évolution des Indices d'Hydrogène en fonction de la réflectance de la vitrinite, permet une évaluation continue et quantitative du potentiel pétrolier le long des forages, prenant en compte les variations lithologiques et de maturité thermique spécifiques aux puits.

Le deuxième protocole de ce chapitre a utilisé la maturation artificielle pour calculer directement les volumes de gaz générés à partir de la maturation artificielle d'échantillons immatures prélevés. Cela a permis d'observer l'évolution des quantités de gaz dont plus spécifiquement le méthane, en fonction de la maturité thermique. Les valeurs quantitatives ont contribué à l'estimation des réserves de gaz autour des forages de la concession de la Fde.

Les résultats pour le Westphalien D de Fols 1A, Dbl S1 et JHS 1 montrent des volumes de réserves de méthane d'environ 14 m^3/tonne de roche, que ce soit par maturation artificielle ou

par analyse diagraphique. Cette valeur est cohérente avec des études indépendantes de la FDE et de l'IFP , ainsi que par des valeurs calculées à partir de modélisations thermiques, pour des formations avec une réflectance de vitrinite de 0,8 à 1 %. Les résultats révèlent également un potentiel significatif de méthane, pouvant atteindre jusqu'à 122 mg/g de roche, un potentiel très important comparé aux bassins houillers comme le bassin de Dotes avec 81 mg/g de roche.

V.2 Perspectives

V.2.1 Optimisation du calcul du carbone organique total et du volume de gaz in-situ par l'intégration des applications de machine learning dans le bassin carbonifère lorrain

Cette étude a permis d'optimiser l'application des méthodes diagraphiques pour le calcul du Carbone Organique Total (COT) dans le contexte spécifique du bassin carbonifère lorrain. Bien que les résultats obtenus aient permis d'améliorer et de calibrer les protocoles initialement développés pour les bassins marins, l'approche reste principalement empirique, basée sur la corrélation avec un nombre limité de données géochimiques (Rock-Eval, réflectance de la vitrinite) et pétrophysiques.

La littérature récente souligne l'émergence de méthodes plus avancées pour le calcul du COT à partir des diagraphies, notamment l'application d'algorithmes d'apprentissage automatique (Tan et al., 2015; Bolandi et al., 2017; Mahmoud et al., 2017, 2019; Nezhad et al., 2018; Elkatatny, 2019; Wang et al., 2019; Zhu et al., 2023). Cependant, l'absence d'un algorithme standardisé adapté à l'hétérogénéité des formations lithologiques, particulièrement dans les dépôts détritiques continentaux, constitue un défi majeur (Hu et al., 2016; Wang et al., 2017)

Le bassin carbonifère lorrain, caractérisé par la prédominance des faciès fluviatiles organisés en séquences lithologiques granodécroissantes (conglomérat à grès, silt, argile et veines de charbon), offre un terrain d'étude idéal pour affiner ces méthodologies. Dans cette optique, les perspectives de recherche suivantes sont proposées :

(i) application et test des méthodes de réseaux de neurones artificiels (ANN) sur un forage de référence du bassin lorrain, tel que Fols 1A, comprenant :

- La réalisation d'un échantillonnage haute résolution sur une séquence complète représentative de l'environnement fluviatile (chenaux, plaine d'inondation, marécages), prenant en compte la complexité lithologique.

- L'analyse Rock-Eval en continu de ces échantillons selon un protocole appliqué par les entreprises pétrolières (échantillonnage systématique tous les 50cm) pour créer une base de données géochimiques de référence et le développement d'un modèle d'apprentissage automatique intégrant les signaux géophysiques et les données géochimiques pour prédire le COT diagraphique.

(ii) validation et application du modèle sur d'autres forages du bassin carbonifère, en tenant compte de la distribution du kérogène dans les différentes lithologies.

Ces travaux permettraient d'améliorer significativement la précision des estimations de COT, de réduire les erreurs quadratiques moyennes (RMS), et d'établir une méthodologie robuste applicable à d'autres bassins carbonifères continentaux. Cette approche intégrée contribuerait ainsi à une meilleure évaluation des ressources en hydrocarbures non conventionnels dans ces contextes géologiques complexes.

Cette étude a également exploité les diagraphies, calibrées avec diverses analyses effectuées sur différents forages pour déterminer la composition du charbon (analyses proximales) afin de définir des équations empiriques permettant une prédiction continue. Dans cette optique, il est recommandé d'utiliser l'apprentissage automatique et d'acquérir une base de données étendue sur une couche de charbon pour entraîner les algorithmes à la prédiction.

De même, les diagraphies ont été calibrées aux analyses de désorption de méthane après dégazage des échantillons en laboratoire, afin de proposer des modèles empiriques pour le forage Fols 1A. Cependant, les faibles coefficients de corrélation obtenus ont nécessité l'application d'équations utilisées dans l'ingénierie des réservoirs de gaz de houille (CBM). Dans cette perspective, il est recommandé d'élargir significativement la base de données de désorption pour élaborer de nouveaux modèles adaptés au contexte spécifique du bassin carbonifère lorrain. Ces données enrichies serviraient de fondement pour tester et optimiser des techniques d'apprentissage automatique, en intégrant les particularités géologiques du bassin. Une approche intégrée, combinant données diagraphiques, analyses proximales et mesures de désorption, serait développée pour améliorer la précision des prédictions des teneurs en gaz. La performance de ces nouveaux modèles serait ensuite évaluée par rapport aux équations conventionnelles de Mullen (1989) et Mavor et al. (1990) utilisées dans l'ingénierie des réservoirs de gaz de houille (CBM) et aux modèles proposés par les applications de l’intelligence artificielle (Paul et Chatterjee, 2011; Baouche et Wood, 2020)

Ces améliorations permettraient d'affiner l'estimation des ressources en gaz de houille dans le bassin carbonifère lorrain, en tenant compte de la variabilité spatiale des propriétés du charbon et des conditions de réservoir. Cette approche intégrée et basée sur l'apprentissage automatique pourrait ainsi contribuer à une évaluation plus précise et fiable du potentiel en gaz non conventionnel dans ce contexte géologique complexe.

V.2.2 Amélioration de l'estimation du COT dans les faciès charbonneux : intégration des mesures pétrophysiques de laboratoire au modèle Delta Log R

L'établissement d'un nouveau modèle de calcul de TOC Delta Log R, réadaptant les diagrammes de Passey et al. (1990), s'avère nécessaire pour les TOC supérieurs à 10%, correspondant aux argilites charbonneuses, charbons argileux et charbons. Les diagrammes actuels montrent que les équations empiriques développées pour ces échantillons riches en matière organique ne sont plus adaptées et sous-estiment les réponses de TOC en utilisant les logs de résistivité et soniques.

Cette inadéquation est principalement liée à la densité de fractures des charbons, au "cleat system", et essentiellement aux saturations d'eau élevées dans ces couches. En effet, dans les conditions in situ, les couches de charbon présentent un taux d'humidité intrinsèque auquel s'ajoute la saturation en eau de formation remplissant ces fractures. Ces facteurs abaissent considérablement les valeurs de résistivité mesurées dans les conditions réelles de forage, réduisant ainsi l'écart entre le log sonique et le log de résistivité. Cela influence la valeur Delta Log R et conduit à une sous-estimation des valeurs de TOC, contrairement aux diagrammes de Passey et al. (1990) conçus pour des échantillons argileux non saturés où les mesures de laboratoire ressemblent davantage à leurs conditions de mesure dans les forages.

Dans cette optique, il est recommandé de constituer une base de données de mesures pétrophysiques complète, comprenant les vitesses soniques et des mesures de résistivité en laboratoire pour les échantillons saturés et non saturés, en fonction de leur rang pétrolier. Il conviendrait également de mesurer le TOC-Rock Eval équivalent pour chaque échantillon afin de proposer de nouvelles équations empiriques mieux adaptées aux échantillons charbonneux. Cette approche permettrait d'améliorer significativement la précision des estimations de TOC dans les formations riches en matière organique du bassin carbonifère lorrain, tenant compte des spécificités pétrophysiques des charbons et de leurs conditions réservoirs.

V.2.3 Etude des mécanismes de stockage du méthane par rapport au CO_2 dans les charbons lorrains : implications pour l'exploration et l'exploitation du gaz de charbon

La génération de gaz lors de la maturation artificielle des charbons lorrains révèle une production importante de CO_2, ainsi que de méthane, éthane, propane et autres hydrocarbures gazeux, notamment aux stades précoces de maturation correspondant à des réflectances de vitrinite entre 0,8 et 1%. Cependant, dans les couches de charbon actuelles présentant des valeurs similaires de réflectance, on observe principalement du méthane. Cette disparité soulève des questions sur les mécanismes de stockage préférentiel du méthane par rapport au CO_2 dans les conditions de réservoir.

Plusieurs hypothèses peuvent être avancées pour expliquer ce phénomène. La différence de comportement pourrait être liée aux propriétés physico-chimiques distinctes du méthane et du CO_2, notamment en termes de solubilité dans l'eau de formation, de diffusivité à travers la matrice charbonneuse, et d'affinité d'adsorption sur la surface des pores. La structure poreuse du charbon, caractérisée par une distribution complexe de micro-, méso- et macropores, pourrait également jouer un rôle dans la rétention sélective du méthane. Pour approfondir cette question, il serait pertinent d'envisager les perspectives de recherche suivantes : 1) étudier la cinétique d'adsorption et de désorption du méthane et du CO_2 dans les charbons lorrains à différentes pressions et températures, simulant les conditions de réservoir ; 2) analyser la distribution de la taille des pores et leur connectivité dans les échantillons de charbon pour évaluer leur influence sur la rétention des gaz ; 3) examiner l'impact de la composition minéralogique et de la structure moléculaire du charbon sur l'affinité d'adsorption des différents gaz, et enfin 4) modéliser les processus de migration et de piégeage des gaz à l'échelle du réservoir, en tenant compte des interactions gaz-eau-roche.

Ces études permettraient de compléter les travaux déjà au sein de l'université de Lorraine (Mostafa, 2023 ; Mostafa et al., 2023 ; Amoih, 2024 ; Amoih et al., 2024) pour mieux comprendre les mécanismes de stockage sélectif du méthane ou du CO_2 en fonction de la maturité thermique de la matière organique dans les charbons lorrains. Elles contribueraient également à optimiser les stratégies d'exploration et d'exploitation des ressources en gaz de houille dans la région.

V.2.4 Perspectives de Recherche sur l'exploration de l'Hydrogène dans les Charbons Lorrains

Les analyses des fluides de formation dans le bassin houiller lorrain ont révélé des concentrations significatives de CH_4 et H_2, avec un gradient de concentration d'H_2 corrélé à la profondeur observé dans le forage Folschviller 1a. Les teneurs en H_2 évoluent de ~0,1 mol% à 200 m, à 1-6 mol% entre 600-800 m, dépassant 15 mol% à 1100 m, pour atteindre un maximum de 18 mol% à 1250 m. Cette distribution verticale suggère un mécanisme de production d'H_2 en profondeur, potentiellement lié à une réaction d'oxydo-réduction entre l'eau de formation et des minéraux carbonatés ferrifères (principalement sidérite FeCO3 et ankérite Ca(Fe,Mg,Mn)(CO3)2) abondants dans le sous-sol local. La réaction proposée (minéraux carbonatés + $H_2O \rightarrow H_2 + O_2$ + minéraux résiduels) pourrait constituer une source significative d'H_2 naturel dans le bassin https://lejournal.cnrs.fr/articles/un-gisement-geant-dhydrogene-en-lorraine.

Des investigations supplémentaires sont nécessaires pour valider ce modèle conceptuel et quantifier le potentiel de production d'H_2 à l'échelle du bassin, ouvrant des perspectives pour l'exploitation de cette ressource géologique.

Pour approfondir la compréhension de l'origine, du stockage et des mécanismes de l'hydrogène dans le bassin lorrain, plusieurs axes de recherche complémentaires sont proposés. L'origine de l'hydrogène sera étudiée par des analyses isotopiques comparatives entre les eaux de formation du bassin lorrain et d'autres contextes géologiques, couplées à des expériences de maturation artificielle sur des échantillons riches en matière organique (charbons argileux, argiles) et en carbonates de fer (sidérite, ankérite) (Travaux en cours). Les dispositifs expérimentaux seront adaptés pour quantifier la production d'H_2 en fonction de la température et de la durée, affinant ainsi les courbes de génération et les modèles de production en relation avec la maturité thermique des charbons. Les mécanismes de stockage seront examinés en étudiant l'adsorption de l'hydrogène dans les couches de charbon, la porosité et la microporosité des minéraux argileux, s'inspirant des gisements analogues, par exemple Athabasca au Canada et Bourakebougou au Mali (Truche et al., 2018 ; Prinzhofer et al., 2018). L'analyse des eaux de formation permettra de quantifier l'H_2 dissous, en comparaison avec les concentrations de CH_4 et CO_2. La modélisation de la migration de l'H_2 à travers le réservoir déterminera sa répartition entre les pores du charbon, les fractures et les veines. L'évaluation du système pétrolier/hydrogénier comprendra la caractérisation de l'efficacité du système de stockage et de

piégeage, ainsi que l'identification et l'étude des roches couvertures (cap Rocks) capables de piéger l'H_2.

La disponibilité de divers enregistrements diagraphiques, couplée aux informations issues des carottes et des bases de données non encore traitées de manière intégrée dans les forages du bassin lorrain, pourrait révéler des opportunités manquées de détection d'hydrogène. L'utilisation de la méthodologie proposée par Lefeuvre et al. (2024), basée sur l'exploitation des archives de forage historiques grâce à l'outil Optical Character Recognition (OCR), offre une perspective prometteuse pour réévaluer ces données et potentiellement identifier des indices d'hydrogène précédemment négligés.

Ces recherches viseront à établir un modèle conceptuel intégré du système hydrogène dans le bassin lorrain, depuis sa génération jusqu'à son accumulation, dans le but d'évaluer et de quantifier précisément le potentiel du gisement d'H_2 naturel voire de fournir des bases scientifiques solides pour son éventuelle exploitation future.

V.2.5 Évaluation du potentiel multi-ressources du bassin carbonifère lorrain : vers une exploitation géothermique et énergétique innovante

Le bassin carbonifère lorrain présente un potentiel multi-ressources pour la transition énergétique française, au-delà du méthane et de l'hydrogène déjà identifiés. Une étude détaillée des propriétés pétrophysiques est essentielle pour évaluer ce potentiel. Les travaux en cours de Mombo (2024) constituent une base, mais un inventaire approfondi des porosités, perméabilités et densités de fractures s'avère nécessaire. L'objectif est d'identifier les structures géologiques propices au stockage de CO_2 et d'explorer la possibilité de stockage thermique. Les mesures préliminaires indiquent une conductivité thermique faible des charbons par rapport aux argilites, grès et conglomérats. La séquence de dépôt typique (surface d'érosion - grès/conglomérat - argilite - charbon - nouvelle surface d'érosion) induit une configuration où des chenaux gréseux peuvent être isolés thermiquement entre deux couches de charbon. Si ces corps gréseux présentent une bonne porosité et perméabilité, ils pourraient constituer d'excellents réservoirs thermiques. Cela peut être couplé avec la comparaison des gradients de température déterminés en laboratoire avec ceux mesurés par diagraphies pour identifier les zones de circulation de fluides (Haffen, 2012). De plus, vu que les couches de charbon sont naturellement fracturées, facilitant la circulation des fluides, et se situent à des profondeurs importantes, généralement supérieures à 1000 mètres, assurant un bon gradient géothermique,

une exploration approfondie du potentiel géothermique du bassin lorrain est envisageable. Cette investigation se concentrerait sur l'identification des anomalies géothermiques et l'exploration des niveaux à forte capacité calorifique dans les couches de charbon saturées d'eau. Ces formations présentent un intérêt particulier pour la possibilité de récupérer directement cette eau chaude pour exploiter sa chaleur et le potentiel d'injection d'eau froide dans ces couches pour la réchauffer et la récupérer en surface.

VI. Bibliographie

AIE (Agence Internationale de l'Énergie) (2022).*World Energy Outlook 2022*. Paris: IEA Publications. 524 p.

Alizadeh, B., Najjari, S., & Kadkhodaie-Ilkhchi, A. (2012). Artificial neural network modeling and cluster analysis for organic facies and burial history estimation using well log data : A case study of the South Pars Gas Field, Persian Gulf, Iran. *Computers & Geosciences*, *45*, 261-269.

Al-Jubori, A., Johnston, S., Boyer, C., Lambert, S. W., Bustos, O. A., Pashin, J. C., & Wray, A. (2009). Coalbed methane : Clean energy for the world. *Oilfield Review*, 21(2), 4 13.

Allen, J. R. L. (1984). Development in sedimentology 30: Sedimentary structures their character and physical basis, 22, 24, 499.

Allen, P. A., & Allen, J. R. (1990). *Basin analysis principles and applications. Blackwell scientific publication, Oxford, London, p. 393*.

Alpern, B. (1966). Un exemple intéressant de houillification dans le bassin Lorrain et ses prolongements. In Advances in organic geochemistry 1964 (p. 129 146). Elsevier.

Alpern, B. (1969). Le pouvoir réflecteur des charbons français. Application et répercussions sur la théorie de A. Duparque. Annales de la Société Géologique du Nord, 2, 143 166.

Alpern, B., Choffe, M., Lachkar, G., & Liabeuf, J. J. (1969). Synthèse des zonations palynologiques des bassins houillers de Lorraine et de Sarre. *Revue de Micropaléontologie*, *11*(4), 217-221.

Alsaab, D., Elie, M., Izart, A., Sachsenhofer, R. F., Privalov, V. A., Suarez-Ruiz, I., & Martinez, L. (2008). Comparison of hydrocarbon gases (C1–C5) production from Carboniferous Donets (Ukraine) and Cretaceous Sabinas (Mexico) coals. *International Journal of coal geology*, *74*(2), 154-162.

Amiri Bakhtiar, H., Telmadarreie, A., Shayesteh, M., Heidari Fard, M. H., Talebi, H., & Shirband, Z. (2011). Estimating Total Organic Carbon Content and Source Rock Evaluation, Applying ΔlogR and Neural Network Methods : Ahwaz and Marun Oilfields, SW of Iran. *Petroleum Science and Technology*, *29*(16), 1691-1704.

Amoih, F. (2024). Étude expérimentale des échanges gazeux dans le charbon dans le contexte d'injection de CO_2 et de récupération assistée de CH_4. Thèse de doctorat, Université de Lorraine. 214 pp

Amoih, F., Finqueneisel, G., Zimny, T., Bourrelly, S., Barres, O., & Grgic, D. (2024). Comparative study on different coals from the Lorraine basin (France) by sorption isotherms, thermogravimetric analysis and breakthrough curves for CO_2-ECBM recovery. International Journal of Coal Science & Technology, 11(1), 46.

Aretz, M., Herbig, H.-G., Wang, X. D., Gradstein, F. M., Agterberg, F. P., & Ogg, J. G. (2020). The carboniferous period. In Geologic time scale 2020 (p. 811-874).

Arri, L. E., Yee, D., Morgan, W. D., & Jeansonne, M. W. (1992). Modeling coalbed methane production with binary gas sorption. *SPE Rocky Mountain Petroleum Technology Conference/Low-Permeability Reservoirs Symposium*, SPE-24363.

Arthaud, F., & Matte, P. (1977). Détermination de la position initiale de la Corse et de la Sardaigne à la fin de l'orogenèse hercynienne grâce aux marqueurs géologiques anté-mésozoïques. *Bulletin de la Société géologique de France*, 7(4), 833-840.

Australian Standard, (1998). Coal petrography. Part 2: Maceral analysis. AS 2856-2, 32pp

Averbuch, O., Piromallo, C., & Izart, A. (2012). A model of heterogeneous delamination of the Variscan lithospheric roots in Northern France by Late carboniferous-Early Permian times : Implications for the Late Variscan orogenic collapse and the Paris basin development. *Length scales, time scales and relative contribution of Variscan orogenic events to the formation of the European crust. Special Meeting of the French and Italian Geological Societies, Sassari, Italy. Géologie de la France*, *1*, 58.

Baouche, R., & Wood, D. A. (2020). Characterization and estimation of gas-bearing properties of Devonian coals using well log data from five Illizi Basin wells (Algeria). *Advances in Geo-Energy Research*, *4*(4), 356-371.

Baudin, F. (2024). La méthode Rock-Eval®: principes et applications. ISTE Group. 303 p.

Barrabé, L., & Feys, R. (1965). *Géologie du charbon et des bassins houillers*. Masson Ed., 230 p.

Bassiouni, Z. (1994). Theory, measurement, and interpretation of well logs. Richardson, Texas, USA: Henry L. Doherty Memorial Fund of AIME, *Society of Petroleum Engineers*. (Vol. 4, p. 372).

Benkhedda, Z., Landais, P., Kister, J., Dereppe, J. M., & Monthioux, M. (1992). Spectroscopic analyses of aromatic hydrocarbons extracted from naturally and artificially matured coals. *Energy & Fuels*, 6(2), 166-172.

Bertrand, P., Bordenave, M.L., Brosse, E., Espitalié, J, Houzay, JP, Pradier, B., Vanderbroucke, M. & Walgenwitz, F. (1993) Other methods and tools for source rock appraisal. *In: Applied Petroleum Geochemistry* (Ed. by M. Bordenave), pp. 279-371 Technip, Paris.

Bessereau, G., Carpentier, B., & Huc, A. Y. (1991). Wireline Logging And Source Rocks-Estimation Of Organic Carbon Content By The Carbolbg@ Method. *The Log Analyst*, *32*(03).

Biteau, J.-J., & Baudin, F. (2023). *Géologie du pétrole*. Dunod. 245 p.

Blaise, T., Barbarand, J., Kars, M., Ploquin, F., Aubourg, C., Brigaud, B., ... & Landrein, P. (2013). Reconstruction of low burial (b 100 C) in sedimentary basins: a comparison of geothermometer sensibility in the intracontinental Paris Basin. Marine and Petroleum Geology (submitted for publication).

Bolandi, V., Kadkhodaie, A., & Farzi, R. (2017). Analyzing organic richness of source rocks from well log data by using SVM and ANN classifiers : A case study from the Kazhdumi formation, the Persian Gulf basin, offshore Iran. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, *151*, 224-234.

Bond, L. O., Alger, R. P., & Schmidt, A. W. (1969). *Well log applications in coal mining and rock mechanics*. *Soil Mechanics and Foundation Engineering*, 250, 355–362.

Bouska, V. (1981). Geochemistry of Coal, Elsevier, New York, 284 pp.

Bragg, W. H. (1915). IX. Bakerian Lecture. X-rays and crystal structure. Philosophical Transactions of the Royal Society of London : Mathematical, Physical and Engineering Sciences, 215(523-537) :253–274. 181, 182, 184, 503

Burnham, A. K. (1989). *A simple kinetic model of petroleum formation and cracking*. Lawrence Livermore National Laboratory Report., UCID-21665 (11 pp.).

Calder, J. H., Gibling, M. R., & Mukhopadhyay, P. K. (1991). *Peat formation in a westphalian B piedmont setting, cumberland basin, Nova Scotia : Implications for the maceral-based interpretation of rheotrophic and raised paleomires. Contribution series No. 91-002*.

Cappuccio, F., Porreca, M., Omosanya, K. O., Minelli, G., & Harishidayat, D. (2021). Total organic carbon (TOC) enrichment and source rock evaluation of the Upper Jurassic-Lower Cretaceous rocks (Barents Sea) by means of geochemical and log data. *International Journal of Earth Sciences*, *110*(1), 115-126.

Chan, S. A., Hassan, A. M., Usman, M., Humphrey, J. D., Alzayer, Y., & Duque, F. (2022). Total organic carbon (TOC) quantification using artificial neural networks : Improved prediction by leveraging XRF data. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, *208*, 109302.

Chatterjee, R., & Paul, S. (2013). Classification of coal seams for coal bed methane exploitation in central part of Jharia coalfield, India–A statistical approach. *Fuel*, *111*, 20-29.

Christoffel, D. A., & Kayal, J. R. (1989). Coal quality from geophysical logs : Southland lignite region, New Zealand. *The Log Analyst*, *30*(05).

Clavier, C., Heim, A., & Scala, C. (1976). Effect of pyrite on resistivity and other logging measurements. *SPWLA Annual Logging Symposium*, SPWLA-1976.

Close, J. C. (1993). Natural fractures in coal. In Hydrocarbons from Coal. AAPG Studies in Geology. Law, B. E., and Rice, D. D., eds. Tulsa: American Association of Petroleum Geologists.

Combaz, A. (1980). Les kérogenes vus au microscope. In: Durand, B. (Ed.), Kerogen. Insoluble organic matter from sedimentary rocks. Editions Technip, Paris, pp. 55–113

Courel, L., & Liu, X. B. (1991). Variations in the geothermal history in coal basins; relationship with basin dynamics. Bulletin de la Societe Geologique de France;(France), 162(2), 363-370.

Cranganu C., Dimitrijevic D. (2016) Intelligent Modeling Approaches in Petroleum Geosciences: Determining the Total Organic Carbon (TOC) in Marcellus Shale, NY State - International Conference of Gas, Oil and Petroleum Engineering, Las Vegas, (November 14 - 16, 2016).

Dawson, G. K. W., & Esterle, J. S. (2010). Controls on coal cleat spacing. *International Journal of Coal Geology*, *82*(3-4), 213-218.

Demaison, G., & Huizinga, B. J. (1991). Genetic classification of petroleum systems (1). *AAPG bulletin*, *75*(10), 1626-1643.

Dembicki Jr, H. (2009). Three common source rock evaluation errors made by geologists during prospect or play appraisals. *AAPG bulletin*, *93*(3), 341-356.

Diessel C.F.K. (1992) - Coal-bearing depositional systems. - Springer Ed., 721 p.

Donsimoni, M. (1981). *Le bassin houiller lorrain*. Ed. du Bureau des recherches géologiques et minières. Orléans. 117, 99 p.

Dow, W.G. (1974). Application of oil correlation and source rock data to exploration in Williston basin. AAPG Bulletin 58 (7), 1253e1262.

Durand, B. (1986). Reflectance of vitrinite as a control of thermal history of sediments. In Burrus, J. (Ed.), *Thermal Modelling in Sedimentary Basins*, Editions Technip, 441-474.

Durand, B., & Paratte, M. (1983). Oil Potential of Coals : a geochemical approach. In: Brooks, J. (Ed.), Petroleum Geochemistry and Exploration of Europe. Blackwell, Oxford. *Geological Society Special Publication* 12, pp. 255–265.

EGL (2007). Rapport de fin de puits: Sondage de FOLSCHVILLER 1(A), Partie Géologique et pétrolière. Rapport interne à la demande de LaFDE, N° archive: 14-45572. 219 p.

EIA (Energy Information Administration) (2019). International Energy Outlook 2019. Washington, DC: U.S. Department of Energy, 85 p.

Elie, M. (1994). Effets des conditions temps-température et de la matrice minérale sur l'évolution de matières organiques de type II et III au cours de la pyrolyse en milieu confiné. Doctoral Dissertation, Université Henri Poincaré – Nancy 1, 340 pp

Elkatatny, S. (2019). A Self-Adaptive Artificial Neural Network Technique to Predict Total Organic Carbon (TOC) Based on Well Logs. *Arabian Journal for Science and Engineering*, *44*(6), 6127-6137.

Elter, F. M., Gaggero, L., Mantovani, F., Pandeli, E., & Costamagna, L. G. (2020). The Atlas-East Variscan -Elbe shear system and its role in the formation of the pull-apart Late Palaeozoic basins. *International Journal of Earth Sciences*, *109*(3), 739-760.

Emery, D., & Myers, K. J. (1996). *Sequence stratigraphy. Hoboken*. Blackwell Science Limited. (p. 297).

Engel, W. (1988). Neue Erkenntnisse zum geologischen Werdegang des Saarkarbons. Doc. Nat, 44:8–22.

Espitalié, J., Deroo, G., & Marquis, F. (1985). La pyrolyse Rock-Eval et ses applications. Rev. Inst. franç. Pétrole, Technip, Paris, 40(5), 563-579.

Faiz, M., Saghafi, A., Sherwood, N., & Wang, I. (2007). The influence of petrological properties and burial history on coal seam methane reservoir characterisation, Sydney Basin, Australia. *International Journal of Coal Geology*, *70*(1-3), 193-208.

Fichter, J. (1982). Tetrapodenfährten aus dem Oberkarbon (Westfalium A und C) west-und Südwestdeutschlands. *Mainzer geowissenschaftliche Mitteilungen*, *11*, 33-77.

Fleck, S. (2001). Corrélation entre géochimie organique, sédimentologie et stratigraphie séquentielle pour la caractérisation des paléoenvironnements de dépôt. Thèse, université Henri Poincaré, Nancy 1. 387 p

Fleck, S., Michels, R., Izart, A., Elie, M., & Landais, P. (2001). Palaeoenvironmental assessment of Westphalian fluvio-lacustrine deposits of Lorraine (France) using a combination of organic geochemistry and sedimentology. *International Journal of Coal Geology*, *48*(1-2), 65-88.

Flores, R. M. (1998). Coalbed methane : From hazard to resource. *International journal of coal geology*, *35*(1-4), 3-26.

Flores, R. M. (2013). *Coal and coalbed gas : Fueling the future*. UK, Newnes.

Franke, W. (2000). The mid-European segment of the Variscides: tectonostratigraphic units, terrane boundaries and plate tectonic evolution. Geological Society, London, Special Publications, 179(1):35–61.

Franlab, B. (2012). Audit de l'estimation des ressources sur les permis de EGL en lorraine et Nord-Pas de Calais. Rapport à la demande de La FDE

Franlab, B. (2015). Evaluation of Coal Bed Methane Reserves and Resources Bleue Lorraine Block - South Longeville Fault Evaluation. Rapport à la demande de La FDE

Frère, I. (1984). *Le bassin stéphanien des Cévennes (Gard). Dynamique du remplissage. Place du charbon cinérites*, Thèse 3éme cycle de géologie, Dijon, 172 p.

Fu, X., Qin, Y., Wang, G. G., & Rudolph, V. (2009). Evaluation of gas content of coalbed methane reservoirs with the aid of geophysical logging technology. *Fuel*, *88*(11), 2269-2277.

Ghosh, S., Chatterjee, R., & Shanker, P. (2016). Estimation of ash, moisture content and detection of coal lithofacies from well logs using regression and artificial neural network modelling. *Fuel*, *177*, 279-287.

Goliatt, L., Saporetti, C. M., & Pereira, E. (2023). Super learner approach to predict total organic carbon using stacking machine learning models based on well logs. *Fuel*, *353*, 128682.

Gradstein F.M., Ogg J.G., Schmitz M.D., Ogg G.M. (2020*). Geologic time scale 2020*, vol. 2, Elsevier, 1357 p.

Gunzburger, Y. (2019). *Le gaz de charbon en Lorraine : Quelle intégration dans le territoire?* CNRS Éditions via OpenEdition. 130 p.

Haffen, S. (2012). *Caractéristiques géothermiques du réservoir gréseux du Buntsandstein d'Alsace*. Thèse, Université de Strasbourg. France. 392 p.

Heckel, D. (1988). *Le bassin houiller Lorrain (Champ de la Houve-Vernejoul) : Évolution sédimentologique du faisceau de steinbesch et étude pétrologique de matières organiques prélevées en sondages*. Thèse. Université Henri Poincaré Nancy 1, Nancy, France. 274 p.

Hemelsdaël, R., Averbuch, O., Beccaletto, L., Izart, A., Marc, S., Capar, L., & Michels, R. (2023). A Deformed Wedge-Top Basin Inverted During the Collapse of the Variscan Belt : The Permo-Carboniferous Lorraine Basin (NE France). *Tectonics*, *42*(11).

Henk, A. (1993). Late orogenic basin evolution in the Variscan Internides : The Saar-Nahe Basin, southwest Germany. *Tectonophysics*, *223*(3-4), 273-290.

Hering, O. (1976). Petrographische Beschreibung und Deutung der erbohrten Schichten (Saar 1). *Geologisches Jahrbuch*, *27*, 91.

Hertle, M., & Littke, R. (2000). Coalification pattern and thermal modelling of the Permo-Carboniferous Saar Basin (SW-Germany). *international Journal of coal Geology*, *42*(4), 273-296.

Hildenbrand, A., Krooss, B. M., Busch, A., & Gaschnitz, R. (2006). Evolution of methane sorption capacity of coal seams as a function of burial history—A case study from the Campine Basin, NE Belgium. *International Journal of coal geology*, *66*(3), 179-203.

Hollub, V. A., & Schafer, P. S. (1992). *A guide to coalbed methane operations*. Gas Research Institute: Chicago, IL, USA.

Hood, A., Gutjahr, C. C. M., & Heacock, R. L. (1975). Organic metamorphism and the generation of petroleum. *AAPG bulletin*, *59*(6), 986-996.

Horsfall, O. I., & Davies, O. (2016). Charaterization of Reservoir Fluid Using Body Wave Velocities. *Horsfall, Opiriyabo & Davies, Onengiyeofori,'Characterization of Reservoir Fluids Using Body Wave Velocities*.

Hu, H.; Su, R.; Liu, C.; Meng, L. (2016). The method and application of using Generalized DlogR technology to predict the organic carbon content of continental deep source rocks. *Natural. Gas. Geosci*. 2016, 27 (1), 149-155

Huang, Z., & Williamson, M. A. (1996). Artificial neural network modelling as an aid to source rock characterization. *Marine and Petroleum Geology*, *13*(2), 277-290.

Hunt, J. M. (1979). Petroleum Geochemistry and Geology Freeman. *San Francisco*, 295-299.

Hunt, J. M. (1991). Generation of gas and oil from coal and other terrestrial organic matter. *Organic geochemistry*, *17*(6), 673-680.

Hussain, W., Ehsan, M., Pan, L., Wang, X., Ali, M., Din, S. U., Hussain, H., Jawad, A., Chen, S., & Liang, H. (2023). Prospect evaluation of the cretaceous Yageliemu clastic reservoir based on geophysical log data : A case study from the Yakela gas condensate field, Tarim Basin, China. *Energies*, *16*(6), 2721.

International Committee for Coal and Organic Petrology (ICCP). (1998). The new vitrinite classification (ICCP System 1994). *Fuel 77*, 349-358.

International Committee for Coal and Organic Petrology (ICCP). (2001). The new inertinite classification (ICCP System 1994). *Fuel 80*, 459-471.

Izart, A. (2007). Analyse des sédiments, séquences et minéraux argileux des forages HD10 et HD20 (Bassin houiller du Nord de la France). *Annales de la Société Géologique du Nord*, 14 (2), 29-41.

Izart, A., Barbarand, J., Michels, R., & Privalov, V. A. (2016). Modelling of the thermal history of the Carboniferous Lorraine Coal Basin : Consequences for coal bed methane. *international Journal of coal Geology*, *168*, 253-274.

Izart, A., Palain, C., Malartre, F., Fleck, S., & Michels, R. (2005). Paleoenvironments, paleoclimates and sequences of Westphalian deposits of Lorraine coal basin (Upper Carboniferous, NE France). *Bulletin de la Société géologique de France*, *176*(3), 301-315.

Jiang, S., Mokhtari, M., Borrok, D., & Lee, J. (2018). Improving the total organic carbon estimation of the Eagle Ford shale with density logs by considering the effect of pyrite. *Minerals*, *8*(4), 154.

Jie, H., Changchun, Z., Zhaohui, H., Liang, X., Yuqing, Y., Guohua, Z., & Wenwen, W. (2014). Log evaluation of a coalbed methane (CBM) reservoir : A case study in the southern Qinshui basin, China. *Journal of Geophysics and Engineering*, *11*(1), 015009.

Jongmans, W. J., & Pruvost, P. (1950). Les subdivisions du Carbonifère continental. *Bulletin de la Societè Géologique de France*, *5*(7-9), 335-344.

Kalaitzidis, S., Bouzinos, A., Papazisimou, S., & Christanis, K. (2004). A short-term establishment of forest fen habitat during Pliocene lignite formation in the Ptolemais Basin, NW Macedonia, Greece. *International Journal of Coal Geology*, *57*(3-4), 243-263.

Kalaydjian, F., & Cornot-Gandolphe, S. (2008). *La nouvelle donne du charbon*. Éditions Technip.

Kamali, M. R., & Mirshady, A. A. (2004). Total organic carbon content determined from well logs using ΔLogR and Neuro Fuzzy techniques. *Journal of petroleum Science and Engineering*, *45*(3-4), 141-148.

Karacan, C. Ö. (2009). Reservoir rock properties of coal measure strata of the Lower Monongahela Group, Greene County (Southwestern Pennsylvania), from methane control and production perspectives. *International Journal of Coal Geology*, *78*(1), 47-64.

Kennedy, M. C. (2004). Gold Fool's : Detecting, quantifying and accounting for the effects of Pyrite on modern logs. *SPWLA Annual Logging Symposium*, SPWLA-2004.

Kenomore, M., Hassan, M., Dhakal, H., & Shah, A. (2017). Total organic carbon evaluation of the Bowland Shale Formation in the Upper Bowland of the Widmerpool Gulf. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, *150*, 137-145.

Keskinsezer, A. (2019). Determination of coal layers using geophysical well-logging methods for correlation of the Gelik-Zonguldak and Kazpınar-Amasra (Bartın) coalfields, Turkey. *Geomechanics and Geophysics for Geo-Energy and Geo-Resources*, *5*(3), 223-235.

Khoshnoodkia, M., Mohseni, H., Rahmani, O., & Mohammadi, A. (2011). TOC determination of Gadvan Formation in South Pars Gas field, using artificial intelligent systems and geochemical data. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, *78*(1), 119-130.

Kim, A. G. (1977). *Estimating methane content of bituminous coalbeds from adsorption data* (Vol. 8245). Department of the Interior, Bureau of Mines.

Knight J.A., Cleal C.J. & Alvarez-Vazquez (2023) - The challenge of relating the Kasimovian to west European chronostratigraphy: a critical review of the Cantabrian and Barruelian substages of the Stephanian stage. - *Geol. Soc*. London, Sp. Pub., 535, 31-71.

Korsch, R. J., & Schäfer, A. (1995). The Permo-Carboniferous Saar-Nahe Basin, south-west Germany and north-east France : Basin formation and deformation in a strike-slip regime. *Geologische Rundschau*, *84*(2), 293-318.

Lafargue, E., Marquis, F., & Pillot, D. (1998). Rock-Eval 6 applications in hydrocarbon exploration, production, and soil contamination studies. *Revue de l'institut français du pétrole*, *53*(4), 421-437.

Landais, P., Michels, R., & Elie, M. (1994). Are time and temperature the only constraints to the simulation of organic matter maturation? Organic Geochemistry, 22(3-5), 617-630.

Laveine, J. P. (1974). Précisions sur la répartition stratigraphique des principales espèces végétales du Carbonifère supérieur de Lorraine. *CR Acad. Sci. Paris*, *278*(D), 851-854.

Le Meur, M., Boussafir, M., Le Milbeau, C., Debure, M., Claret, F., Robinet, J.-C., & Lerouge, C. (2021). Organic Matter Oxidation of the Tégulines Clay formation,(Paris Basin, France) : Spatial Heterogeneities. *Applied Geochemistry*, *134*, 105093.

Lefeuvre, N., Thomas, E., Truche, L., Donzé, F., Cros, T., Dupuy, J., Pinzon-Rincon, L., & Rigollet, C. (2024). Characterizing Natural Hydrogen Occurrences in the Paris Basin From Historical Drilling Records. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, *25*(5), e2024GC011501.

Levine, J. R. (1993). Coalification: The evolution of coal as source rock and reservoir rock for oil and gas, in SG 38: Hydrocarbons from Coal, edited by B.E. Law and D.D. Rice, *American Association of Petroleum Geologists Studies in Geology*, Tulsa, pp. 39-77.

Li, M., & Zhang, C. (2023). An Improved Method to Accurately Estimate TOC of Shale Reservoirs and Coal-Measures. *Energies*, *16*(6), 2905.

Littke, R., Büker, C., Hertle, M., Karg, H., Stroetmann-Heinen, V., & Oncken, O. (2000). Heat flow evolution, subsidence and erosion in the Rheno-Hercynian orogenic wedge of central Europe. *Geological Society, London, Special Publications*, *179*(1), 231-255.

Liu, H., Mou, J., & Cheng, Y. (2015). Impact of pore structure on gas adsorption and diffusion dynamics for long-flame coal. *Journal of Natural Gas Science and Engineering*, *22*, 203-213.

Ma, Q., Harpalani, S., & Liu, S. (2011). A simplified permeability model for coalbed methane reservoirs based on matchstick strain and constant volume theory. *International Journal of Coal Geology*, *85*(1), 43-48.

Mahmoud, A. A. A., Elkatatny, S., Mahmoud, M., Abouelresh, M., Abdulraheem, A., & Ali, A. (2017). Determination of the total organic carbon (TOC) based on conventional well logs using artificial neural network. *International Journal of Coal Geology*, *179*, 72-80.

Mahmoud, A. A., Elkatatny, S., Ali, A. Z., Abouelresh, M., & Abdulraheem, A. (2019). Evaluation of the total organic carbon (TOC) using different artificial intelligence techniques. *Sustainability*, *11*(20), 5643.

Mann, U., & Müller, P. J. (1988). Source rock evaluation by well log analysis (Lower Toarcian, Hils syncline). In *Organic Geochemistry In Petroleum Exploration* (p. 109-119). Elsevier.

Mann, U., Leythaeuser, D., & Müller, P. J. (1986). Relation between source rock properties and wireline log parameters : An example from Lower Jurassic Posidonia Shale, NW-Germany. *Organic geochemistry*, *10*(4-6), 1105-1112.

Marcel, P. (1954). *Contribution à l'étude des charbons sarro-lorrains*. Thèse Faculté sciences de Nancy Nancy. 40p.

Martínez Catalán, J. R. (2011). Are the oroclines of the Variscan belt related to late Variscan strike-slip tectonics? *Terra Nova*, *23*(4), 241-247.

Mastalerz, M., & Drobniak, A. (2019). Coal Bed Methane: Reserves, Production and Future Outlook. In Unconventional Petroleum Geology. Elsevier, pp. 237-282.

Mastalerz, M., Drobniak, A., Hower, J., O'Keefe, J. (2011). Spontaneous Combustion and Coal Petrology, in *Coal and peat fires: a global perspective: coal-geology and combustion*; Stracher, G. B., Prakash, A., Sokol, E.V. Eds. Elsevier, pp. 48-62.

Mavor, M. J., Owen, L. B., & Pratt, T. J. (1990, September). Measurement and evaluation of coal sorption isotherm data. In SPE Annual Technical Conference and Exhibition? (pp. SPE-20728). SPE.

Mavor, M., Close, J. C., & McBane, R. A. (1994). Formation evaluation of exploration coalbed-methane wells. *SPE Formation Evaluation*, *9*(04), 285-294.

McCabe, L.C., Tholey, C.C. (1945).Physical Properties of Coals, in *Chemistry of coal utilization*; Schmidt, L.D., Lowry, H.H., Eds.; Wiley: New York, pp. 310-336

McCabe, P. J. (1985). Depositional Environments of Coal and Coal-Bearing Strata. In R. A. Rahmani & R. M. Flores (Éds.), *Sedimentology of Coal and Coal-Bearing Sequences* (p. 11-42). Wiley.

McCabe, P. J., & Parrish, J. T. (1992). *Controls on the distribution and quality of Cretaceous coals*. Geological Society of America. 276 p.

McCarthy, K., Rojas, K., Niemann, M., Palmowski, D., Peters, K., & Stankiewicz, A. (2011). Basic petroleum geochemistry for source rock evaluation. *Oilfield Review*, *23*(2), 32-43.

Meissner, F. F. (1978). Petroleum geology of the Bakken formation Williston basin, North Dakota and Montana in Proceedings of 1978 Williston Basin Symposium, Montana Geological Society, Billings, pp. 207-227.

Mendelzon, J. D., & Toksoz, M. N. (1985). Source rock characterization using multivariate analysis of log data. *SPWLA Annual Logging Symposium*, SPWLA-1985, pp. 253-330

Meng, S.-P., Liu, C.-L., & Ji, Y.-M. (2013). Geological conditions of coalbed methane and shale gas exploitation and their comparison analysis. *Journal of China Coal Society*, *38*(5), 728-736.

Merry, J. L. (1967). Découverte de nouveaux Tonstein dans le Westphalien de Lorraine. *Comptes rendus hebdomadaires des seances de l academie des sciences serie D*, *264*(21), 2440.

Meyer, B. L., & Nederlof, M. H. (1984). Identification of source rocks on wireline logs by density/resistivity and sonic transit time/resistivity crossplots. *AAPG bulletin*, *68*(2), 121-129.

Miall, A. D. (2013). *The geology of fluvial deposits : Sedimentary facies, basin analysis, and petroleum geology*. Springer, 582 p.

Montgomery, S. L., Tabet, D. E., & Barker, C. E. (2001). Upper Cretaceous Ferron Sandstone : Major coalbed methane play in central Utah. *AAPG bulletin*, *85*(2), 199-219.

Monthioux, M. (1986). *Maturations naturelle et artificielle d'une série de charbons homogènes*. Doctoral Dissertation, Université d'Orléans, 331 pp.

Monthioux, M. (1988). Expected mechanisms in nature and in confined-system pyrolysis. Fuel, 67(6), 843-847.

Monthioux, M., & Landais, P. (1987). Evidence of free but trapped hydrocarbons in coals. Fuel, 66(12), 1703-1708.

Monthioux, M., & Landais, P. (1988). Natural and artificial maturations of a coal series : Infrared spectrometry study. Energy & Fuels, 2(6), 794-801.

Monthioux, M., & Landais, P. (1989a). Natural and artificial maturation of coal : Hopanoid stereochemistry. Chemical geology, 75(3), 209-226.

Monthioux, M., & Landais, P. (1989b). Natural and artificial maturation of coal : Hopanoid stereochemistry. Chemical geology, 75(3), 209-226.

Monthioux, M., Landais, P., & Durand, B. (1986). Comparison between extracts from natural and artificial maturation series of Mahakam delta coals. Organic Geochemistry, 10(1-3), 299-311.

Monthioux, M., Landais, P., & Monin, J.-C. (1985). Comparison between natural and artificial maturation series of humic coals from the Mahakam delta, Indonesia. Organic Geochemistry, 8(4), 275-292.

Moore, P. D. (1989). The ecology of peat-forming processes : A review. *International Journal of Coal Geology*, *12*(1-4), 89-103.

Moore, T. A. (2012). Coalbed methane : A review. *International Journal of Coal Geology*, *101*, 36-81.

Morin, R. H. (2005). Hydrologic properties of coal beds in the Powder River Basin, Montana I. Geophysical log analysis. *Journal of Hydrology*, *308*(1-4), 227-241.

Mostafa, A., Scholtès, L., & Golfier, F. (2023). Pore-scale hydro-mechanical modeling of gas transport in coal matrix. Fuel, 345, 128165.

Mostafa, A. (2024). Modélisation hydro-mécanique multi-échelle de la récupération du gaz de charbon. Thèse de doctorat, Université de Lorraine. 154 pp

Mukhopadhyay, P. K., & Dow, W. G. (1994). Vitrinite reflectance as a maturity parameter : Applications and limitations: developed from a symposium sponsored by the Division of Geochemistry, Inc., at the 206th National Meeting of the American Chemical Society, Chicago, Illinois, August 22-27, 1993.

Mullen, M. J. (1988). Log evaluation in wells drilled for coal-bed methane. *Rocky Mountain Asso Geol*. 113–24..

Mullen, M. J. (1989). Coalbed Methane Resource evaluation from wireline logs in the northeastern San Juan Basin : A case study. *SPE Rocky Mountain Petroleum Technology Conference/Low-Permeability Reservoirs Symposium*, SPE-18946.

Neubauer, F., & Handler, R. (2000). Variscan orogeny in the Eastern Alps and Bohemian Massif : How do these units correlate. *Mitt. Österr. Geol. Ges*, *92*, 35-59.

Nezhad, Y. A., Moradzadeh, A., & Kamali, M. R. (2018). A new approach to evaluate Organic Geochemistry Parameters by geostatistical methods : A case study from western Australia. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, *169*, 813-824.

Nixon, R. P. (1973). Oil source beds in Cretaceous Mowry Shale of northwestern interior United States. *AAPG bulletin*, *57*(1), 136-161.

Nyakilla, E. E., Silingi, S. N., Shen, C., Jun, G., Mulashani, A. K., & Chibura, P. E. (2022). Evaluation of Source Rock Potentiality and Prediction of Total Organic Carbon Using Well Log Data and Integrated Methods of Multivariate Analysis, Machine Learning, and Geochemical Analysis. *Natural Resources Research*, *31*(1), 619-641.

Ohakwere-Eze, M., Igboekwe, M., & Chukwu, G. (2018). Petrophysical evaluation and lithology delineation using cross-plots analysis from some onshore wells in the Nigerian-delta, west Africa. *International Journal of Advanced Geosciences*, *6*(1), 99-107.

Ouyang, Y., Tian, W., Sun, B., Wang, B., Qi, L., Sun, Q., ... & Dong, H. (2018). Accumulation characteristics and exploration strategies of coal measure gas in China. Natural Gas Industry B, 5(5), 444-451.

Palain, C. (1995). *Rapport relatif à l'étude des documents de puits, carottes et diagraphies différées du forage de Saulcy*, ENSG. Nancy. PP 36.

Passey, Q. R., Creaney, S., Kulla, J. B., Moretti, F. J., & Stroud, J. D. (1990). A practical model for organic richness from porosity and resistivity logs. *AAPG bulletin*, *74*(12), 1777-1794.

Paterson, D. W., Bachtiar, A., Bates, J. A., Moon, J. A., & Surdam, R. C. (1997). Petroleum system of the Kutei basin, Kalimantan, Indonesia. In *Petroleum systems of SE Asia and Australasia* (Howes, J. V., Noble, R. A. eds.), Indonesian Petrol. Assoc., 97-OR-35, 709–726.

Paul, S., & Chatterjee, R. (2011). Determination of in-situ stress direction from cleat orientation mapping for coal bed methane exploration in south-eastern part of Jharia coalfield, India. *International Journal of Coal Geology*, *87*(2), 87-96.

Pelet, R. (1985). Evaluation quantitative des produits formes lors de l'evolution geochimique de la matiere organique. *Revue de l'Institut français du pétrole*, *40*(5), 551-562.

Pepper, A. S., & Corvi, P. J. (1995). Simple kinetic models of petroleum formation. Part III : Modelling an open system. *Marine and petroleum geology*, *12*(4), 417-452.

Peters, K. E., & Cassa, M. R. (1994). *Applied source rock geochemistry : Chapter 5: Part II. Essential elements*.

Peters, K., & Wygrala, B. (2009). Petroleum systems modeling in exploration. *Hart's E & P*, *82*(9), 68-69.

Petersen, H. I. (2006). The petroleum generation potential and effective oil window of humic coals related to coal composition and age. *International Journal of Coal Geology*, *67*(4), 221-248.

Prinzhofer, A., Cissé, C. S. T., & Diallo, A. B. (2018). Discovery of a large accumulation of natural hydrogen in Bourakebougou (Mali). *International Journal of Hydrogen Energy*, *43*(42), 19315-19326.

Privalov, V., Pironon, J., de Donato, P., Michels, R., Morlot, C., & Izart, A. (2020). Natural fracture systems in CBM Reservoirs of the Lorraine–Saar coal Basin from the standpoint of X-ray computer tomography. *Environmental Sciences Proceedings*, 5(1), 12.

Privalov, V., Pironon, J., de Donato, P., Michels, R., Izart, A., Morlot, C., & Panova, O. (2022). Multi-scale structural inheritance of fracture systems pattern in coal-bearing measures of the Lorraine-Saar coal Basin. *Geofizičeskij žurnal*, *44*(1), 40-54.

Pruvost, P. (1934). Bassin houiller de la Sarre et de la Lorraine. Description géologique (Etudes des gîtes minéraux de la France). Imprimerie Danel, Lille. 173 p.

Reddy, K. J. (2010). Coalbed natural gas : Energy and environment. *New York, USA, Nova Science Publishers*, 2010.

Reiss, L. H. (1980). *The reservoir engineering aspects of fractured formations*. Paris: Gulf Publishing Company.Reservoirs and Coal-Measures. Energies, 16(6), 2905.

Rider, M. H. (1986). *The geological interpretation of well logs*. Glasgow, pp. 209

Rider, M., Kennedy, M. (2011). Sonic or acoustic logs, in: Rider, M., Kennedy, M. (Eds.), The geological interpretation of well logs, third ed. Rider-French Consulting Limite, Glasgow, pp. 187-209.

Russell, W. L. (1941). Well logging by radioactivity. *AAPG Bulletin*, *25*(9), 1768-1788.

Sang, S., Liu, H., Li, Y., Li, M., and Li, L. (2009). Geological controls over coal-bed methane well production in southern Qinshui basin Procedia. *Earth Planet. Sci*. 1 917–22

Schäfer, A. (1989). Variscan molasse in the Saar-Nahe Basin (W-Germany), Upper Carboniferous and Lower Permian. *Geologische Rundschau*, *78*(2), 499-524.

Schafer, A. (2005). Sedimentologisch-numerisch begrundeter stratigraphischer Standard fur das Permo-Karbon des Saar-Nahe-Beckens. *Courier-forschungsinstitut senckenberg*, *254*, 369.

Schäfer, A. (2011). Tectonics and sedimentation in the continental strike-slip Saar-Nahe basin (Carboniferous-Permian, West Germany). *Zeitschrift der Deutschen Gesellschaft fur Geowissenschaften*, *162*(2), 127.

Schmoker, J. W. (1979). Determination of organic content of Appalachian Devonian shales from formation-density logs : Geologic notes. *AAPG Bulletin*, *63*(9), 1504-1509.

Schmoker, J. W. (1981). Determination of organic-matter content of Appalachian Devonian shales from gamma-ray logs. *AAPG Bulletin*, *65*(7), 1285-1298.

Schmoker, J. W., & Hester, T. C. (1983). Organic carbon in Bakken formation, United States portion of Williston basin. *AAPG bulletin*, *67*(12), 2165-2174.

Schwarzkopf, T. A. (1992). Source rock potential (TOC+ hydrogen index) evaluation by integrating well log and geochemical data. *Organic geochemistry*, *19*(4-6), 545-555.

Scott, A. R. (1993). Composition and origin of coalbed gases from selected basins in the United States. *Proc. of Internat. Methane Symp.*, 207–222.

Seidle, J. (2011). Geologic Aspects of Coal Gas Reservoir Engineering, in: Seidle, J. (Eds.), Fundamentals of Coalbed Methane Reservoir Engineering. PennWell Corporation., Oklahoma, pp. 59-88.

Sen, S., Naskar, S., & Das, S. (2016). Discussion on the concepts in paleoenvironmental reconstruction from coal macerals and petrographic indices. *Marine and Petroleum Geology*, *73*, 371-391.

Senftle, J. T., & Landis, C. R. (1991). *Vitrinite Reflectance as a Tool to Assess Thermal Maturity : Chapter 12: Geochemical Methods and Exploration*.

Serra, O. (1984). Fundamental of well-log interpretation: the acquisition of logging data, developments in petroleum science, vol 1. 15A-trans. El Sevier Science Publishers BV, Amsterdam, The Netherlands.

Snowdon, L. R. (1991). Oil from type III organic matter : Resinite revisited. *Organic Geochemistry*, *17*(6), 743-747.

Sondergeld, C. H., Newsham, K. E., Comisky, J. T., Rice, M. C., & Rai, C. S. (2010). Petrophysical considerations in evaluating and producing shale gas resources. *SPE Unconventional Resources Conference/Gas Technology Symposium*, SPE-131768.

Stach, E., & Mackowsky, M.-T. (s. d.-a). Tay lor GH, Chandra, D., Teichmüller, R. (1982). *Stach's Text book of Coal Petrology*, 77-98.

Su, X., Wang, Q., Lin, H., Song, J., & Guo, H. (2018). A combined stimulation technology for coalbed methane wells : Part 1. Theory and technology. *Fuel*, *233*, 592-603.

Suárez-Ruiz, I., & Crelling, J. C. (Eds.), 2008. Applied coal petrology: the role of petrology in coal utilization. Academic press. 408 pp

Sun, S. Z., Sun, Y., Sun, C., Liu, Z., & Dong, N. (2013). Methods of calculating total organic carbon from well logs and its application on rock's properties analysis. *Geo Convention*, 1-7.

Sutton, T. (2014). Wireline Logs for Coalbed Evaluation. In *Coal Bed Methane* (p. 93-100). Elsevier. pp. 93-100.

Sweeney, J. J., & Burnham, A. K. (1990). Evaluation of a simple model of vitrinite reflectance based on chemical kinetics. *AAPG bulletin*, *74*(10), 1559-1570.

Sykes, R., & Snowdon, L. R. (2002). Guidelines for assessing the petroleum potential of coaly source rocks using Rock-Eval pyrolysis. *Organic geochemistry*, *33*(12), 1441-1455.

Taborin, J., 1999. Différents types de tourbières, Géochronique, 71, 9.

Tan, M., Song, X., Yang, X., & Wu, Q. (2015). Support-vector-regression machine technology for total organic carbon content prediction from wireline logs in organic shale : A comparative study. *Journal of natural gas science and engineering*, *26*, 792-802.

Tchang-Tchong, L. (2023). Les hydrocarbures comme marqueurs de thermicité et de transfert de fluides en contexte d'anomalie géothermique : le cas du sous-bassin de Pechelbronn (Fossé Rhénan). Thèse de doctorat, Université de Lorraine. 364 p.

Teichmüller, M., & Durand, B. (1983). Fluorescence microscopical rank studies on liptinites and vitrinites in peat and coals, and comparison with results of the Rock-Eval pyrolysis. *International Journal of Coal Geology*, 2(3), 197-230.

Teichmüller, M., Teichmüller, R., (1979). Diagenesis of coal (coalification). In: *Developments in Sedimentology*, Elsevier 25, 207–246.

Telford, W. M., Geldart, L. P., & Sheriff, R. E. (1990). *Applied geophysics*. Cambridge university press.760 p.

Termier, P. (1923). Contribution à la connaissance des» Tonstein «du houiller de la Sarre. *Bull. Soc. géol. France*, *4*(23), 45-50.

Thararoop, P., Karpyn, Z. T., & Ertekin, T. (2012). Development of a multi-mechanistic, dual-porosity, dual-permeability, numerical flow model for coalbed methane reservoirs. *Journal of Natural Gas Science and Engineering*, *8*, 121-131.

Thiry, M., Carrillo, N., Franke, C., & Martineau, N. (2013). Technique de préparation des minéraux argileux en vue de l'analyse par diffraction des Rayons X et introduction à l'interprétation des diagrammes. *Rapport Technique N° RT131010MTHI, Centre de Géosciences*, Ecole des Mines de Paris, Fontainebleau, France, 34 p.

Thomas, L. (2002). Coal geology, Second Edition. A John Wiley & Sons, Ltd., West Sussex, 456p.

Tissot, B, P. & Welte, D. H. (1984). Petroleum formation and occurrence.Springer-Verlag, Berlin 699 pp.

Tissot, B., Demaison, G., Masson, P., Delteil, J. R., & Combaz, A. (1980). Paleoenvironment and petroleum potential of middle Cretaceous black shales in Atlantic basins. AAPG Bulletin, 64(12), 2051-2063.

Truche, L., Joubert, G., Dargent, M., Martz, P., Cathelineau, M., Rigaudier, T., & Quirt, D. (2018). Clay minerals trap hydrogen in the Earth's crust : Evidence from the Cigar Lake uranium deposit, Athabasca. *Earth and Planetary Science Letters*, *493*, 186-197.

Van Krevelen, D. W. (1993). *Coal : Typology-physics-chemistry-constitution*. (Coal Science & Technology); Elsevier : New York, 1993; pp. 100.

Van Krevelen, D.W. (1961). Coal. Typology – Chemistry – Physics – Constitution. 1st ed., Elsevier,Amsterdam, The Netherlands, 514 pp.

Vandenbroucke, M., Bordenave, M. L., & Durand, B. (1993). Transformation of organic matter with increasing burial of sediments and the formation of petroleum in source rocks. In *Applied petroleum geochemistry* (p. 101-122). Editions Technip Paris.

Voigt, S., Schindler, T., Tichomirowa, M., Käßner, A., Schneider, J. W., & Linnemann, U. (2022). First high-precision U–Pb age from the Pennsylvanian-Permian of the continental Saar–Nahe Basin, SW Germany. *International Journal of Earth Sciences*, *111*(7), 2129-2147.

Von Seckendorff, V., Arz, C., & Lorenz, V. (2004). Magmatism of the late Variscan intermontane Saar-Nahe Basin (Germany) : A review. *Geological Society, London, Special Publications*, *223*(1), 361-391.

Wang, H., Wu, W., Chen, T., Dong, X., & Wang, G. (2019). An improved neural network for TOC, S1 and S2 estimation based on conventional well logs. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, *176*, 664-678.

Wang, P., Peng, S., & He, T. (2018). A novel approach to total organic carbon content prediction in shale gas reservoirs with well logs data, Tonghua Basin, China. *Journal of Natural Gas Science and Engineering*, *55*, 1-15.

Wang, P., Peng, S., Du, W., Feng, F. (2017) Prediction model of total organic carbon content on hydrocarbon source rocks in coal measures based on geophysical well logging. *J. China Coal Soc. 42 (5)*, 1266-1276.

Wang, Q. (2022). Timeliness Analysis of Coalbed Methane Workover for Reducing Damage to Coal Reservoirs. *ACS Omega*, *7*(8), 6956-6962.

Ward, C. R., (ed.), 1984, Coal geology and coal technology, Blackwell Scientific Publications, Melbourne, 345 pp.

Wood, D. A. (2023). Predicting total organic carbon from few well logs aided by well-log attributes. Petroleum, 9(2), 166-182.

Wüst, R. A., Hawke, M. I., & Bustin, R. M. (2001). Comparing maceral ratios from tropical peatlands with assumptions from coal studies : Do classic coal petrographic interpretation methods have to be discarded? *International Journal of Coal Geology*, *48*(1-2), 115-132.

Yang, Y.-J., Song, Y., Chen, S.-J., & Li, T.-C. (2006). Experimental study on strength discreteness and triaxial compression of coal. *Yantu Lixue(Rock and Soil Mechanics)*, *27*(10), 1763-1766.

Yu, H., Rezaee, R., Wang, Z., Han, T., Zhang, Y., Arif, M., & Johnson, L. (2017). A new method for TOC estimation in tight shale gas reservoirs. *International Journal of Coal Geology*, *179*, 269-277.

Zhang, B., & Xu, J. (2016). Methods for the evaluation of water saturation considering TOC in shale reservoirs. *Journal of Natural Gas Science and Engineering*, *36*, 800-810.

Zhao, B. (2019). Predicting total organic carbon content in marine shale reservoirs with nuclear logging data. Xinjing Pet. Geol, *40 (4)*, 499-504.

Zhou, B., & Esterle, J. (2008). Toward improved coal density estimation from geophysical logs. *Exploration Geophysics*, *39*(2), 124-132.

Zhu, L., Zhang, C., Zhang, C., Zhou, X., Wang, J., & Wang, X. (2018). Application of Multiboost-KELM algorithm to alleviate the collinearity of log curves for evaluating the abundance of organic matter in marine mud shale reservoirs : A case study in Sichuan Basin, China. *Acta Geophysica*, *66*(5), 983-1000.

Zhu, L., Zhou, X., Liu, W., & Kong, Z. (2023). Total organic carbon content logging prediction based on machine learning : A brief review. *Energy Geoscience*, *4*(2), 100098.

Ziegler, P. A. (1990). Collision related intra-plate compression deformations in Western and Central Europe. *Journal of Geodynamics*, *11*(4), 357-388.

Annexes

Annexe 1

Les analyses cinétiques des trois lithologies de la roche mère du bassin carbonifère lorrain (le charbon, le charbon argileux, et l'argile)

Les analyses cinétiques des trois lithologies de la roche mère du bassin carbonifère ont été réalisées au laboratoire GEOS4. Tous les résultats sont disponibles dans le rapport d'analyse n° 20221212, qui sera joint au dépôt de l'ensemble des fichiers relatifs aux études menées dans le cadre de cette thèse sur le bassin carbonifère lorrain. Ce rapport présente l'analyse cinétique globale de trois échantillons de roche mère, à savoir le charbon, le charbon argileux, et les argiles, qui ont également été utilisés pour la maturation artificielle de la sectionIV.2).

Les paramètres de génération des hydrocarbures ont été déterminés à l'aide des appareils Rock-Eval 6 et 4, en utilisant quatre vitesses de chauffage différentes (0,7, 2,0, 5,0 et 15,0 K/min). Pour l'échantillon de charbon, les énergies d'activation principales varient entre 54 et 56 kcal/mol. Concernant les échantillons d'argilite charbonneuse et d'argilite, environ 10 niveaux d'énergie d'activation, compris entre 55 et 66 kcal/mol, sont nécessaires pour atteindre au moins 70 % de la réaction globale (Figure S.1.1).

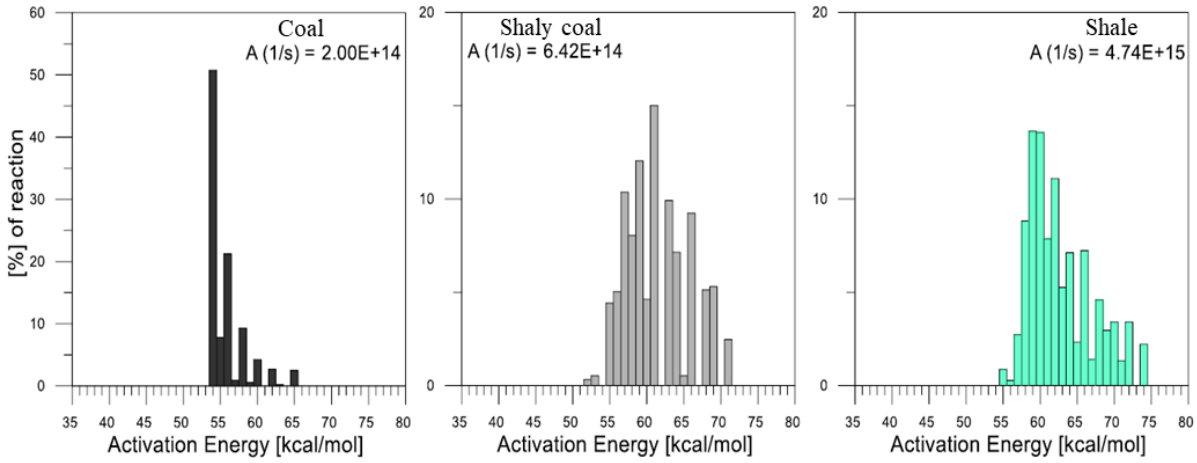


Figure S.1.1: Paramètres cinétiques des trois lithologies de roche mère du bassin carbonifère lorrain (Le tableau des données brutes disponible dans le rapport n° 20221212).

La Figure S.1.2 présente l'évolution du taux de transformation (TT) et du taux de génération en fonction de la température ainsi que de la réflectance de la vitrinite easyRo, dans un scénario géologique simplifié avec un flux thermique de 3 K/Ma, en se basant sur les observations issues des distributions d'énergie d'activation (Ea) de la Figure S.1.1.

Pour le charbon, le début de la génération des hydrocarbures se situe à 137°C, avec un taux de transformation maximal (Tpic) à 147°C et un pic de génération à 150°C. Cela correspond à une réflectance de la vitrinite comprise entre 0,7 et 0,8 %, avec un pic aux alentours de 1 %. Pour les échantillons d'argilite et d'argilite charbonneuse, le début de la génération de pétrole (10 % TT) se produit à des températures comprises entre 152 et 153°C, avec un pic à 166°C. Ce début de génération des hydrocarbures correspond à une réflectance de la vitrinite entre 0,7 et 1 %, avec un pic à 1,3 %.

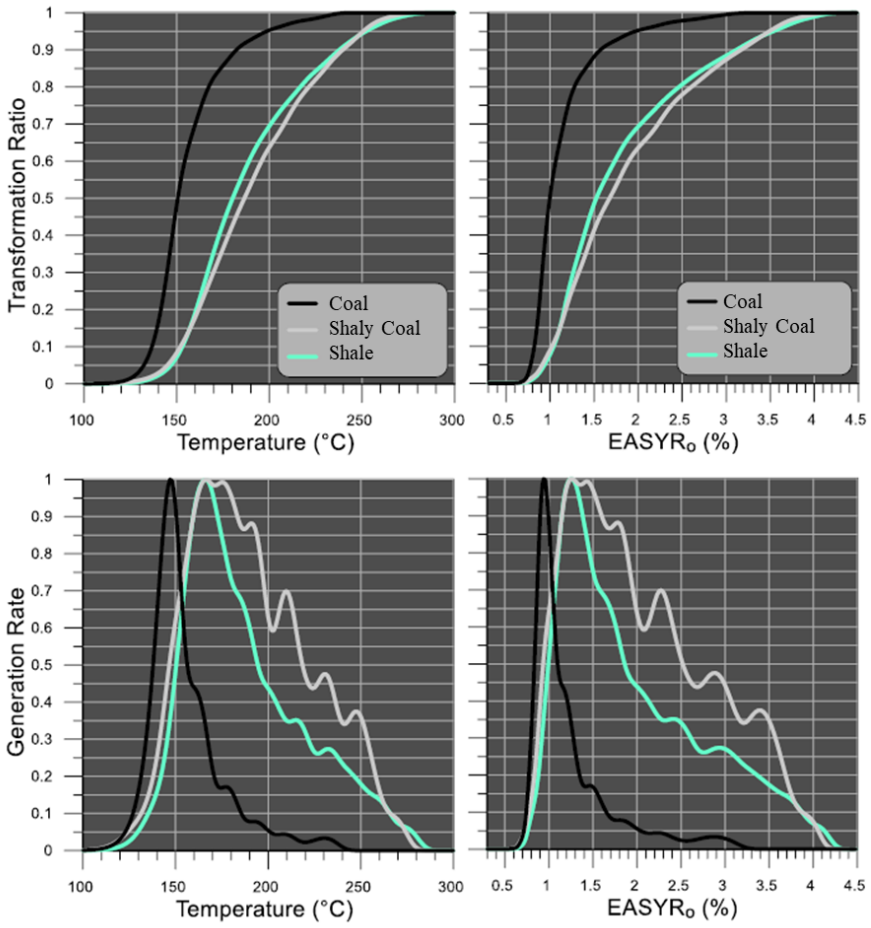


Figure S.1.2 : Courbes du taux de transformation et du taux de génération en fonction de la température et de la réflectance de la vitrinite, calculées à l'aide des modèles cinétiques présentés dans la Figure S.1.1, appliqués à un taux de 3 K/Ma.

Ces résultats d'analyses peuvent être utilisés dans le logiciel Petromod pour calibrer la modélisation thermique et la génération des hydrocarbures dans le bassin lorrain. Ils permettent également de comparer ces données avec la dernière étude d'Izart et al. (2016), qui a utilisé les paramètres cinétiques de type III de Burnham (1989) pour calibrer les scénarios de genèse des hydrocarbures en Lorraine.

Annexe 2

Ash Content and Density Measurements of Coal Bed Samples from the Folschviller, Lachambre and Tritling Wells

Well	Depth (m)	Coal Layers	V Ash (v/v)	Density ($g.cm^{-3}$)
Folschviller	806	08- 09	0.032	1.21
Folschviller	1150	alpha- Alpha'-Beta-Gamma	0.17	1.28
Folschviller	910	alpha- Alpha'-Beta-Gamma	0.07	ND
Lachambre	1082	15	0.2601	1.32
Lachambre	1082	15	0.268	1.32
Lachambre	1184	18	0.049	1.31
Lachambre	1184	18	0.05	1.31
Lachambre	1187	19	0.1553	1.35
Lachambre	1187	19	0.164	1.35
Tritling	1088	6	0.3072	1.61
Tritling	1240	7	0.361	1.59
Tritling	1242	8	0.143	1.41
Tritling	1244	9	0.0467	1.35
Tritling	1250	10	0.0979	1.37

Annexe 3

Proximate Analysis Measurements (*Ash Content, Moisture Content, Fixed Carbon Volume, and Volatile Matter Volume) Utilized to Establish Empirical Relationships in the Hbl Sector, Saulcy, Lorette, Lachambre Tritling, and Folschviller wells.*

Well	Depth (m)	Coal Layers	V Ash (v/v)	V FC (v/v)	V M (v/v)	V V (v/v)
Folschviller	910	alpha- Alpha'-Beta-Gamma	0.07	0.509	0.023	0.398
Lachambre	1082	15	0.2601	0.4261	ND	0.2688
Lachambre	1082	15	0.268	0.439	0.016	0.277
Lachambre	1184	18	0.049	0.5807	ND	0.3343
Lachambre	1184	18	0.05	0.592	0.017	0.341
Lachambre	1187	19	0.1553	0.5012	ND	0.2765
Lachambre	1187	19	0.164	0.529	0.015	0.292
Tritling	1088	6	0.3072	ND	ND	ND
Tritling	1240	7	0.361	ND	ND	ND
Tritling	1242	8	0.143	ND	ND	ND
Tritling	1244	9	0.0467	ND	ND	ND
Tritling	1250	10	0.0979	ND	ND	ND
Saulcy	1238.7	ND	0.276	0.4	0.018	0.306
Saulcy	1262.5	ND	0.026	0.536	0.022	0.416
Saulcy	1263.9	ND	0.036	0.537	0.024	0.403
Saulcy	1263.8	ND	0.066	0.535	0.023	0.376
Saulcy	1314.9	ND	0.423	0.3	0.017	0.26
Saulcy	1356.4	ND	0.146	0.502	0.016	0.336
Saulcy	1369.9	ND	0.202	0.422	0.016	0.36
Saulcy	1389.5	ND	0.738	0.118	0.012	0.132
Saulcy	1390.7	ND	0.513	0.263	0.012	0.212
Saulcy	-	ND	0.858	0.033	0.007	0.102
Saulcy	1474.2	ND	0.586	0.221	0.013	0.18
Saulcy	1495.4	ND	0.074	0.549	0.016	0.361
Saulcy	1501.5	ND	0.196	0.742	0.016	0.046
Saulcy	1519.1	ND	0.169	0.499	0.016	0.316
Saulcy	1522.7	ND	0.715	0.131	0.014	0.14
Saulcy	1543.7	ND	0.85	0.017	0.008	0.125
Saulcy	1545.7	ND	0.548	0.245	0.014	0.193
Saulcy	1558.4	ND	0.839	0.055	0.014	0.092
Saulcy	1560.5	ND	0.882	0.033	0.009	0.076
Saulcy	1567	ND	0.878	0.019	0.01	0.093
Saulcy	1585.3	ND	0.791	0.098	0.01	0.101
Saulcy	1588.8	ND	0.794	0.095	0.01	0.101
Saulcy	1591.6	ND	0.806	0.084	0.014	0.096
Saulcy	1594.9	ND	0.676	0.173	0.013	0.138
Saulcy	1630.3	ND	0.766	0.087	0.011	0.136
Saulcy	1650	ND	0.526	0.273	0.014	0.187
Saulcy	1701.1	ND	0.814	0.078	0.011	0.097
Saulcy	1722.1	ND	0.824	0.069	0.011	0.096
Saulcy	1729.9	ND	0.528	0.272	0.013	0.187

Well	Depth (m)	Couche	V Ash (v/v)	V FC (v/v)	V M (v/v)	V V (v/v)
Saulcy	1774.3	ND	0.871	0.037	0.012	0.08
Saulcy	1717.4	ND	0.934	0.003	0.009	0.054
Saulcy	1833.7	ND	0.66	0.177	0.011	0.152
Lorette	1266	ND	0.598	0.205	0.013	0.184
Lorette	1275.5	ND	0.092	0.545	0.014	0.349
Lorette	1390.6	ND	0.371	0.375	0.016	0.238
Lorette	1421	ND	0.418	0.352	0.014	0.216
Lorette	1427.3	ND	0.308	0.426	0.014	0.252
Lorette	1456.1	ND	0.092	0.582	0.013	0.313
Lorette	1457.9	ND	0.184	0.526	0.012	0.278
Lorette	1519.5	ND	0.526	0.276	0.014	0.184
Lorette	1573.6	ND	0.14	0.554	0.012	0.294
Lorette	1580	ND	0.435	0.353	0.01	0.202
Lorette	1627.6	ND	0.514	0.299	0.013	0.174
Lorette	1641.9	ND	0.185	0.531	0.01	0.274
Lorette	1732.3	ND	0.862	0.041	0.014	0.083
Lorette	-	ND	0.86	0.034	0.012	0.094
Lorette	1778.9	ND	0.723	0.132	0.012	0.133
Lorette	1780.1	ND	0.826	0.058	0.008	0.108
Lorette	1790.5	ND	0.79	0.1	0.01	0.1
La houve	ND	La houve	0.0675	0.463	ND	0.411
Simon	ND	Simon	0.0694	0.4975	ND	0.401
Gargan	ND	Gargan	0.0518	0.5047	ND	0.412
Saint charles	ND	Saint charles	0.066	0.5269	ND	0.382
Reden	ND	Reden	0.05	0.5801	0.0119	0.358
Bergmannsgluck	ND	Bergmannsgluck	0.0805	0.6972	0.0143	0.208

Annexe 4

Measured Desorbed Gas Volumes In Folschviller Well: *This table presents desorbed gas volumes measured by La Française de l'Énergie (LaFdE) for coal samples from the Folschviller well, along with corresponding log density values at each sampling depth. The data serve two primary purposes: 1. To provide a range of measured gas volumes for comparison with log-derived calculations from this study. 2. To attempt the derivation of a calibration equation for predicting gas volumes, as illustrated in figure S4.1. However, due to a low correlation coefficient, this calibration was deemed unsuitable for volume calculations. Note: The weak correlation between measured gas volumes and log density values highlights the complexity of gas content prediction in coal seams and underscores the need for alternative methodologies (Mullen, 1989; Mavor et al., 1990).*

Depth (m)	Density ($g.cm^{-3}$)	Gc Fols 1a (m^3/ton)
1094.74	1.54	9.1
1095.08	1.5	11.8
1095.72	1.25	14.2
1096.04	1.38	9.8
1096.56	1.36	10.2
1098.16	1.28	13.2
1098.55	1.36	11
1099.15	1.22	10.6
1101.5	1.3	11.2
1102.58	1.3	10.6
1103.15	1.3	14.9
1103.65	1.8	10.3
1104.6	1.29	11
1105.02	1.9	12.5
1105.5	1.3	12.6
1107.47	1.4	13
1114.13	1.38	13
1114.74	1.8	10.1
1115.38	1.27	11.6
1150.68	1.7	10.6
1151.12	1.38	10.2
1151.58	1.3	8

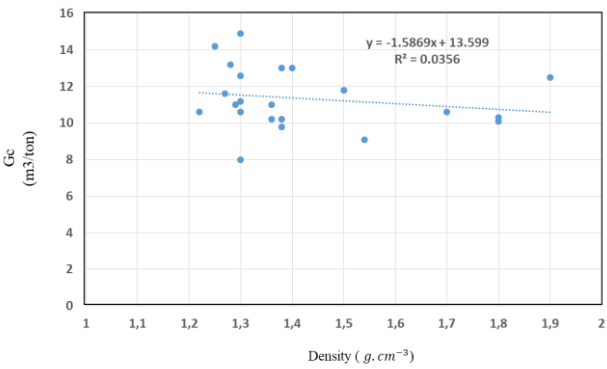


Figure S.4.1: Measured gas volumes and log density values in Fols 1a Well.

In addition to the primary study, we utilized available neutron porosity log data across the dataset (Figure S4.2). This supplementary analysis aimed to compare and potentially derive a new chart correlating gamma-ray values with neutron porosity (Figure SA) for various lithological families in the Lorraine Carboniferous Basin. This approach extends the Chart proposed by Rider et Kennedey (2011), with a specific focus on highlighting the extension towards organic-rich facies (coal). A three-dimensional cross-plot representation, available as a video file in the supplementary data, was developed to visualize these relationships. This visualization incorporates gamma-ray, neutron porosity, and lithological classification data, offering a comprehensive view of the facies distribution within the basin. This additional analysis, while not central to the main article, provides valuable insights into the petrophysical characteristics of the Lorraine Carboniferous Basin and may serve as a foundation for future, more detailed studies of organic-rich facies in similar geological settings.

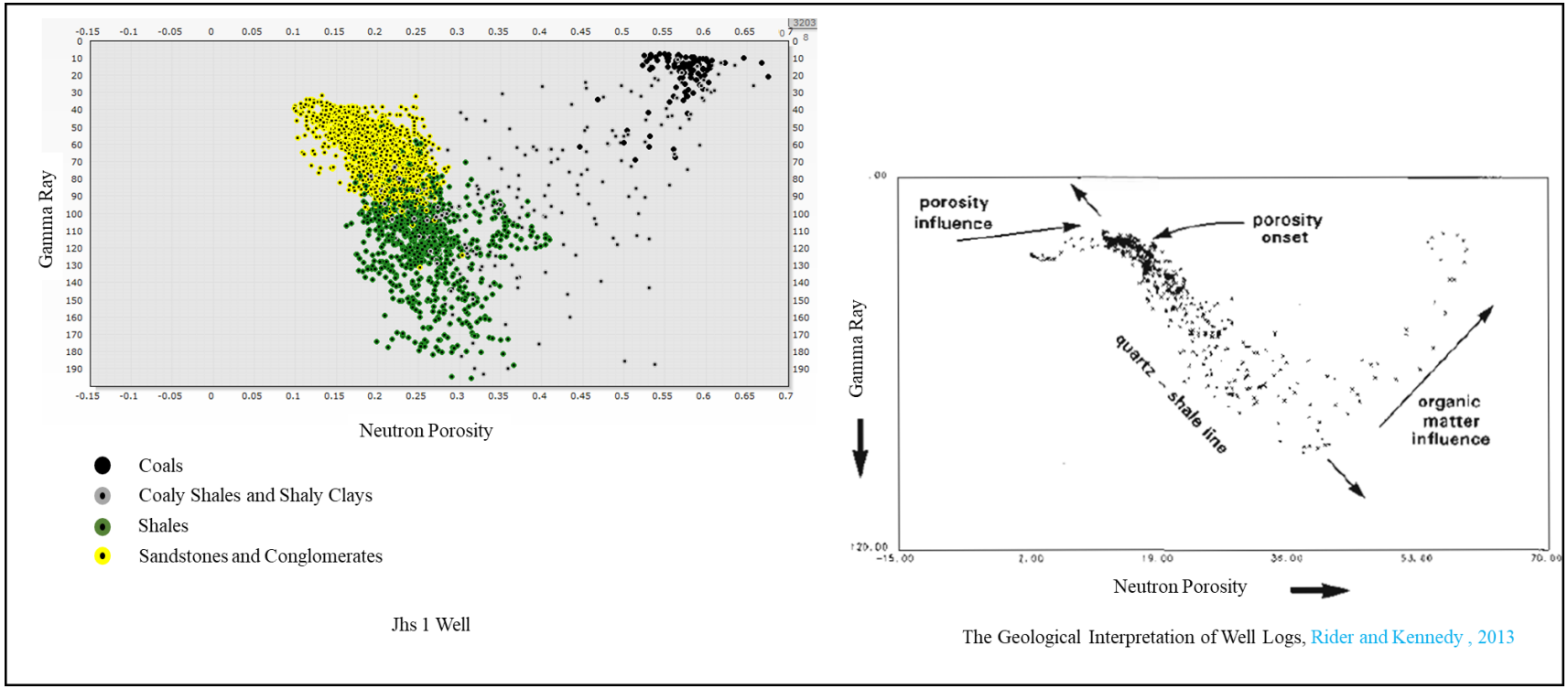


***Figure S4.2**: Neutron Porosity vs. Gamma-Ray Cross-Plot for Lithological Classification in the Lorraine Carboniferous Basin*

Annexe 5

Résultats des analyses DRX sur les échantillons de forage Fols 1A (Roche total).

Profondeur (m)	Lithologie	Quartz (%)	Orthoclases (%)	Micas (%)	Argiles (%)	Pyrite (%)	Sidérite (%)	Hématites (%)
800	Argilites	49.5	3.7	21.6	25	0	0	0
819.5	Grés	66.8	13.6	9.9	9.7	0	0	0
825	Conglomérats	70.7	9.7	9.2	9.8	0.6	0	0
862.5	Siltites argileuses	45.5	6.5	21.4	25.7	0.8	0	0
880	Grés silteux	55.7	18.8	17.7	7.8	0	0	0
883.5	Conglomérat	89.9	5.4	1.8	3	0	0	0
990	Siltites	49.1	4.6	18.8	27.6	0	0	0
998	Grés conglomératiques	89.5	6.9	1.1	2.5	0	0	0
1142.5	Siltites charbonneuse	81.8	3.6	7.6	6.7	0.2	0	0
1180	Argilites silteuses	63.3	5.3	24.8	6.2	0.4	0	0
1184	Argilites	43.7	6.2	37.4	11.8	0.9	0	0
1193	Grés	81.2	4.8	0	12.8	0	0	0
1268	Grés silteux	35.3	6.6	31.3	21.4	4.8	0	0
1270	Argiles	48.9	11.7	7.4	31.4	0.6	0	0
1280	Grés grossier	75.1	2.6	6.3	10.6	0	0.2	5.2
1284.5	Argiles charbonneuses	32.9	4.4	23	39.6	0	0	0
1287.15	Argilites	51.3	7.2	21.6	20	0	0	0
1295.4	Grés	78.3	5.3	8.1	7.6	0	0.8	0
1300.18	Conglomérats	82.9	3.3	7.3	3.4	1.3	1.6	0

Annexe 6

Résultats des analyses DRX sur les échantillons de forage Fols 1A (*Fractions asgileuses et indice de cristalinité de l'illite****).***

Profondeur (m)	Litologie	Illites (%)	Kaolinites (%)	Chlorites (%)	Indice de cristallinité de l'illite
800	Argilites	65	20	15	0.284
819.5	Grés	30	65	5	0.259
825	Conglomérats	35	60	5	0.257
862.5	Siltites argileuses	70	15	15	0.3
880	Grés silteux	80	15	5	0.27
883.5	Conglomérat	35	55	10	0.268
990	Siltites	70	15	15	0.257
998	Grés conglomératiques	20	75	5	0.29
1142.5	Siltites charbonneuse	75	25	0	0.25
1180	Argilites silteuses	80	15	5	0.225
1184	Argilites	80	15	5	0.277
1193	Grés	75	25	0	0.255
1268	Grés silteux	80	10	10	0.267
1270	Argiles	80	10	10	0.235
1280	Grés grossier	80	15	5	0.258
1284.5	Argiles charbonneuses	75	10	15	0.245
1287.15	Argilites	65	30	5	0.228
1295.4	Grés	25	75	0	0.27
1300.18	Conglomérats	35	65	0	0.335

Annexe 7

Résultats des analyses DRX sur les échantillons de forage Dbl s1 (Roche total).

Profondeur (m)	Lithologie	Quartz (%)	Orthoclases (%)	Micas (%)	Argiles (%)	Pyrite (%)	Sidérite (%)	Hématites (%)
963,42	Siltite	43.90	11.90	7.50	21.40	0.70	14.60	0.00
965	Siltite charbonneuse	34.30	8.70	7.00	42.10	0.90	7.00	0.00
975,3	Grés	63.30	8.50	7.00	18.60	0.30	2.30	0.00
1037,9	Siltite charbonneuse	33.80	4.50	10.00	41.10	0.60	10.00	0.00
1061,5	Grés	58.50	8.40	5.00	21.80	0.40	5.90	0.00
1235,5	Siltite	52.40	7.40	13.40	24.20	0.40	2.20	0.00
1240,5	Grés grossier	70.00	6.00	2.20	13.70	0.20	7.90	0.00
1271	Argile charbonneuse	44.70	11.80	12.50	21.60	0.60	8.80	0.00
1272	Siltite argileuse	44.00	7.20	10.00	33.00	0.40	5.40	0.00
1282,2	Grés	62.90	6.90	16.30	10.90	2.40		0.60
1305,8	Argile charbonneuse	29.60	4.50	43.40	20.30	1.00	0.00	1.20
1337,9	Siltite charbonneuse	42.90	10.60	10.00	19.30	1.70	15.50	0.00
1354,5	Siltite	34.60	4.80	25.40	23.00	0.40	11.80	0.00
1358,9	Siltite	51.30	11.30	18.10	18.40	0.40	0.00	0.50
1359,5	Conglomérat	82.10	3.30	7.90	6.00	0.30	0.00	0.40

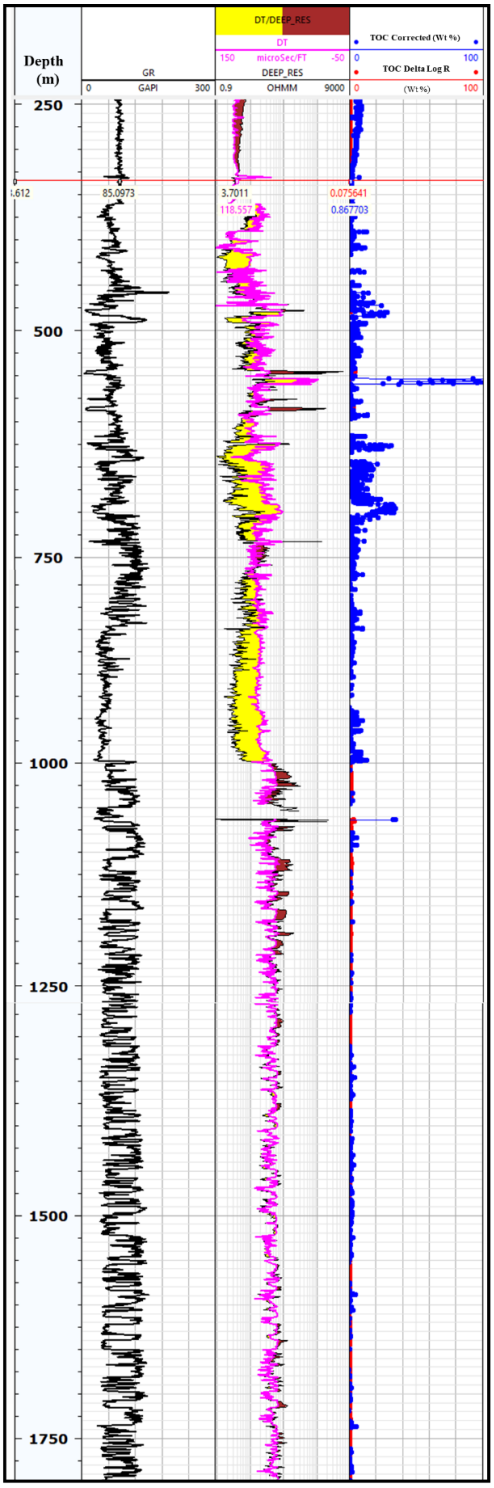
Annexe 8

Résultats des analyses DRX sur les échantillons de forage Dbl s1 (*Fractions asgileuses et indice de cristalinité de l'illite****).***

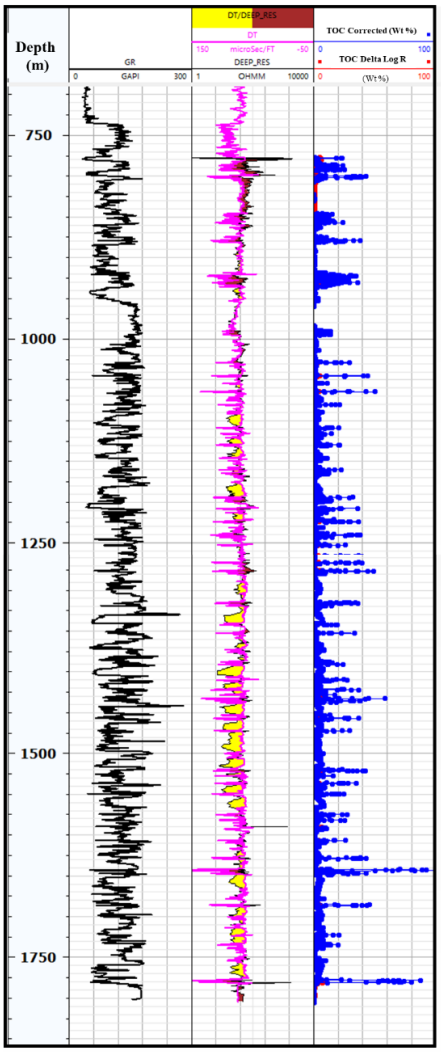
Profondeur (m)	Litologie	Illites (%)	Kaolinites (%)	Chlorites (%)	Indice de cristallinité de l'illite
963,1	Siltite	20	80	00	0.453
965	Siltite charbonneuse	25	70	00	0.455
975,3	Grés	25	75	00	0.517
1037,9	Siltite charbonneuse	35	65	00	0.405
1061,5	Grés	35	65	00	0.555
1235,5	Siltite	25	75	00	0.39
1240,5	Grés grossier	15	85	00	0.305
1271,2	Argile charbonneuse	25	75	00	0.440
1272	Siltite argileuse	35	65	00	0.461
1282,8	Grés	25	75	00	0.324
1305,8	Argile charbonneuse	30	70	00	0.379
1337,9	Siltite charbonneuse	70	30	00	0.271
1354,5	Siltite	70	30	00	0.285
1357,8	Siltite	60	40	00	0.232
1359,3	Conglomérat	40	60	00	0.374

Annexe 9

Résultats de l'application des nouvelles équations proposées dans la section III.2 sur les forages Chaumont et Lorette.



Chaumont



Lorettes

Annexe 10

Vitrinite Reflectance Measurements and Thermal Maturation Zone Classification of Samples from the Lorraine Coal Basin

Well	Sampels	Study	Depht	Formation	Vitrinite reflectance (%Ro)	Standard deviation	Count	Confidence (95%)	Sample Type	Coal Rank	Generation zone	Thermal maturation zone Classification (1)	Generation zone	Thermal maturation zone Classification (2)
FOLS1A	Fra001	Franck Thesis	807-811 m	Westphalian D	0.78	0.04	50	0.01	Coal/Whole Rock	High volatile bituminous B	No generation	immature (<0.8%)	Main Oil	Main Oil (0.7-1%)
FOLS1A	-	EGL	1094	Westphalian D	0.84	0.04	100	-	Coal	High volatile bituminous A	Early gas	Early gas (0.8-1.2%)	Main Oil	Main Oil (0.7-1%)
FOLS1A	-	EGL	1100	Westphalian D	0.85	0.05	100	-	Coal	High volatile bituminous A	Early gas	Early gas (0.8-1.2%)	Main Oil	Main Oil (0.7-1%)
FOLS1A	-	EGL	1150	Westphalian D	0.89	0.04	100	-	Coal	High volatile bituminous A	Early gas	Early gas (0.8-1.2%)	Main Oil	Main Oil (0.7-1%)
FOLS1A	Fra002	Franck Thesis	1150-1154 m	Westphalian D	0.86	0.06	50	0.02	Coal/Whole Rock	High volatile bituminous A	Early gas	Early gas (0.8-1.2%)	Main Oil	Main Oil (0.7-1%)
FOLS1A	-	EGL	1160	Westphalian D	0.84	0.06	100	-	Coal	High volatile bituminous A	Early gas	Early gas (0.8-1.2%)	Main Oil	Main Oil (0.7-1%)
FOLS1A	-	EGL	1162	Westphalian D	0.89	0.04	100	-	Coal	High volatile bituminous A	Early gas	Early gas (0.8-1.2%)	Main Oil	Main Oil (0.7-1%)
FOLS1A	-	EGL	1267	Westphalian D	0.84	0.05	100	-	Coal	High volatile bituminous A	Early gas	Early gas (0.8-1.2%)	Main Oil	Main Oil (0.7-1%)
FOLS1A	-	EGL	1286	Westphalian D	0.93	0.05	100	-	Coal	High volatile bituminous A	Early gas	Early gas (0.8-1.2%)	Main Oil	Main Oil (0.7-1%)
DBL S1	-	EGL	1287	Westphalian C	0.96	0.05	100	-	Coal	High volatile bituminous A	Early gas	Early gas (0.8-1.2%)	Main Oil	Main Oil (0.7-1%)
Coume	Sal 100	This study	807.85	Stephanian	0.86	0.08	49	0.02	Coal	High volatile bituminous A	Early gas	Early gas (0.8-1.2%)	Main Oil	Main Oil (0.7-1%)
Coume	Sal 101	This study	807.95	Stephanian	0.70	0.04	49	0.01	Coal	High volatile bituminous B	No generation	immature(<0.8%)	Early Oil	Early Oil (0.55-0.7%)
Coume	Sal 102	This study	1063.00	Westphalian D	0.78	0.07	47	0.02	Coal	High volatile bituminous B	No generation	immature(<0.8%)	Main Oil	Main Oil (0.7-1%)
Coume	Sal 103	This study	1082.00	Westphalian D	0.93	0.03	53	0.01	Coal	High volatile bituminous A	Early gas	Early gas (0.8-1.2%)	Main Oil	Main Oil (0.7-1%)
Saulcy	sal105	This study	664.20	Westphalian C	0.80	0.05	50	0.01	Coal/Silty	High volatile bituminous A	Early gas	Early gas (0.8-1.2%)	Main Oil	Main Oil (0.7-1%)
Saulcy	sal106	This study	795.70	Westphalian C	0.76	0.05	45	0.02	Coal/Clay	High volatile bituminous B	No generation	immature(<0.8%)	Main Oil	Main Oil (0.7-1%)
Saulcy	sal107	This study	894.00	Westphalian C	0.76	0.04	47	0.01	Coal	High volatile bituminous B	No generation	immature(<0.8%)	Main Oil	Main Oil (0.7-1%)
Gironville 101	SAL117	This study	1392.50	Westphalian C	0.80	0.08	20	0.04	Clay	High volatile bituminous B	Early gas	Early gas (0.8-1.2%)	Main Oil	Main Oil (0.7-1%)
Gironville 101	SAL118	This study	1528.60	Westphalian C	0.83	0.09	31	0.03	Clay rich coal	High volatile bituminous B	Early gas	Early gas (0.8-1.2%)	Main Oil	Main Oil (0.7-1%)
Gironville 101	SAL123	This study	1607.70	Westphalian C	0.93	0.08	39	0.03	Clay rich coal	High volatile bituminous A	Early gas	Early gas (0.8-1.2%)	Main Oil	Main Oil (0.7-1%)
Gironville 101	SAL125	This study	1679.70	Westphalian C	0.86	0.06	21	0.03	Coaly clay	High volatile bituminous A	Early gas	Early gas (0.8-1.2%)	Main Oil	Main Oil (0.7-1%)
Gironville 101	SAL126	This study	1739.20	Westphalian C	0.92	0.07	30	0.03	Clay rich coal	High volatile bituminous A	Early gas	Early gas (0.8-1.2%)	Main Oil	Main Oil (0.7-1%)

Gironville 101	SAL127	This study	1828.60	Westphalian C	0.91	0.07	30	0.03	Coal	High volatile bituminous A	Early gas	Early gas (0.8-1.2%)	Main Oil	Main Oil (0.7-1%)
Gironville 101	SAL134	This study	3157.70	Westphalian B	1.61	0.08	19	0.04	Coal rich clay	Low volatile bituminous	Peak gas	Peak gas (1.2-2.0%)	Wet Gas	Wet Gas (1.3-2%)
Gironville 101	SAL135	This study	3424.40	Westphalian B	2.25	0.08	5	0.10	Clay	Semi-anthracite	Late gas	Late gas (2.0)	Gas	Dry gas (2.00-4.00%)
Gironville 101	SAL137	This study	3485.00	Westphalian A	2.19	0.07	18	0.03	Clay	Semi-anthracite	Late gas	Late gas (2.0)	Gas	Dry gas (2.00-4.00%)
Gironville 101	SAL142	This study	3620.60	Westphalian A	2.20	0.16	19	0.08	Coal and sand	Semi-anthracite	Late gas	Late gas (2.0)	Gas	Dry gas (2.00-4.00%)
Gironville 101	SAL145	This study	3953.00	Westphalian A	2.78	0.21	20	0.10	Coal silt	Anthracite	Late gas	Late gas (2.0)	Gas	Dry gas (2.00-4.00%)
Gironville 101	SAL146	This study	4261.80	Westphalian A	2.66	0.13	27	0.05	Clay rich coal	Anthracite	Late gas	Late gas (2.0)	Gas	Dry gas (2.00-4.00%)
Gironville 101	SAL148	This study	4392.90	Westphalian A	2.66	0.14	28	0.06	Clay	Anthracite	Late gas	Late gas (2.0)	Gas	Dry gas (2.00-4.00%)
Gironville 101	SAL150	This study	5168.10	Westphalian A	4.76	0.14	13	0.08	Clay	Meta-anthracite	No generation	Overmature (>4.00%)	No generation	Overmature (>4.00%)
Gironville 101	SAL151	This study	5325.50	Westphalian A	5.08	0.36	14	0.21	Coaly clay	Meta-anthracite	No generation	Overmature (>4.00%)	No generation	Overmature (>4.00%)
Gironville 101	SAL153	This study	5675.90	Westphalian A	5.42	0.49	20	0.23	coal	Meta-anthracite	No generation	Overmature (>4.00%)	No generation	Overmature (>4.00%)
Gironville 101	SAL156	This study	5682.50	Westphalian A	6.02	0.63	25	0.26	Coaly clay	Meta-anthracite	No generation	Overmature (>4.00%)	No generation	Overmature (>4.00%)
Mine La Houve	Fra 003	Franck Thesis	900 m	Westphalian D	0.50	0.05	55	0.01	Coal/Whole Rock	Sub bituminous A	No generation	immature(<0.8%)	Immature	Immature (0.25-0.55%)
Neunkirchen	Sal 108	This study	outcorp	Westphalian C	0.87	0.07	50	0.02	Coal/Whole Rock	High volatile bituminous A	Early gas	Early gas (0.8-1.2%)	Main Oil	Main Oil (0.7-1%)
Burbach	Sal 104	This study	outcorp	Westphalian D	0.73	0.04	50	0.01	Coal/Whole Rock	High volatile bituminous B	No generation	immature(<0.8%)	Main Oil	Main Oil (0.7-1%)

Annexe 11

Subgroup Maceral Content Values of Vitrinite in Vol% on Whole Samples.

Location	ID	Depth (m)	Formation	Lithology	Telinite	Collotelinite*	Pseudovitrinite	**TeloVitrinite**	Vitrodetrinite	Collodetrinite	Desmocollinite	**Detrovitrinite**	Gelinite	**Gelovetrinite**
FOLS1A	Fra-001	807-811	Westphalian D	Coal	0.00	26.53	0.00	**26.53**	26.53	0.00	4.61	**31.14**	0.00	**0.00**
FOLS1A	Sal-020	813.2	Westphalian D	Coal	0.00	67.18	0.00	**67.18**	0.00	4.18	0.00	**4.18**	0.00	**0.00**
FOLS1A	Sal-017	860.5	Westphalian D	Coal	0.00	64.42	0.00	**64.42**	0.00	0.00	32.76	**32.76**	0.00	**0.00**
FOLS1A	Sal-013	991.5	Westphalian D	Coal	0.00	87.68	0.00	**87.68**	0.00	0.00	0.00	**0.00**	0.00	**0.00**
FOLS1A	Sal-116	1150	Westphalian D	Shaly Coal	0.00	70.44	0.00	**70.44**	0.00	0.00	13.40	**13.40**	0.00	**0.00**
FOLS1A	Fra-002	1150-1154	Westphalian D	Coal	0.00	29.12	0.00	**29.12**	17.92	0.00	8.96	**26.88**	0.00	**0.00**
FOLS1A	Sal-009	1184	Westphalian D	Shale	0.00	61.72	0.00	**61.72**	0.29	0.00	0.00	**0.29**	0.00	**0.00**
FOLS1A	Sal-005	1270.5	Westphalian D	Silty Coal	0.00	63.40	0.00	**63.40**	0.00	0.00	0.00	**0.00**	0.00	**0.00**
DBL S1	Sal-040	966.32	Westphalian D	Coal	0.00	56.48	0.00	**56.48**	7.30	3.22	2.65	**13.16**	0.00	**0.00**
DBL S1	Sal-038	1031.6	Westphalian D	Coal	0.00	81.14	0.00	**81.14**	0.00	0.00	0.00	**0.00**	0.00	**0.00**
DBL S1	Sal-035	1227	Westphalian D	Coal	0.00	71.13	0.00	**71.13**	0.00	0.00	0.00	**0.00**	0.00	**0.00**
DBL S1	Sal-032	1265.25	Westphalian C	Coal	0.00	85.01	0.00	**85.01**	0.00	0.00	0.00	**0.00**	0.00	**0.00**
DBL S1	Sal-028	1303.53	Westphalian C	Coal	0.00	60.12	0.00	**60.12**	8.88	0.00	0.00	**8.88**	0.00	**0.00**
DBL S1	Sal-025	1338.1	Westphalian C	Coal	0.00	54.61	0.00	**54.61**	0.00	0.00	0.00	**0.00**	0.00	**0.00**
Coume	Sal-100	807.85	Stephanian	Coal	0.00	73.20	0.00	**73.20**	0.25	0.00	0.00	**0.25**	0.00	**0.00**
Coume	Sal-101	807.95	Stephanian	Coal	0.00	62.75	0.00	**62.75**	18.61	0.00	0.00	**18.61**	0.00	**0.00**
Coume	Sal-102	1064	Westphalian D	Coal	0.00	37.65	0.00	**37.65**	28.21	0.00	0.00	**28.21**	0.00	**0.00**
Coume	Sal-103	1087	Westphalian D	Coal	0.00	78.39	0.00	**78.39**	4.10	0.00	0.00	**4.10**	0.00	**0.00**
Saulcy	Sal-075	1410	Westphalian C	Silty Coal	0.00	57.46	0.00	**57.46**	19.83	4.45	1.46	**25.73**	0.00	**0.00**
Saulcy	Sal-070	1476	Westphalian C	Silty Coal	0.00	64.75	0.00	**64.75**	0.00	0.00	6.72	**6.72**	0.00	**0.00**
Saulcy	Sal-065	1584	Westphalian C	Coal	0.00	54.18	0.00	**54.18**	22.95	3.15	0.91	**27.01**	0.00	**0.00**
Saulcy	Sal-057	1653	Westphalian C	Coaly shale	0.00	54.77	0.00	**54.77**	9.37	0.00	0.00	**9.37**	0.00	**0.00**

Saulcy	Sal-096	1661	Westphalian C	Coaly shale	0.00	73.63	0.00	**73.63**	0.00	0.00	0.00	**0.00**	0.00	**0.00**
Saulcy	Sal-050	1704.9	Westphalian C	Shaly Coal	0.00	50.94	0.00	**50.94**	32.40	0.00	2.01	**34.41**	0.00	**0.00**
Gionville 101	Sal-118	1528.6	Westphalian C	Shaly Coal	0.00	72.26	0.00	**72.26**	0.00	0.00	0.00	**0.00**	0.00	**0.00**
Gionville 101	Sal-123	1607.7	Westphalian C	Shaly Coal	0.00	62.77	0.00	**62.77**	0.00	0.00	0.00	**0.00**	0.00	**0.00**
Gionville 101	Sal-126	1739.2	Westphalian C	Shaly Coal	0.00	49.68	0.00	**49.68**	0.00	0.00	0.00	**0.00**	0.00	**0.00**
Gionville 101	Sal-127	1828.6	Westphalian C	Coal	0.00	59.59	0.00	**59.59**	0.00	0.00	0.00	**0.00**	0.00	**0.00**
la Houve Mine	Fra-003	900	Westphalian D	Coal	0.00	14.24	0.00	**14.24**	29.44	0.00	3.80	**33.24**	0.00	**0.00**
Neunkirchen	Sal-108	Sarre Outcrop	Westphalian C	Coal	0.00	29.61	0.00	**29.61**	24.22	0.00	0.00	**24.22**	0.00	**0.00**
BURBACH	Sal-104	Sarre Outcrop	Westphalian D	Coal	0.00	41.81	0.00	**41.81**	17.22	0.00	2.46	**19.68**	0.00	**0.00**

Annexe 12

Subgroup Maceral Content Values of Inertinite in Vol% on Whole Samples

Location	ID	Depth (m)	Formation	Lithology	Fusinite	Semifusinite	Micrinite	Macrinite	Secretinite	Funginite**	Inertodetrinite
FOLS1A	Fra-001	807-811	Westphalian D	Coal	13.78	9.54	1.06	2.12	0.00	0.00	0.00
FOLS1A	Sal-020	813.2	Westphalian D	Coal	9.35	9.41	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
FOLS1A	Sal-017	860.5	Westphalian D	Coal	0.78	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
FOLS1A	Sal-013	991.5	Westphalian D	Coal	2.16	1.79	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
FOLS1A	Sal-116	1150	Westphalian D	Shaly Coal	5.15	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
FOLS1A	Fra-002	1150-1154	Westphalian D	Coal	18.62	6.12	0.00	0.77	0.00	0.00	0.00
FOLS1A	Sal-009	1184	Westphalian D	Shale	0.36	1.24	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
FOLS1A	Sal-005	1270.5	Westphalian D	Silty Coal	3.75	0.34	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
DBL S1	Sal-040	966.32	Westphalian D	Coal	17.56	10.27	0.00	0.76	0.00	0.00	0.00
DBL S1	Sal-038	1031.6	Westphalian D	Coal	4.73	3.78	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
DBL S1	Sal-035	1227	Westphalian D	Coal	3.64	20.10	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
DBL S1	Sal-032	1265.25	Westphalian C	Coal	2.46	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
DBL S1	Sal-028	1303.53	Westphalian C	Coal	23.97	1.69	0.00	0.26	0.00	0.00	0.00
DBL S1	Sal-025	1338.1	Westphalian C	Coal	8.19	0.00	0.00	11.44	0.00	0.00	0.00
Coume	Sal-100	807.85	Stephanian	Coal	4.09	8.94	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Coume	Sal-101	807.95	Stephanian	Coal	0.28	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Coume	Sal-102	1064	Westphalian D	Coal	10.75	1.39	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Coume	Sal-103	1087	Westphalian D	Coal	4.14	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Saulcy	Sal-075	1410	Westphalian C	Silty Coal	0.61	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Saulcy	Sal-070	1476	Westphalian C	Silty Coal	3.84	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Saulcy	Sal-065	1584	Westphalian C	Coal	3.46	2.68	0.00	0.25	0.00	0.00	0.00
Saulcy	Sal-057	1653	Westphalian C	Coaly shale	0.97	6.49	0.00	0.66	0.00	0.00	0.00

Saulcy	Sal-096	1661	Westphalian C	Coaly shale	6.28	0.75	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Saulcy	Sal-050	1704.9	Westphalian C	Shaly Coal	0.71	0.00	0.00	0.09	0.00	0.00	0.00
Gionville 101	Sal-118	1528.6	Westphalian C	Shaly Coal	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Gionville 101	Sal-123	1607.7	Westphalian C	Shaly Coal	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Gionville 101	Sal-126	1739.2	Westphalian C	Shaly Coal	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Gionville 101	Sal-127	1828.6	Westphalian C	Coal	13.28	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
la Houve Mine	Fra-003	900	Westphalian D	Coal	5.40	5.40	4.32	2.70	0.00	9.17	0.00
Neunkirchen	Sal-108	Sarre Outcrop	Westphalian C	Coal	14.12	6.42	3.85	1.28	0.00	0.00	0.00
BURBACH	Sal-104	Sarre Outcrop	Westphalian D	Coal	13.28	1.87	0.00	0.47	0.00	0.00	0.00

Annexe 13

Subgroup Maceral Content Values of Liptinite in Vol% on Whole Samples.

Location	ID	Depth (m)	Formation	Lithology	Sporinite	Cutinite	Resinite	Alginite	Liptodetrinite	Suberinite	Exsudatinite
FOLS1A	Fra-001	807-811	Westphalian D	Coal	3.71	4.85	1.43	4.28	0.00	0.00	0.00
FOLS1A	Sal-020	813.2	Westphalian D	Coal	4.70	0.00	0.00	5.18	0.00	0.00	0.00
FOLS1A	Sal-017	860.5	Westphalian D	Coal	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
FOLS1A	Sal-013	991.5	Westphalian D	Coal	6.40	0.00	0.00	0.33	0.00	0.00	0.00
FOLS1A	Sal-116	1150	Westphalian D	Shaly Coal	6.41	0.00	0.00	1.52	0.00	0.00	0.00
FOLS1A	Fra-002	1150-1154	Westphalian D	Coal	6.47	4.07	1.85	6.10	0.00	0.00	0.00
FOLS1A	Sal-009	1184	Westphalian D	Shale	10.48	0.00	0.00	0.00	13.49	0.00	0.00
FOLS1A	Sal-005	1270.5	Westphalian D	Silty Coal	19.03	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
DBL S1	Sal-040	966.32	Westphalian D	Coal	0.05	0.01	0.24	0.63	0.00	0.00	0.11
DBL S1	Sal-038	1031.6	Westphalian D	Coal	5.06	2.77	0.00	2.45	0.00	0.00	0.07
DBL S1	Sal-035	1227	Westphalian D	Coal	1.38	0.00	0.00	3.75	0.00	0.00	0.00
DBL S1	Sal-032	1265.25	Westphalian C	Coal	4.50	0.00	0.00	8.04	0.00	0.00	0.00
DBL S1	Sal-028	1303.53	Westphalian C	Coal	5.04	0.00	0.02	0.00	0.00	0.00	0.00
DBL S1	Sal-025	1338.1	Westphalian C	Coal	4.73	9.10	1.39	10.55	0.00	0.00	0.00
Coume	Sal-100	807.85	Stephanian	Coal	6.24	2.93	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Coume	Sal-101	807.95	Stephanian	Coal	9.67	4.10	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Coume	Sal-102	1064	Westphalian D	Coal	5.26	2.94	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Coume	Sal-103	1087	Westphalian D	Coal	6.54	0.21	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Saulcy	Sal-075	1410	Westphalian C	Silty Coal	3.65	0.00	0.00	2.53	0.00	0.00	0.00
Saulcy	Sal-070	1476	Westphalian C	Silty Coal	9.37	0.00	0.00	2.39	0.00	0.00	0.61
Saulcy	Sal-065	1584	Westphalian C	Coal	2.01	5.52	0.00	0.02	0.00	0.00	0.00
Saulcy	Sal-057	1653	Westphalian C	Coaly shale	4.42	0.00	0.00	1.20	7.20	0.00	0.00

Saulcy	Sal-096	1661	Westphalian C	Coaly shale	0.00	0.00	0.00	0.00	13.17	0.00	0.00
Saulcy	Sal-050	1704.9	Westphalian C	Shaly Coal	4.05	0.90	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Gionville 101	Sal-118	1528.6	Westphalian C	Shaly Coal	1.90	0.00	0.00	0.00	0.64	0.00	0.00
Gionville 101	Sal-123	1607.7	Westphalian C	Shaly Coal	1.96	0.00	0.00	4.02	0.00	0.00	0.00
Gionville 101	Sal-126	1739.2	Westphalian C	Shaly Coal	5.00	0.00	0.00	1.54	0.00	0.00	0.00
Gionville 101	Sal-127	1828.6	Westphalian C	Coal	8.48	0.00	0.00	5.52	0.00	0.00	0.00
la Houve Mine	Fra-003	900	Westphalian D	Coal	7.29	7.29	6.59	2.35	0.00	0.00	0.00
Neunkirchen	Sal-108	Sarre Outcrop	Westphalian C	Coal	4.31	9.40	0.39	5.48	0.00	0.00	0.00
BURBACH	Sal-104	Sarre Outcrop	Westphalian D	Coal	5.91	3.94	1.97	7.88	0.00	0.00	0.00

Annexe 14

***Rock-Eval Data of Samples from the Lorraine Coal Basin in this Study and** (*: Sample from Fleck (2001).*

Well	ID	Depht	Formation	Lithology	S1 (mg/g)	S2 (mg/g)	PI	Tmax (°C)	TOC (%)	HI	OI
FOLS1A	SAL 020 b	813.2	Westphalian D	Coal	1.72	117.54	0.01	431.00	75.30	156.00	10.00
FOLS1A	SAL 017 b	860.5	Westphalian D	Coal	3.32	188.57	0.02	430.00	75.62	249.00	9.00
FOLS1A	SAL 013 b	991.5	Westphalian D	Coal	3.35	122.21	0.03	437.00	77.17	158.00	9.00
FOLS1A	*	1094	Westphalian D	Coal	1.05	151.22	0.01	432.00	64.50	234.00	5.00
FOLS1A	*	1100	Westphalian D	Coal	1.07	121.24	0.01	441.00	45.89	264.00	8.00
FOLS1A	*	1150	Westphalian D	Coal	1.30	130.55	0.01	438.00	40.66	321.00	7.00
FOLS1A	*	1160	Westphalian D	Coal	2.68	206.07	0.01	439.00	49.01	420.00	4.00
FOLS1A	*	1162	Westphalian D	Coal	1.99	117.10	0.01	444.00	60.62	193.00	4.00
FOLS1A	SAL 008 b	1187	Westphalian D	Coal	3.88	128.28	0.03	435.00	64.18	200.00	5.00
FOLS1A	*	1267	Westphalian D	Coal	3.00	222.42	0.01	448.00	51.87	429.00	4.00
FOLS1A	SAL 005 b	1270.5	Westphalian D	Silty Coal	2.68	72.49	0.04	436.00	32.18	225.00	4.00
FOLS1A	SAL 006 b	1272.6	Westphalian D	Silty Coal	3.21	113.08	0.03	434.00	49.19	230.00	5.00
FOLS1A	SAL 003 b	1284.5	Westphalian D	Coaly Siltstone	0.04	0.90	0.04	448.00	1.64	55.13	6.11
FOLS1A	*	1286	Westphalian D	Coal	2.16	128.91	0.01	446.00	45.70	282.00	5.00
FOLS1A	*	1300	Westphalian D	Coal	2.27	175.70	0.01	442.00	50.42	348.00	3.00
FOLS1A	Fra001	807-811 m	Westphalian D	Coal	1.16	75.08	0.02	427	45.21	166	11
FOLS1A	Fra002	1150-1154 m	Westphalian D	Coal	2.72	122.21	0.02	438	69.57	176	6
FOLS1A	SAL 021	800	Westphalian D	Shale	0.01	0.39	0.03	437.00	1.07	36.32	24.22
FOLS1A	SAL 016	862.5	Westphalian D	Shale	0.06	0.23	0.21	504.00	0.70	33.02	7.18

FOLS1A	SAL 011	1142	Westphalian D	Siltstone	0.27	0.07	0.79	176.00	0.11	62.08	427.48
FOLS1A	SAL 010	1180	Westphalian D	Silty shale	0.63	1.62	0.28	439.00	1.35	119.83	31.88
FOLS1A	SAL 009	1184	Westphalian D	shale	0.06	2.70	0.02	444.00	2.28	118.57	9.21
FOLS1A	SAL 003	1248.5	Westphalian D	Coaly Siltstone	0.04	0.90	0.04	448.00	1.64	55.13	6.11
FOLS1A	SAL 007	1269.7	Westphalian D	Silty shale	0.34	5.31	0.06	480.00	6.19	85.70	49.14
FOLS1A	SAL 004	1272.8	Westphalian D	Siltstone	0.02	0.03	0.39	441.00	0.53	5.93	49.26
FOLS1A	SAL 002	1287.15	Westphalian D	Shale	0.02	0.13	0.13	443.00	0.96	13.95	1.04
FOLS1A	SAL 019	819.5	Westphalian D	Sandstone	0.00	0.04	0.00		0.01	449.00	224.53
FOLS1A	SAL 018	825	Westphalian D	Conglomerate	0.01	0.08	0.11	433.00	0.03	245.43	30.68
FOLS1A	SAL 015	880	Westphalian D	Shaly Sandstones	0.01	0.07	0.13	508.00	0.30	22.99	9.85
FOLS1A	SAL 014	990	Westphalian D	Shaly Sandstones	0.01	0.49	0.02	442.00	1.13	43.59	1.77
FOLS1A	SAL 012	998	Westphalian D	Sandstone	0.16	0.10	0.62	172.00	0.16	64.20	112.15
FOLS1A	SAL 001	1295.4	Westphalian D	Sandstone	0.01	0.06	0.14	319.00	0.02	380.13	1203.75
DBL	SAL 041	965	Westphalian D	Silty Coal	0.04	4.64	0.01	440.00	4.73	98.11	3.39
DBL	SAL 040 b	966.32	Westphalian D	Coal	3.59	106.74	0.03	432.00	83.39	128.00	6.00
DBL	SAL 038 b	1031.6	Westphalian D	Coal	3.90	133.62	0.03	435.00	82.14	163.00	6.00
DBL	SAL 037	1037.9	Westphalian D	Silty Coal	0.02	0.80	0.02	454.00	1.50	53.41	19.07
DBL	SAL 035 b	1227	Westphalian D	Coal	9.59	148.50	0.06	441.00	84.66	175.00	3.00
DBL	SAL 032 b	1265.25	Westphalian C	Coal	7.52	155.66	0.05	471.00	83.64	186.00	3.00
DBL	SAL 031	1271.2	Westphalian C	Shaly Coal	0.05	2.43	0.03	447.00	3.03	80.23	10.02

DBL	SAL 029	1282.2	Westphalian C	Coaly Sandstone	0.02	0.60	0.05	445.00	1.11	54.18	55.39
DBL	SAL 028 b	1303.53	Westphalian C	Coal	8.70	195.95	0.04	441.00	85.41	229.00	3.00
DBL	SAL 027	1305.8	Westphalian C	Coaly Shale	0.31	34.86	0.01	447.00	15.27	228.28	2.69
DBL	SAL 026	1337.9	Westphalian C	Coaly Shale	0.44	29.82	0.02	446.00	11.81	252.52	2.04
DBL	SAL 025 b	1338.1	Westphalian C	Coal	9.85	143.66	0.06	447.00	80.35	179.00	2.00
DBL	SAL 034	1235.5	Westphalian C	Siltstone	0.03	2.30	0.02	451	2.35	98	9
DBL	SAL 030	1272	Westphalian C	Shaly siltstone	0.02	0.84	0.03	447	1.34	63	88
DBL	SAL 024	1354.5	Westphalian C	Siltstone	0.05	0.89	0.07	446	0.99	90	51
DBL	SAL 039	975.3	Westphalian D	Sandstone	0.01	0.36	0.02	444.00	0.36	99.86	7.36
DBL	SAL 036	1061.5	Westphalian D	Sandstone	0.02	0.47	0.04	449.00	1.14	40.84	468.74
DBL	SAL 033	1240.5	Westphalian D	Sandstone	0.01	0.19	0.06	457.00	0.25	73.42	375.03
DBL	SAL 023	1357.8	Westphalian C	Sandstone	0.00	0.13	0.04	452.00	0.16	82.60	540.49
DBL	SAL 022	1359.5	Westphalian C	Conglomerate	0.06	1.15	0.06	432.00	0.83	139.10	65.69
Coume	SAL 100	807.85	Stephanian	Coal	1.31	105.47	0.01	438.00	60.89	173.00	15.00
Coume	SAL 101	807.95	Stephanian	shaly coal	0.06	4.11	0.01	433.00	5.24	78.00	16.00
Coume	SAL 102	1063	Westphalian D	Coal	1.71	76.85	0.02	425.00	60.02	128.00	9.00
Coume	SAL 103	1082	Westphalian D	Coal	3.93	113.01	0.03	431.00	64.36	176.00	8.00
Saulcy	SAL 105	664.2	Westphalian C	Coal	ND	ND	ND		55.1	0	
Saulcy	**	664.2	Westphalian C	Coal	ND	ND	ND	432	55.1	280	14
Saulcy	**	692.6	Westphalian C	shaly Coal	ND	ND	ND	437	1.9	75	48
Saulcy	**	759.4	Westphalian C	coaly shale	ND	ND	ND	430	15	232	9
Saulcy	**	787.4	Westphalian C	coaly shale	ND	ND	ND	428	3.5	14	14
Saulcy	SAL 106	795.7	Westphalian C	Coal	ND	ND	ND		76.1	0	

Saulcy	**	795.7	Westphalian C	Coal	ND	ND	ND	440	76.1	331	9
Saulcy	SAL 107	894	Westphalian C	Coal	ND	ND	ND		67	0	
Saulcy	**	894.1	Westphalian C	Coal	ND	ND	ND	446	67	129	12
Saulcy	**	976.4	Westphalian C	shaly Coal	ND	ND	ND	439	8.1	50	21
Saulcy	**	1007.4	Westphalian C	Coal	ND	ND	ND	429	17.7	290	7
Saulcy	**	1014.8	Westphalian C	coaly shale	ND	ND	ND	431	55	317	7
Saulcy	SAL 077	1019.5	Westphalian C	Coal	1.30	83.77	0.02	435	27.00	310	7
Saulcy	SAL 078	1044	Westphalian C	Coaly siltstone	0.03	0.89	0.03	441	1.02	87	26
Saulcy	**	1057.5	Westphalian C	coal	ND	ND	ND	442	75.5	194	9
Saulcy	**	1099.8	Westphalian C	coaly shale	ND	ND	ND	433	1.8	68	40
Saulcy	**	1115.3	Westphalian C	coal	ND	ND	ND	438	39.8	325	9
Saulcy	SAL 081	1229	Westphalian C	shaly Coal	0.30	7.12	0.05	435	4.79	149	5
Saulcy	SAL 082	1232.1	Westphalian C	Coal	4.85	157.07	0.04	438	54.22	290	3
Saulcy	SAL 083	1266	Westphalian C	coal	2.85	59.58	0.05	443	33.06	180	5
Saulcy	**	1266.3	Westphalian C	coal	ND	ND	ND	442	62.4	313	6
Saulcy	SAL 086	1299	Westphalian C	Coal	2.17	43.44	0.06	428	23.96	181	5
Saulcy	SAL 088	1331.3	Westphalian C	shaly Coal	6.28	79.39	0.09	444	53.42	149	4
Saulcy	SAL 076	1349.2	Westphalian C	Coal	4.09	190.15	0.02	446	27.75	685	9
Saulcy	SAL 087	1358.3	Westphalian C	shaly Coal	7.95	124.37	0.07	450	48.55	256	4
Saulcy	SAL 089	1370	Westphalian C	shaly Coal	1.77	33.16	0.06	437	13.68	242	3
Saulcy	SAL 092	1400	Westphalian C	Coaly siltstone	0.05	2.37	0.02	450	2.20	108	8
Saulcy	SAL 075	1410	Westphalian C	silty coal	1.00	53.16	0.02	442	14.57	365	5
Saulcy	**	1415.8	Westphalian C	coal	ND	ND	ND	444	60.5	276	5
Saulcy	SAL 093	1425	Westphalian C	Coal	2.42	38.27	0.07	432	22.20	172	4
Saulcy	SAL 072	1443.2	Westphalian C	Coal	0.20	5.83	0.04	437	6.31	92	5
Saulcy	SAL 071	1444	Westphalian C	shaly Coal	0.22	5.93	0.04	442	4.77	124	9
Saulcy	**	1454.4	Westphalian C	coaly shale	ND	ND	ND	427	10.2	142	9

Saulcy	SAL 094	1473.4	Westphalian C	shaly Coal	0.89	10.57	0.09	445	7.73	137	3
Saulcy	SAL 070	1476	Westphalian C	silty coal	0.21	7.16	0.03	444	4.62	155	5
Saulcy	SAL 068	1524	Westphalian C	silty coal	0.23	6.71	0.04	446	5.09	132	9
Saulcy	SAL 067	1528	Westphalian C	shaly Coal	0.46	9.09	0.05	445	8.50	107	5
Saulcy	SAL 065	1584	Westphalian C	coal	2.69	95.69	0.03	441	18.92	0	7
Saulcy	**	1586.1	Westphalian C	coaly shale	ND	ND	ND	448	2.7	57	25
Saulcy	**	1601.5	Westphalian C	shaly Coal	ND	ND	ND	452	4.2	114	15
Saulcy	SAL 062	1629.5	Westphalian C	shaly Coal	0.50	14.29	0.04	442	11.87	120	4
Saulcy	**	1633	Westphalian C	coal	ND	ND	ND	431	76.4	137	7
Saulcy	SAL 057	1653	Westphalian C	coal	0.38	17.35	0.02	441	8.53	203	5
Saulcy	SAL 096	1661	Westphalian C	coaly shale	0.35	10.15	0.04	456	6.65	153	2
Saulcy	SAL 056	1662.5	Westphalian C	coal	1.12	38.86	0.03	443	11.85	328	3
Saulcy	SAL 053	1670.5	Westphalian C	coal shale	0.15	1.42	0.1	442	3.21	44	6
Saulcy	**	1679.3	Westphalian C	coal	ND	ND	ND	454	50.8	332	6
Saulcy	SAL 052	1684	Westphalian C	coal	4.30	150.40	0.03	450	22.60	0	8
Saulcy	SAL 051	1685.2	Westphalian C	coaly shale	0.21	5.97	0.04	445	3.90	153	3
Saulcy	SAL 050	1704.9	Westphalian C	coal	1.32	22.87	0.06	440	10.05	228	6
Saulcy	SAL 045	1779	Westphalian C	coal	0.78	19.53	0.04	456	10.10	193	4
Saulcy	**	1797.9	Westphalian C	coal	ND	ND	ND	449	62.6	268	3
Saulcy	**	1798.4	Westphalian C	coal	ND	ND	ND	447	38.3	421	5
Saulcy	**	1799.3	Westphalian C	coaly shale	ND	ND	ND	474	3.3	51	16
Saulcy	**	1829.6	Westphalian C	coal	ND	ND	ND	465	77.6	229	3
Saulcy	SAL 044	1837.4	Westphalian C	coal	3.10	24.02	0.11	449	18.18	132	3
Saulcy	SAL 044	1837.4	Westphalian C	coal	1.10	22.91	0.05	451	7.97	288	6
Saulcy	SAL 042	1939.6	Westphalian B	coaly shale	0.16	2.74	0.06	451	2.92	94	10
Saulcy	**	787	Westphalian C	siltstone	ND	ND	ND	434	3.2	18	18

Saulcy	**	788.4	Westphalian C	siltstone	ND	ND	ND	431	1.1	15	54
Saulcy	**	796	Westphalian C	siltstone	ND	ND	ND	435	1.6	49	33
Saulcy	SAL 79	1176.9	Westphalian C	siltstone	0.05	2.41	0.02	441	2.04	118	6
Saulcy	SAL 80	1203.9	Westphalian C	siltstone	0.05	6.45	0.01	438	3.82	169	7
Saulcy	SAL 84	1266.5	Westphalian C	Shale	0.02	0.63	0.03	441	0.72	86	14
Saulcy	**	1307.3	Westphalian C	Shale	ND	ND	ND	434	3.9	43	38
Saulcy	SAL 90	1386	Westphalian C	Shale	0.57	20.47	0.03	434	14.14	145	3
Saulcy	SAL 91	1386.1	Westphalian C	Shale	0.07	2.78	0.03	444	2.28	122	6
Saulcy	SAL 74	1412	Westphalian C	Shale	0.07	2.06	0.04	446	1.70	121	6
Saulcy	SAL 73	1423	Westphalian C	Shale	0.02	0.55	0.04	445	0.79	69	110
Saulcy	SAL 69	1505	Westphalian C	Shale	0.03	0.85	0.04	455	0.88	97	17
Saulcy	SAL 64	1584.2	Westphalian C	siltitstone	0.03	0.55	0.05	450	0.95	58	7
Saulcy	SAL 61	1629.7	Westphalian C	Shale	0.15	4.02	0.04	453	3.92	103	6
Saulcy	SAL 60	1631.4	Westphalian C	Shaly siltstone	0.00	0.01	0.24	498	0.76	1	30
Saulcy	SAL 59	1633.1	Westphalian C	siltstone	0.02	0.40	0.05	453	0.56	71	17
Saulcy	**	1634.7	Westphalian C	siltstone	ND	ND	ND	448	0.9	42	47
Saulcy	SAL 54	1668.5	Westphalian C	Shaly siltstone	0.11	1.59	0.07	469	2.89	55	305
Saulcy	SAL 48	1766.1	Westphalian C	Shaly siltstone	0.05	0.91	0.06	456	1.33	68	8
Saulcy	SAL 47	1771.8	Westphalian C	siltstone	0.05	0.75	0.07	458	1.16	64	57
Saulcy	SAL 46	1775.7	Westphalian C	shale	0.04	0.45	0.09	466	0.81	56	55
Saulcy	**	1796.5	Westphalian C	siltstone	ND	ND	ND	451	1.9	46	41
Saulcy	**	1801.7	Westphalian C	siltstone	ND	ND	ND	457	0.7	37	26
Saulcy	**	1828.6	Westphalian C	shale	ND	ND	ND	452	1.7	46	25
Saulcy	**	789	Westphalian C	sandstone	ND	ND	ND	410	1.1	1	60
Saulcy	**	796.6	Westphalian C	sandstone	ND	ND	ND	435	1.4	35	63
Saulcy	SAL 85	1267	Westphalian C	sandstone	0.01	0.25	0.02	449	0.39	64	22

Saulcy	SAL 66	1582.5	Westphalian C	sandstone	0.03	0.55	0.06	462	1.47	37	375
Saulcy	SAL 63	1620	Westphalian C	sandstone	0.01	0.08	0.1	480	0.19	44	219
Saulcy	SAL 95	1620	Westphalian C	Sandstone	0.05	2.81	0.02	442	2.83	99	8
Saulcy	SAL 58	1637	Westphalian C	Sandstone and Conglomerate	0.00	0.05	0.09	473	0.10	54	808
Saulcy	SAL 55	1665.1	Westphalian C	sandstone	0.02	0.28	0.07	462	0.36	79	126
Saulcy	SAL 49	1736.9	Westphalian C	Sandstone and Conglomerate	0.01	0.13	0.07	466	0.20	63	103
Saulcy	SAL 97	1785.6	Westphalian C	Sandstone	0.02	0.43	0.05	456	0.67	64	140
Saulcy	**	1802.1	Westphalian C	sandstone	ND	ND	ND	480	0.5	14	82
Saulcy	**	1804.1	Westphalian C	sandstone	ND	ND	ND	462	1	24	76
Saulcy	SAL 43	1859.9	Westphalian C	Sandstone and Conglomerate	0.05	0.76	0.06	463	1.07	71	32
Lorette	SAL 109	961.5	Westphalian C	Shales	0.02	0.75	0.03	443	0.92	81	75
Lorette	SAL 111	971.72	Westphalian C	Black Shale	0.03	1.58	0.02	443	1.09	145	58
Lorette	SAL 110	980.22	Westphalian C	Siltstone and shale	0.02	0.80	0.03	445	0.90	89	61
Lorette	SAL 112	983	Westphalian C	Siltstone and shale	0.02	1.27	0.02	447	0.90	141	117
Lorette	SAL 113	998.9	Westphalian C	Shale	0.05	1.15	0.04	442	1.25	92	50
Lorette	SAL 114	1010.52	Westphalian C	Siltstone and shale	0.12	4.81	0.03	447	3.17	152	14
Lorette	SAL 115	1011.82	Westphalian C	Siltstone flaser bedding	0.04	1.45	0.03	442	1.34	108	45
Gironville 101	SAL118	1528.6	Westphalian C	Shaly coal	1.16	33.53	0.04	434	17.47	192	7
Gironville 101	SAL119	1529.6	Westphalian C	Coaly shale	0.03	1.12	0.04	450	1.54	72	33
Gironville 101	SAL120	1530.2	Westphalian C	Coaly siltstone	0.06	2.76	0.02	446	2.61	106	19
Gironville 101	SAL124	1608.2	Westphalian C	Coaly shale	0.41	21.93	0.02	439	15.00	146	7
Gironville 101	SAL125	1679.7	Westphalian C	Coaly shale	0.15	12.14	0.02	446	8.04	151	6
Gironville 101	SAL126	1739.2	Westphalian C	Shaly coal	0.07	3.01	0.03	449	2.86	105	11

Gironville 101	SAL127	1828.6	Westphalian C	Coal	5.27	78.32	0.06	445	35.12	223	5
Gironville 101	SAL130	2644.6	Westphalian B	Coaly siltstone	0.01	0.10	0.09	514	0.27	37	96
Gironville 101	SAL131	3149.2	Westphalian B	Coaly shale	0.01	0.33	0.03	532	1.02	32	18
Gironville 101	SAL132	3151.2	Westphalian B	Coaly shale	0.00	0.13	0.04	532	0.50	25	32
Gironville 101	SAL133	3155.2	Westphalian B	Coaly shale	0.06	2.58	0.03	526	7.78	33	9
Gironville 101	SAL134	3157.7	Westphalian B	Coaly shale	0.02	0.41	0.04	527	1.62	26	15
Gironville 101	SAL140	3497	Westphalian A	Coaly siltstone	0.01	0.25	0.02	571	1.35	18	14
Gironville 101	SAL141	3614.6	Westphalian A	Coaly siltstone	0.00	0.08	0.01	531	0.55	14	29
Gironville 101	SAL142	3620.6	Westphalian A	Coaly sandstone	0.02	0.91	0.03	570	5.59	16	9
Gironville 101	SAL145	3953	Westphalian A	Coaly siltstone	0.00	0.08	0.06	560	0.52	15	21
Gionville 101	SAL146	4261.8	Westphalian A	Shaly coal	0.00	3.38	0.00	616	37.23	9	1
Gionville 101	SAL147	4262.8	Westphalian A	Coaly shale	0.00	0.07	0.02	603	1.09	6	21
Gionville 101	SAL150	5168.1	Westphalian A	Coal	0.03	0.67	0.05	669	61.82	1	3
Gionville 101	SAL151	5325.5	Westphalian A	Coaly shale	0.05	0.17	0.25	493	1.12	15	26
Gionville 101	SAL153	5675.9	Westphalian A	Coal	0.01	0.00	0.97	493	2.27	0	11
Gionville 101	SAL154	5677.9	Westphalian A	Shaly coal	0.00	0.00	0.00	493	1.34	0	15
Gionville 101	SAL156	5682.5	Westphalian A	Coaly shale	0.00	0.00	0.64	493	2.18	0	8
Gironville 101	SAL 117	1392.5	Westphalian C	Shale	0.06	0.81	0.08	439	1.11	73	31
Gironville 101	SAL 121	1601	Westphalian C	shaly siltstone	0.02	0.47	0.06	446	0.97	49	294
Gironville 101	SAL 122	1602.1	Westphalian C	shaly siltstone	0.02	0.63	0.05	451	0.84	76	49
Gironville 101	SAL 128	2513.6	Westphalian B	shaly siltstone	0.02	0.21	0.10	493	0.60	34	80
Gironville 101	SAL 129	2514.6	Westphalian B	shaly siltstone	0.02	0.23	0.10	491	0.64	35	58
Gironville 101	SAL 135	3424.4	Westphalian B	shaly siltstone	0.01	0.07	0.09	528	0.20	35	81
Gironville 101	SAL 136	3478	Westphalian A	shaly siltstone	0.01	0.14	0.09	535	0.56	24	21
Gironville 101	SAL 137	3485	Westphalian A	shaly siltstone	0.01	0.20	0.05	559	0.92	21	53
Gironville 101	SAL 138	3487	Westphalian A	shaly siltstone	0.00	0.12	0.03	560	0.70	17	34

Gironville 101	SAL 139	3492.35	Westphalian A	siltstone	0.00	0.17	0.02	559	0.86	19	16
Gironville 101	SAL 148	4392.9	Westphalian A	shaly siltstone	0.00	0.02	0.07	604	1.53	1	11
Gironville 101	SAL 149	4938.6	Westphalian A	shaly siltstone	0.02	0.16	0.09	493	0.90	18	18
Gironville 101	SAL 152	5603.2	Westphalian A	shaly siltstone	0.02	0.07	0.19	493	0.08	84	868
Gironville 101	SAL 155	5678.5	Westphalian A	shaly siltstone	0.00	0.00	0.54	492	1.57	0	23
Gironville 101	SAL 143	3934.6	Westphalian A	Silty Sandstone	0.00	0.13	0.01	589	1.31	10	13
Mine La Houve	Fra 003	900 m	Westphalian D	Coal	8.03	299.83	0.03	441	69.69	430	6
BURBACH	Sal 104	outcrop	Westphalian D	Coal	1.87	143.03	0.01	428	71.45	200	20
Neunkirchen	Sal 108	outcrop	Westphalian C	Coal	2.27	202.25	0.01	431	79.46	255	7

Annexe 15

Vitrinite Reflectance Measurements of Samples from Gironville in the Lorraine Coal Basin *(*from Durand et al. (1986) study.)*

ID	Lithology	Depth (m)	Formation	Mode of vitrinite (undifferentiated)
SAL117	Shale	1392.50	Westphalian C	0.80
SAL118	Shaly coal	1528.60	Westphalian C	0.83
SAL123	Shaly coal	1607.70	Westphalian C	0.93
*	Coal	1650	Westphalian C	0.7
SAL125	Coaly shale	1679.70	Westphalian C	0.86
SAL126	Shaly coal	1739.20	Westphalian C	0.92
*	Coal	1750	Westphalian C	0.695
SAL127	Coal	1828.60	Westphalian C	0.91
*	Clay	1900	Westphalian C	0.8
*	Coal	2100	Westphalian B	0.9
*	Coal	2170	Westphalian B	0.875
*	Coal	2500	Westphalian B	0.885
*	Clay	2550	Westphalian B	0.85
*	Coal	3100	Westphalian B	1.23
*	Clay	3150	Westphalian B	1.4
SAL134	Shaly Coal	3157.70	Westphalian B	1.61
SAL135	Shale	3424.40	Westphalian B	2.25
*	Coal	3450	Westphalian B	1.76
SAL137	Shale	3485.00	Westphalian A	2.19
*	Coal	3600	Westphalian A	1.81
SAL142	Sandy coal	3620.60	Westphalian A	2.20

*	Clay	3650	Westphalian A	2
SAL145	Slily coal	3953.00	Westphalian A	2.78
*	Coal	4000	Westphalian A	2.2
*	Coal	4150	Westphalian A	2.4
SAL146	Shaly coal	4261.80	Westphalian A	2.66
SAL148	Shale	4392.90	Westphalian A	2.66
*	Coal	5050	Westphalian A	3
*	Coal	5100	Westphalian A	4.3
SAL150	Coal	5168.10	Westphalian A	4.76
SAL151	Coaly shale	5325.50	Westphalian A	5.08
*	Clay	5650	Westphalian A	3.8
SAL153	Shale	5675.90	Westphalian A	5.42
SAL156	Coaly shale	5682.50	Westphalian A	6.02

Annexe 16

Coal Facies Indices Derived from Maceral Constituents:

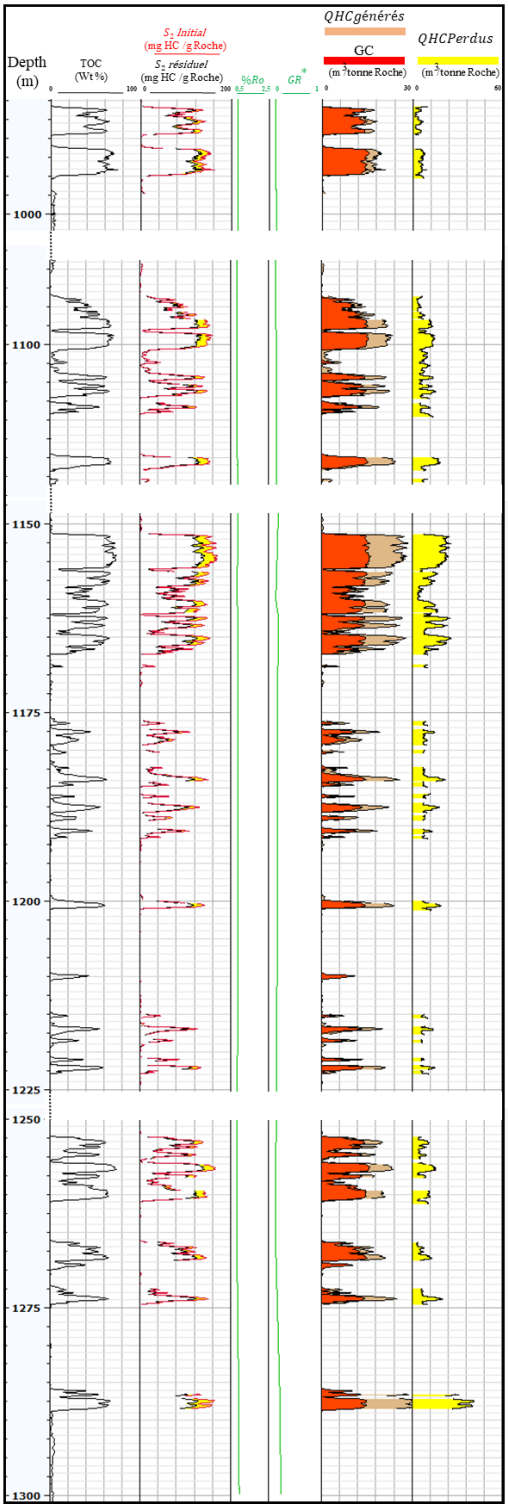
- *GI: Gelification Index*
- *TPI: Tissue Preservation Index*
- *GwI: Groundwater Index*
- *VI: Vegetation Index*

Location	ID	Depth (m)	Formation	Lithology	GI	TPI	GWI	VI
FOLS1A	Fra-001	807-811	Westphalian D	Coal	0.50	1.60	1.23	1.69
FOLS1A	Sal-020	813.2	Westphalian D	Coal	3.80	20.54	0.06	9.68
FOLS1A	Sal-017	860.5	Westphalian D	Coal	82.79	1.99	0.54	1.99
FOLS1A	Sal-013	991.5	Westphalian D	Coal	22.22	-	0.02	298.21
FOLS1A	Sal-116	1150	Westphalian D	Shaly Coal	13.68	5.64	0.23	5.50
FOLS1A	Fra-002	1150-1154	Westphalian D	Coal	0.67	2.00	0.92	2.01
FOLS1A	Sal-009	1184	Westphalian D	Shale	32.81	221.93	0.18	5.36
FOLS1A	Sal-005	1270.5	Westphalian D	Silty Coal	15.49	-	0.18	-
DBL S1	Sal-040	966.32	Westphalian D	Coal	1.66	6.41	0.25	6.13
DBL S1	Sal-038	1031.6	Westphalian D	Coal	9.53	-	0.00	39.71
DBL S1	Sal-035	1227	Westphalian D	Coal	3.00	-	0.00	25.63
DBL S1	Sal-032	1265.25	Westphalian C	Coal	34.60	-	0.00	11.44
DBL S1	Sal-028	1303.53	Westphalian C	Coal	1.73	9.66	0.15	10.22
DBL S1	Sal-025	1338.1	Westphalian C	Coal	2.78	-	0.00	7.39
Coume	Sal-100	807.85	Stephanian	Coal	5.51	351.20	0.06	388.53
Coume	Sal-101	807.95	Stephanian	Coal	3.32	3.39	0.37	4.13
Coume	Sal-102	1064	Westphalian D	Coal	0.93	1.76	1.07	2.06

Coume	Sal-103	1087	Westphalian D	Coal	9.51	20.13	0.13	21.77
Saulcy	Sal-075	1410	Westphalian C	Silty Coal	3.03	2.26	0.60	2.18
Saulcy	Sal-070	1476	Westphalian C	Silty Coal	16.86	10.21	0.27	8.56
Saulcy	Sal-065	1584	Westphalian C	Coal	1.95	2.23	0.58	2.51
Saulcy	Sal-057	1653	Westphalian C	Coaly shale	3.13	6.64	0.40	3.75
Location	ID	Depth (m)	Formation	Lithology	GI	TPI	GWI	VI
Saulcy	Sal-096	1661	Westphalian C	Coaly shale	10.47	-	0.08	6.12
Saulcy	Sal-050	1704.9	Westphalian C	Shaly Coal	1.53	1.50	0.83	1.64
Gionville 101	Sal-118	1528.6	Westphalian C	Shaly Coal	-	-	0.26	115.41
Gionville 101	Sal-123	1607.7	Westphalian C	Shaly Coal	-	-	0.34	16.12
Gionville 101	Sal-126	1739.2	Westphalian C	Shaly Coal	-	-	0.50	35.48
Gionville 101	Sal-127	1828.6	Westphalian C	Coal	4.49	-	0.19	14.74
la Houve Mine	Fra-003	900	Westphalian D	Coal	0.25	0.75	2.47	1.30
Neunkirchen	Sal-108	Sarre Outcrop	Westphalian C	Coal	0.59	2.07	0.85	2.16
BURBACH	Sal-104	Sarre Outcrop	Westphalian D	Coal	1.27	2.90	0.54	2.50

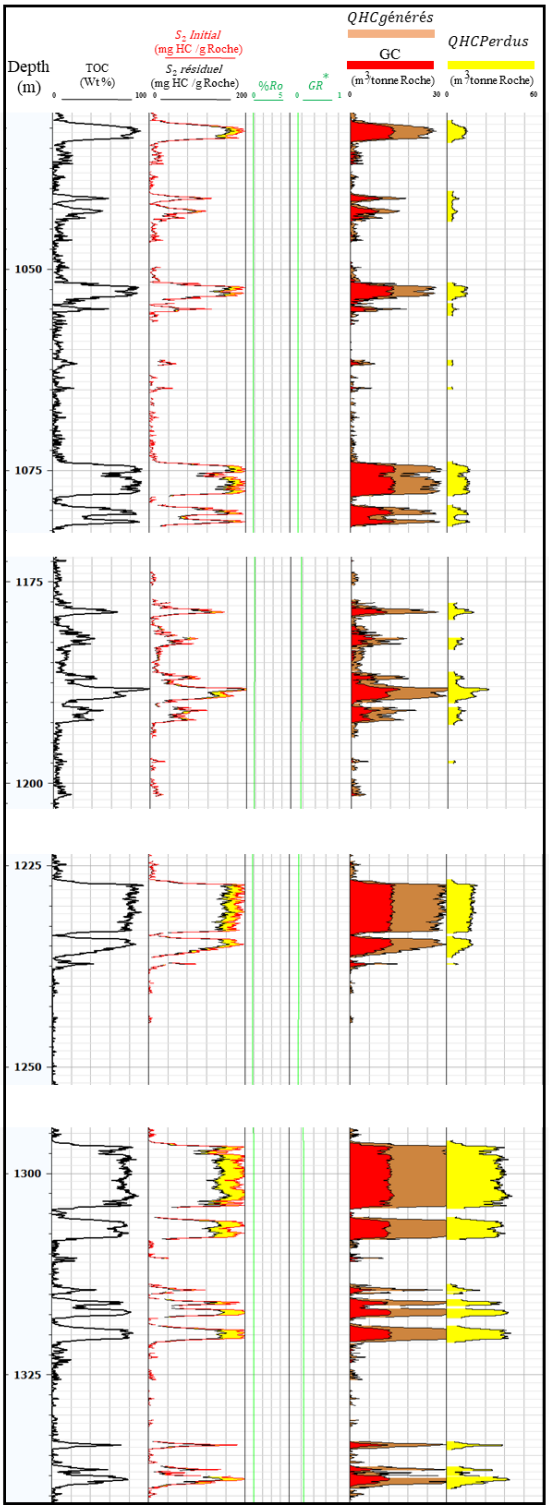
Annexe 17

***Résultats de l'application de l'approche à partir des diagraphies (IV.1) pour le forage Fols 1A**. Les tracks de gauche à droite incluent : le COT actuel, le potentiel pétrolier S2 résiduel et initial, la réflectance de vitrinite, le taux de génération (Gr), les quantités d'hydrocarbures générées maximales (QHC), les quantités d'hydrocarbures actuelles in situ calculées (GC) dans la Section III.1, et les quantités d'hydrocarbures perdues.*



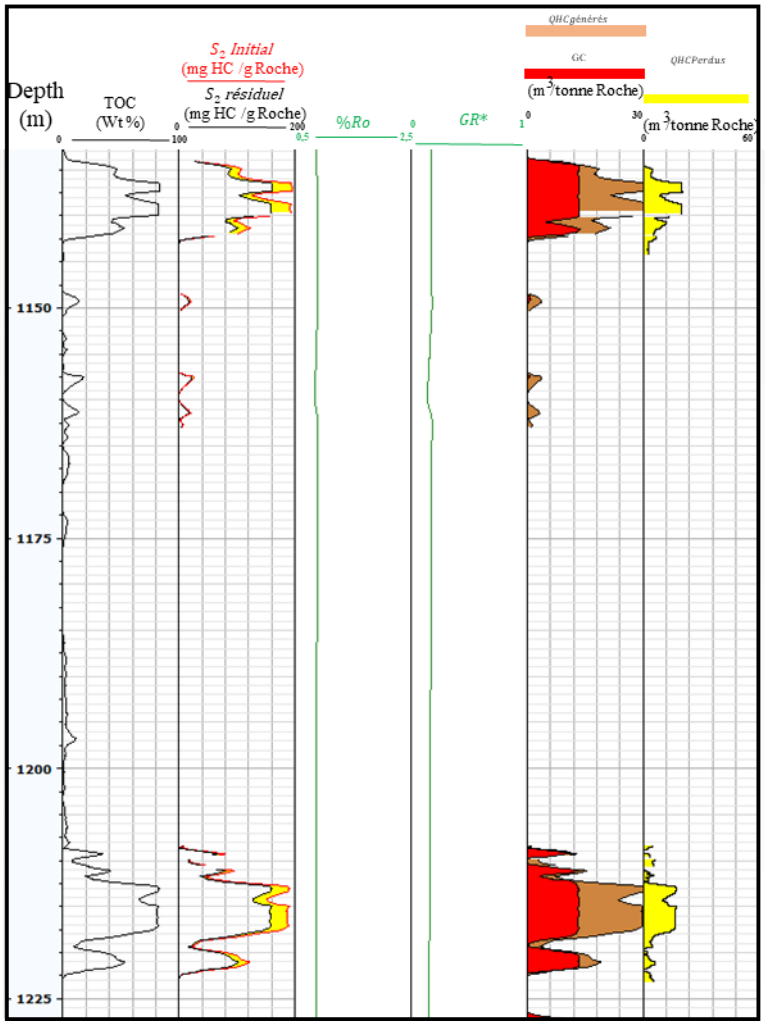
Annexe 18

Résultats de l'application de l'approche à partir des diagraphies (IV.1) pour le forage Dbl S1. Les tracks de gauche à droite incluent : *le COT actuel, le potentiel pétrolier S2 résiduel et initial, la réflectance de vitrinite, le taux de génération (Gr), les quantités d'hydrocarbures générées maximales (QHC), les quantités d'hydrocarbures actuelles in situ calculées (GC) dans la Section III.1, et les quantités d'hydrocarbures perdues.*



Annexe 19

Résultats de l'application de l'approche à partir des diagraphies (IV.1) pour le forage Jhs 1. Les tracks de gauche à droite incluent : *le COT actuel, le potentiel pétrolier S2 résiduel et initial, la réflectance de vitrinite, le taux de génération (Gr), les quantités d'hydrocarbures générées maximales (QHC), les quantités d'hydrocarbures actuelles in situ calculées (GC) dans la Section III.1, et les quantités d'hydrocarbures perdues.*



Résumé

Le bassin houiller lorrain fait aujourd'hui l'objet de nouvelles campagnes d'exploration géologique, notamment pour ses ressources potentielles en gaz, en particulier le gaz de charbon. Ce bassin sédimentaire d'âge Carbonifère se caractérise par un remplissage complexe de dépôts fluvio-lacustres riches en matière organique dont la maturité thermique et les paléotempératures ont été bien étudiées dans le passé. Cependant, des questions persistaient quant aux quantités de gaz générées et à leur distribution en fonction des lithologies organiques. Cette thèse avait pour objectif d'adapter les méthodologies d'exploration pétrolière conventionnelle à ce contexte sédimentaire continental particulier afin d'évaluer le potentiel en gaz de charbon. Une approche intégrée, couplant l'analyse des données de carottes, la géochimie organique et la géophysique des puits, a été développée. Cette méthode a permis une caractérisation précise des éléments architecturaux sédimentaires, de la qualité et de la distribution des roches-mères le long des puits notamment par l'adaptation de méthodes de calcul de teneurs en carbone organique total (COT) combinant géophysique de puits et analyse Rock-Eval. Une calibration des volumes de gaz en place dans les couches de charbon et une évaluation de leur porosité à partir des diagraphies sont proposées. Dans une sélection de puits forés par la Française de l'Energie, la quantité maximale théorique d'hydrocarbures générés a été estimée par des bilans de calculs diagraphiques déterminant les valeurs de COT, potentiels gaziers S2 Rock-Eval initiaux et finaux et la maturation artificielle des principaux types roches-mères. Par comparaison avec les quantités de gaz en place, l'efficacité du système gazier a été déterminée. Les résultats de cette étude multidisciplinaire démontrent l'applicabilité d'une approche intégrée sédimentologique, géochimique et géophysique des puits pour l'évaluation du potentiel en gaz de charbon dans ce type de bassin continental complexe. Ils apportent de nouvelles estimations quantitatives des ressources gazières, qui pourraient repositionner le bassin houiller lorrain comme un enjeu énergétique majeur.

Mots-Clés : Bassin carbonifère lorrain ; Gaz de charbon ; Géochimie organique ; Diagraphies; Maturation artificielle, Potentiel gazier.

Abstract

The Lorraine coal basin is currently the focus of renewed gas exploration campaigns, particularly for its potential of coalbed methane. This Carboniferous-aged sedimentary basin is characterized by a complex infill of fluvio-lacustrine deposits rich in organic matter, whose thermal maturity and paleotemperatures were well-studied in the past. However, questions remained regarding the quantities of gas generated and their distribution according to organic rich lithologies. The objectives of this thesis was to adapt conventional petroleum exploration methodologies to this particular continental sedimentary context in order to assess the coalbed methane potential of the basin. An integrated approach combining core data analysis, organic geochemistry and well geophysics has been developed. This method allowed for a precise characterization of sedimentary architectural elements, of source-rocks quality and distribution in wells, in particular by an adaptation of total organic carbon (TOC) calculation methods combining well-log data and Rock-Eval analysis. A calibration of in situ gas volumes in the coal seams and evaluation of their porosity through well log analysis are proposed. For selected wells drilled by la Française de l'Energie, the theoretical maximal quantity of hydrocarbon generation has been estimated using well-log data determination of TOC, Rock-Eval S2 initial and final gas potentials as well as through artificial maturation of main source-rock facies. By comparison with the gas in place, the efficiency of the gas system has been determined. The results of this multidisciplinary study demonstrate the applicability of an integrated sedimentological, geochemical, and geophysical approach for assessing the coalbed methane potential in such a complex continental basin. They provide new quantitative estimates of gas resources, which could reposition the Lorraine coal basin as a major energy asset.

Keywords: Lorraine Carboniferous Basin; Coal Bed Methane; Organic Geochemistry; Well Logging; Artificial Maturation; Gas Potential