

### Les émanations naturelles d'hydrocarbures lourds depuis les sédiments vers l'hydro-atmosphère: approche intégrée multiéchelle dans le bassin profond du bas-congo

Romain Jatiault

### ► To cite this version:

Romain Jatiault. Les émanations naturelles d'hydrocarbures lourds depuis les sédiments vers l'hydroatmosphère : approche intégrée multiéchelle dans le bassin profond du bas-congo. Océan, Atmosphère. Université de Perpignan, 2017. Français. NNT : 2017PERP0047 . tel-02426173v2

### HAL Id: tel-02426173 https://theses.hal.science/tel-02426173v2

Submitted on 16 Jan 2020  $\,$ 

**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.





Délivré par

UNIVERSITÉ DE PERPIGNAN VIA DOMITIA

Préparée au sein de l'école doctorale Énergie et Environnement - ED305 Et de l'unité de recherche CEFREM - UMR 5110

> Spécialité Océanologie

Présentée par Romain JATIAULT

LES ÉMANATIONS NATURELLES D'HYDROCARBURES LOURDS DEPUIS LES SÉDIMENTS VERS L'HYDRO-ATMOSPHÈRE :

### APPROCHE INTÉGRÉE MULTIÉCHELLE DANS LE BASSIN PROFOND DU BAS-CONGO

Soutenue le 20 novembre 2017 devant le jury composé de

Mr. Aurélien Gay, Maître de conférences HDR, Univ. de Montpellier 2	Rapporteur
Mr. Francis Odonne, Professeur, Univ. de Toulouse 3	Rapporteur
Mr. Marc De Batist, Professeur, Univ. de Gent	Examinateur
Mr. Benoît Deffontaines, Professeur, Univ. de Paris-Est	Examinateur
Mme. Stéphanie Dupré, Chargée de recherche, IFREMER	Examinatrice
Mr. Xavier Durrieu de Madron, Dir. de recherche CNRS, Univ. de Perpignan	Examinateur
Mme. Lies Loncke, Maître de conférences, HDR, Univ. de Perpignan	Directrice
Mr. Damien Dhont, Ingénieur, HDR, TOTAL	Co-directeur





UNIVERSITÉ PERPIGNAN VIA DOMITIA





### <u>Résumé</u>

Le bassin du Bas-Congo est une province pétrolifère, affectée par des sorties naturelles d'hydrocarbures lourds depuis les sédiments vers l'hydrosphère et la surface de la mer. L'objectif de ce travail est de comprendre les modes de fonctionnement de ces systèmes, depuis la mobilisation dans les sédiments jusqu'à l'exutoire en fond de mer puis en surface mer. Cette étude combine des données issues de l'imagerie spatiale, de l'océanographie, de la géochimie et de la géophysique marine afin d'obtenir à une vision intégrée des zones d'expulsion naturelles dans le bassin du Bas-Congo.

L'analyse de données issues de l'imagerie spatiale a permis de mettre en évidence un nombre conséquent de nappes d'hydrocarbures à la surface de la mer. La récurrence de ces nappes permet d'identifier les zones responsables des expulsions des hydrocarbures lourds. Une centaine de sites actifs identifiés se distribuent dans la province profonde du bassin du Bas-Congo. Le mécanisme d'émanation naturel d'hydrocarbures semble être un phénomène discontinu, avec des périodes et des fréquences d'expulsion variables et propres pour chaque site. Le volume d'hydrocarbures naturellement expulsé par an est estimé à 4400 m<sup>3</sup> sur une surface d'environ 15 000 km<sup>2</sup>.

L'intégration des données de courantométrie permet de relier les nappes d'hydrocarbures visibles à la surface de la mer avec les structures fond de mer. Les vitesses de remontées des fluides sont estimées entre 3 et 8 cm.s<sup>-1</sup>. Les valeurs de déflections latérales au cours de la remontée dans la colonne d'eau sont de 2.5 km maximum pour des profondeurs d'eau comprises entre 1200 et 2700 m.

La zone d'étude est une marge passive affectée par une forte déformation compressive associée à la tectonique salifère. A haute résolution, les structures visibles en fond de mer correspondent à des chapelets de dépressions localisés sur le pourtour des diapirs de sel et associés à des regroupements de monticules interprétés comme étant composés d'huile fortement dégradée en périphérie. Ces dépressions présentent des anomalies géophysiques à la fois sur le fond de mer, mais également au niveau de la subsurface. Dans les sédiments, les fortes amplitudes se retrouvent sous la forme de cheminées verticales, délimitées par le bas par le réflecteur sismique à polarité négative associé à la base de stabilité des hydrates de gaz. Celuici est défléchi au droit des cheminées témoignant d'anomalies thermiques liées au passage des fluides. Sous ce niveau, elles se retrouvent sous la forme d'amplitudes massives. De manière occasionnelle, les zones de sorties présentent un second réflecteur à polarité négative visible sous le premier, il pourrait être associé à la base de stabilité d'un mélange d'hydrocarbures plus lourds.

Nous avons effectué une revue des caractéristiques géophysiques des sites de fuites actives d'hydrocarbures, ce qui nous a permis de valider les critères identifiés localement à l'échelle régionale. La correspondance spatiale de ces différents critères a permis d'inventorier les sites potentiellement actifs sur les données géophysiques. Il s'avère que seulement 40% des sites potentiels ont pu être reliés à des nappes d'hydrocarbures visibles à la surface de la mer. Les points de sorties actives d'hydrocarbures lourds se concentrent autour des têtes de diapir, en particulier sur le pourtour des mini-bassins présentant les taux de sédimentation les plus forts.

<u>Mots clés :</u> Bassin du Bas-Congo, Nappes d'hydrocarbures, Fuites naturelles, Pockmark, Hydrate de gaz, Modélisation hydrodynamique.

### <u>Abstract</u>

The Lower Congo Basin is a petroleum province, affected by natural heavy hydrocarbon seeps expelled from the sediments to the hydrosphere and the sea surface. The objective of this work is to understand the modes of operation of these systems, from the mobilization in the sediments towards the seafloor and subsequently the sea surface outlets. This study combines data from spatial imagery, oceanography, geochemistry and marine geophysics in order to get an integrated vision of the natural seepage situation in the Lower Congo Basin.

The analysis of a dense spatial dataset demonstrated that an important amount of natural hydrocarbon seepage is currently expelled towards the sea surface. The recurrence of oil slicks enables the identification of areas responsible for fluids expels. A total of one hundred active sites are distributed along the deep province of the Lower Congo Basin. The mechanism of natural oil seepage appears to be discontinuous, with variable and independent expulsion periods and frequencies for each site. The volume of hydrocarbons naturally expelled per year is estimated at 4400 m<sup>3</sup> over a surface area of 15 000 km<sup>2</sup>.

We connected visible hydrocarbon slicks at the sea surface with seabed structures by integrating current measurements across the water column. The ascension velocity of expelled fluids when rising through the water column is estimated between 3 and 8 cm.s<sup>-1</sup>. The lateral deflection through the water column is 2.5 km as a maximum for water depths between 1200 and 2700 m.

The study area is a passive margin affected by a strong compressive salt tectonic deformation. Up-scaled to structure, the seabed features correspond to a complex of depressions located on the rim of salt diapirs and associated with clusters of mounds outwards interpreted as being composed of highly degraded oil. These depressions present geophysical anomalies both on the seabed and at the subsurface. Vertical successions of acoustic contrast enhancements produce an ensemble of pipe-like features that connects the seafloor with the negative polarity seismic reflector associated with the base of the stability of the gas hydrates. They are found in the form of massive amplitudes underneath. Occasionally, a second negative polarity reflector affect the subsurface, possibly associated with a mixture of heavier hydrocarbons.

We conducted a review of the distinctive geophysical characteristics of active thermogenic hydrocarbon seep sites, which enabled us to validate the criteria identified locally at a broader scale on the geophysical dataset. The criterion previously identified seems to be confirmed at a regional scale. The spatial correspondence of these different criteria enables to inventory the potentially active sites. It turns out that only 40% of the potential sites could have been linked to oil slicks visible at the sea surface.

Active oil seep sites are concentrated at the rim of salt diapirs, in particular at the salt minibasin edges that are characterised by the highest rates of sedimentation.

<u>Key words:</u> Lower Congo Basin, Oil slicks, Natural seepages, Pockmark, Gas hydrates, Numerical modeling.

### Table des matières

Introduction générale	1
Chapitre I. État de l'art sur les sorties d'hydrocarbures lourds et problématiques	naturelles
I. Génération et migration des hydrocarbures dans les bassi	ns
sédimentaires	
I.1. Composition chimique et structure moléculaire	
I.2. Formation des hydrocarbures	
1.3. Migration des hydrocarbures	
1.4. Distribution mondiale des zones de sorties de liuides	
II. Marqueurs de migration de fluides	14
II.1. Carbonates authigènes	
II.2. Hydrates de gaz	
II.5. Communautes de vies sous marines II.4. Pockmarks	
III. Sorties naturelles a nyarocarbures louras vers l'nyaro-a         III.1. Distribution mondiale         III.2. Processus d'altération des hydrocarbures lourds dans les sédiments         III.3. Structures en fond de mer         III.4. Hydrocarbures liquides dans la colonne d'eau         III.5. Nappes d'hydrocarbures liquides à la surface de la mer	29 
IV. Problematiques et motivations	
Chapitre II. Zone a'etuae, aonnees et methodes	
I. Le bassin du Bas-Congo	
I.1. Contexte géographique	
I.2. Dynamique hydrographique actuelle	
I.3. Contexte géologique	
II. Matériel et méthodes	
II.1. Imagerie spatiale	
II.2. Courantométrie	
II.3. Geophysique marine II.4. Carattaga géochimique en fond de mar	
11.4. Catollage geochinnyue en 10110 de met	

Chapitre III.Surveillancesatellitairedesémanationsnaturelles d'hydrocarbures liquides à la surface de la mer.......97

Introduction à l'article publié dans la revue Remote Sensing of Environment	
Résumé	101
1. Introduction	
2. The Lower Congo Basin	
2.1. Geological context	103
2.2. Seafloor manifestation of fluid vents	104

2.3. Oceanographic context	105
3. Dataset and methods	
3.1. SAR acquisition parameters for oil slick detection	107
3.2. SAR dataset	107
3.3. Wind and current assessments	109
3.4. Identification of natural leakages at the sea surface	112
4. Oil seep analysis and results	114
4.1. Long-term observations	
4.2. Short-term monitoring	116
5. Discussion	
5.1. Wind requirements for seepage slick detection	122
5.2. Seepage slick residence time	122
5.3. Evidence of leakage interruption	125
5.4. Insights on seepage pace from short- and long-term monitorings	126
5.5. Oil output quantification	127
6. Conclusions	
7. Unpublished additional informations	
7.1. Controlling factors for seepage disruption	129
7.2. Output quantification of oil	
7.3. Associated gas escapes	133
7.4. Significance of natural seeps compared against man-made spills	135

Introduction à l'article soumis dans la revue Deep Sea Research Part I Résumé	138 141
1. Introduction	
2. Regional settings	144
3. Data and methods	147
3.1. Data	
3.2. Methods	150
4. Results	
4.1. Current distribution during the monitoring period	152
4.2. Evidence of active hydrocarbon seepage	154
4.3. Computation of the horizontal deflection of oil droplets	156
4.4. Connecting sea-surface slicks with seafloor features	158
4.5. Statistical approach of the horizontal deflection	161
5. Discussion	
5.1 Accuracy of the model	
5.2. Variability of the ascension velocity through the water column	166
5.3. Comparison with predicted ascent models	
5.4. Horizontal deflection compared to the water depth	167
6. Conclusions	
Appendices	

Introduction à l'article accepté avec corrections à la revue Marine and Petroleum G	eology 174
Abbreviations	
Résumé	
1. Introduction	176
2. The Lower Congo Basin	179
2.1. Geological setting and petroleum plays	179
2.2. Evidence of natural hydrocarbon seeps in the Lower Congo Basin	
3. Material and methods	182
3.1 Sea surface mapping of natural oil slicks	182
3.2. Seafloor and sub-seafloor geophysical dataset	
3.3 Criteria for choosing the study area	
4. Analysis and results	187
4.1 Evidence of natural oil seepage	187
4.2. Geophysical features of the seafloor oil seep site	191
4.3. Echo-characterisation of the seeping zone on the sub-bottom profiler data	193
4.4. Negative Amplitude Anomalies on exploration seismics	
4.5. High amplitude extraction from exploration seismics	199
4.6. Fault network below the seeping zone	199
5. Interpretation, discussion and implications	201
5.1. Linking sea surface and seafloor observations	201
5.2. Lateral evolution of seepage intensity: Focused vs distributed	
5.3. Significance of positive geophysical anomalies	
5.4. Significance and implications of the double Negative Amplitude Anomaly	209
5.5. Recognition criteria of an active thermogenic oil seeping area	
6. Conclusions	214

Chapitre VI. Sy	nthèse région	ale de	la dist	ribution	des
structures d'éma	nation d'hydr	ocarbures	lourds	et co	ntrôle
structural	••••••••••	•••••	•••••	•••••	215

d'hydrocarbures lourds dans le bassin du Bas-Congo	
Introduction à l'article prêt à soumettre au journal G-cubed Résumé	
I.1. Introduction	
I.2. The Lower Congo Basin	
I.3. Data and Methods	
I.3.1. SAR data and seepage slicks inventory	
I.3.2. Geochemical coring	
I.3.3. Seismic dataset	
I.4. Analysis and results	
I.4.1. Evidence of active oil seeps	

I.4.2. Fluid flow features on the seafloor	230
1.4.5. Echo characterisation of the subsurface	230
I.5. Discussion	243
I.5.1. Definition and significance of geophysical criterions of thermogenic seep sites	243
1.5.2. Multi-scale evaluation of the thermogenic seepage potential	246 248
I 6 Summary and Conclusions	251
Section II Interaction entre la surcharge sédimentaire, la tectonique salifère et	les
émanations naturelles d'hydrocarbures lourds dans le bassin du Bas-Congo	252
Introduction à l'article en cours de préparation pour publication Résumé	252 254
II.1. Introduction	254
II.2. Study area	255
II.3. Data and Methods	257
II 4 Regional insights of the oil seening province	258
II.4.1. Salt tectonics	
II.4.2. Distribution of the sedimentation thickness	260
II.4.3. Origin of the oil on the seafloor	264
II.5. Discussion	265
II.5.1. Control of the sedimentary input on seep sites location?	265
<b>11.5.2.</b> Perspectives: Implications for the evaluation of petroleum systems	268
II.6. Conclusions	270
Chapitre VII. Conclusions générales et perspectives	. 271
I. Rappel des objectifs et motivations	272
II. Vers une meilleure compréhension des sorties naturelles	
d'hydrocarbures lourds	273
III. Faits marauants	276
Sur la distribution géographique des zones de sorties fluides hydrocarbonés	276
Sur la dérive du panache dans la colonne d'eau	277
Sur la caractérisation des structures en fond de mer	277
IV. Pistes de recherche	278
IV.1. Impact environnemental	278
IV.2. Durée de vie et périodicité d'un site actif d'émanations d'hydrocarbures	282
IV.3. Comparaison à la réalité terrain	284
Références	. 285

- Fig. I-4 : Répartition des suintements froids à l'échelle mondiale. Compilation d'après DeBatist et al. (2002), Cifci et al. (2003), Judd (2003), Nakajima et al. (2003), Loncke et al. (2004), Sumida et al. (2004), Acosta et al. (2005), Marinaro et al. (2006), Pilcher et Argent (2007), Dupré et al. (2007), Sultan et al. (2007), Leon et al. (2009), Moss et al. (2010), Naudts et al. (2010). La carte bathymétrique est issue de la base de données Gebco.
- Fig. I-6: Profil de concentration en sulfates depuis le plateau continental jusqu'à la plaine abyssale (modifié d'après Borowski et al., 1999). SMI: Sulphate Methane Interface. 17

- Fig. I-9: (page précédente) Modèles conceptuels de genèse des pockmarks. a. Modèle de genèse d'un pockmark d'après Josenhans et al. (1978), par modification des courants de fond. b. Modèle de Hovland et Judd (1988) par éruption spontanée des fluides. c. Modèle de formation par non-sédimentation, d'après Gay et al. (2002). d. Modèle de formation de Sultan et al. (2010) par dissociation/ dissolution des hydrates de gaz.
- Fig. I-10: Revue des différents pockmarks décrits dans la littérature (compilé d'après Andresen et al., 2011; Andresen et Clausen 2008; Andresen, 2012; Moss et al., 2012; Hovland et al., 2005; Sultan et al., 2007).
- Fig. I-11: Inventaire des sorties naturelles de pétrole à l'échelle mondiale avant ce travail. Compilation d'après : Wilson et al. (1973), MacLean (1981), Levy et Ehrhardt (1981), Becker et Mannen (1988),

Kvenvolden et Cooper (2003), O'Brien et al. (2005), Zatyagalova et al. (2007), Garcia-Pineda et al. (2010), Jauer et Budkevisch (2010), Suresh (2015), Körber et al. (2014), Etiope (2015), Vis (2017). 29

### Chapitre II. Zone d'étude, données et méthodes ...... 49

- Fig. II-2: Systèmes hydrographiques à l'échelle du bassin angolais. Compilation des courants superficiels, intermédiaires et profonds, des limites de systèmes hydrographiques et des apports fluviatiles. Compilé d'après Mazeika (1970), Moroshkin et al. (1970), Picaut (1984), Peterson et Stramma (1991); Schneider et al. (1996) Holmes et al. (1997), Stramma et England (1999), Stramma et Schott (1999), Lass et al. (2000), Shannon (2001), Mercier et al. (2003), Hardman-Mountford et al. (2003), Hopkins et al. (2013). AC: Angolan Current, BCC: Benguela Counter Current, AD: Angolan Dome, SECC: South Equatorial Counter Current GC: Gabon Current, BOC: Benguela Offshore Current, CP: Congo Plume, AG: Angolan Gyre, EUC: Equatorial Under Current, SEUC: South Equatorial Under Current, S3
- Fig. II-3: Carte tectono-structurale de l'océan Atlantique Sud à 84 Ma (modifiée d'après Moulin et al., 2010). La ligne rouge centrale marque la position de la ride médio-Atlantique. Du nord au sud, l'océan Atlantique est subdivisé en quatre grands segments : Equatorial, Central, Austral et celui des

- Fig. II-4: Évolution géodynamique de la marge Ouest Africaine entre l'Albien et le Crétacé supérieur. (modifié d'après Beglinger et al., 2012, issue de Tissot et Welde, 1984; Brownfield et Charpentier, 2006)..... 61

Fig. I	II-20: Scho	éma d'illustration	du principe	d'acquisition	de la	sismique	réflexion	multi-traces	(modifié	d'après
	Peter	rsen et al., 2010).								83

# Chapitre III. Surveillance satellitaire des émanations naturelles d'hydrocarbures liquides à la surface de la mer......97

- Fig. III-1. A: Location map of the study area (see the African map within the black frame in the top left corner) superimposed with an overview of main oceanic currents and geological settings. The orientation of colored arrows represents the directions of the hydrodynamic components of the basin. The characteristics of each current, including velocity, depth influence, temperature and salinity, appear in the legend when available. B: Geological cross-section of the Lower Congo Basin (a-b on Fig. III-1A) including pre-rift, syn-rift, transitional and post-rift series (modified from Guilbot et al., 2012). See location of the section from the black line in Fig. III-1A.

- Fig. III-8: A, B. Compilation of oil slick footprints and associated OSOs revealed from short-term monitoring for macro-seep sites A and B. Colour scale refers to subsequent acquisition dates and is applied for both seepage slicks and OSOs. Blue circles are the deflection offset computed from individual OSO locations. C. Red and blue graphs display the length of individual seepage slicks for seep site A and B respectively. D. Graph of the local wind values derived from SAR scenes. Non-imaged areas were masked with grey squares. Black arrows pinpoint SAR scenes where seepage slicks were only visible from one of the two sites A and B.
- Fig. III-9: A: Histogram of the distribution of current speed recorded from 6 months of mooring measurements 10 m below the sea surface. We considered an upper and a lower bound from the overall distribution of the current velocity. The wind rose to the right shows the distribution of current orientation and speed. B: Smooth kernel density of the distribution of the minimum residence time of the oldest oil droplet of individual slicks mapped during short-term monitoring. The residence time computation considers the local wind value at the location of OSOs, surface current velocity and slick length.... 123
- Fig. III-11: a. Replacement of the SAR monitoring period of 22 images acquired over 10 days superimposed with the tide curves (blue), one month before and after the monitoring period (17/09/2012 to 17/11/2012). b. Tide height compared to the amount of slicks detected during the 10 days of SAR acquisition within the "High coverage density area" (20 to 22 SAR scenes). The long-range evolution of the tide amplitude is displayed below.

- Fig. IV-3: a. Schematic representation of the methodology used to quantify the deflection of oil droplets in the water column. Oil Slick Origins (OSO) were drawn from the proximal detectable edge of seepage slicks on the compilation stack of SAR data. b. The distribution of the deflection value was assessed from the distance and orientation between the GMC (Geometric Mean Centre) and individual OSO. c.

- Fig. IV-5: a. Left: Annual mean along-slope (left) and across-slope (right) components of the current recorded at mooring 2 (see location in Fig. IV-1). We considered the local slope orientation declination of 125° N.
  b. Θ-S diagram from CTD (conductivity, temperature, depth) profiles collected in January 2009. Potential temperature corresponds to the temperature corrected for the effect of pressure. c. Distribution of the mean current orientations and strengths of the main hydrographical units as shown in Fig. IV-5a. 1: surface layer (7-130 m), 2: subsurface layer (130 385 m), 3: intermediate layer (385 1185 m) 4: bottom layer (1185 1385 m).
- Fig. IV-6: a. Extract of the ALOS SAR scene acquired on June 30, 2009 zoomed-in on the location of mooring 1 and closest oil slicks (scene provided by the Japan Aerospace Exploration Agency). Two oil slicks are outlined in black polylines for the display. OSOs are spotted from the proximal edge of recurrent oil slicks deduced from the slicks compilation map. b. Compilation map of seepage slicks identified from the analysis of the 103 overlapping SAR scenes. The color-scale refers to the year of observation. The black box in the right top corner displays the slicks compilation map focused on the probable surfaced area.

- Fig. IV-9: a, b. Bathymetric and slope maps on the proximal edge of oil slicks at the Seep sites 1 and 2, respectively (see locations in Fig. 6). Steep slopes that appear in dark correspond to seafloor disturbances associated with natural oil seeps on the seafloor. Black continuous lines are 50m isobaths. The oil slicks detected at the sea surface on the June 30, 2009 are superimposed with the OSO and the modeled deflections for a range of probable ascension velocities (colored stars). ...... 159

- Fig. V-1: a. Location map of the study area showing the main geological provinces of the LCB. The map integrates the seafloor seeps reported in the literature (compiled from Gay et al., 2003; Gay et al., 2006a; Gay et al., 2007; Andresen et al., 2011; Wenau et al., 2014a, b; Jones et al., 2014) and recurrent oil slicks at the sea surface (white stars, from Jatiault et al., 2017). Continuous black lines represent 1000 m isobaths (Gebco). b. Regional cross section across the LCB displaying the pre-rift, syn-rift and post-rift sequences (modified from Jatiault et al., 2017). c. Chronostratigraphic log and petroleum system plays (modified from Anka et al., 2013).
- Fig. V-2: Schematic representation of the methodology used to identify recurrent seepage slicks with the stacking of overlapping SAR scenes. a, b. Synchronic stages for seep sites A and B. c. Isolated slick suggests a dormant stage of one of the two sites. Active stage is attributed to the proximal recurrent seep site. d. Illustration of a problematic case where the origin of expelled oil between seep site A and B remains undetermined. e. The observation of the deflection at a distant seep site (C) helps to understand the deflection during SAR acquisition and to associate isolated slicks with the appropriate seep site.
- Fig. V-4: a. Compilation map of seepage slicks identified from the analysis of the 136 overlapping SAR scenes. The colour scale refers to the year of slicks related to the SAR acquisition period. White and black dots are the OSO locations for seep sites A and B respectively. The slick outlines identified at the sea surface are superimposed with 50 m seafloor isobaths. Recurrent oil seep sites are encircled with red dashed circles. b. Extract of Envisat IMP scene dated 12/02/1999. c. Extract of Cosmo-Skymed SAR scene dated 22/11/2010. d. Extract of Cosmo-Skymed SAR scene dated 10/01/2011. White stars correspond to the GMC locations.
- Fig. V-6: a. Seismic reflection section extracted from the 3D seismics (data courtesy of Total) showing a seabed and sub-seabed feature that SAR images indicate as currently leaking oil. Warm colours show high-amplitude positive reflections (strong impedance increase downwards) whereas black horizons highlight negative impedance contrasts (see location in Fig. 3). b. Interpretative line drawing. ...... 192
- Fig. V-7: a. (previous page) Seafloor isochrons and gradient map from the high-resolution bathymetry on the pockmark complex, superimposed with 1 m isobaths. b. Amplitudes of the first arrivals at the seafloor extracted from the 3D seismics. c. Seafloor reflectivity map. d. Zoom on the bathymetry of the northern area affected by rough seafloor (see location in Fig. V-5d). e. Amplitudes of the first arrivals at the seafloor extracted from the 3D seismics superimposed with 1 m isobaths. f. Seafloor reflectivity map largely zoomed to show the seafloor reflectivity enhancement at the mound location. The map is superimposed with 0.25 m isobaths. g. Seafloor map of the southern area affected by rough seafloor superimposed with 1 m isobaths. h. Amplitudes of the first arrivals at the seafloor extracted from the 3D seismics. i. Seafloor reflectivity map. Between high and low values, the bathymetry range is 20 m for (a) and (d) and 60 m for (g). See locations of the three boxes in Fig. V-5d.
- Fig. V-8: a. SBP section (2D lines) displayed in envelope attribute through the HIL and interpretative line drawing. b. Seismic section of the shallow subsurface extracted from the 3D seismics, the layout was adjusted to fit with the SBP section in Fig. 8a and superimposed with the top of the HIL. c. SBP

section displayed in envelope attribute and interpretative line drawing through the area affected by seafloor mounds. The interpretation section shows the association between sub-bottom HIL, seafloor mounds and shallow/deep faults. d. Map of the top of the HIL picked from the 175 m separated SBP tracklines, the map is complemented with interpretative 3D picking between 2D sections considering seafloor reflective patches, fault trends or structural elements and 1m isocontours. e. Map of the burial of the HIL computed from the distance between the first arrivals on 3D seismics and the top of the HIL.

- Fig. V-10: a. Seismic section below the pockmark complex (see location in white dashed line in Fig. 10b, c). The map is superimposed with NAA1 and HIL horizons in black lines. b. Map of the RMS amplitude stack on the interval between seafloor + 100 ms and 200 ms TWT corresponding to the layers below NAA1.
  c. Map of the RMS amplitude stack between the HIL and NAA1. The RMS amplitudes are superimposed with seafloor 5 m interval contour lines.
- Fig. V-11: a. Inventory of shallow faults picked from 3D seismics. The faults are sorted between four main families of normal faults composed of gravity collapse (orange), synthetic concentric faults (red), antithetic concentric (blue) and radial (green). b. Seafloor faults picked from the combined analysis of seafloor imagery, SBP sections and 3D seismics. The map is superimposed with HIL burial, location of seafloor pockmark and asphalt mound areas. 201

- Fig. V-14: Phase diagram and hydrate stability domains (Sloan, 1990). Green and red stars correspond to the projection in the P-T diagram of the estimated depth NAA1 considering different propagation velocities in the minibasin and above the diapir, respectively. The slope of the line informs about the geothermal gradient, considering a seafloor depth of 1685 metres and 100% methane hydrate in seawater (see location of selected areas in Fig. V-9). Blue stars correspond to the projections of NAA2 using the 3 geothermal gradients computed from the estimated depths of the NAA1 above the salt diapir.

- Fig. VI-3: a. Graph (logarithmic axis) of the concentration of the high molecular weight hydrocarbons (C<sub>15+</sub>) compared to the maximal intensity of the Total Scanning Fluorescence (TSF Imax). The colours of dots refer to the certitude degree of hydrocarbon presence in cores. b. Same graph with a correlation of sea surface slicks manifestations. The dots are sorted into 4 categories depending on the geographical correspondence of oil at the sea surface (red dots) and visual inclusion in cores (triangles). The red dashed triangle delimits the two categories "Sure" and "Probable" that presumably contains oil traces.

- Fig. VI-7: A. Extract of the RMS interval of the first 100 ms TWT showing different types of seismic anomalies. Note the presence of a shallow diapir that creates consistent high amplitudes close to the seafloor. Outcrop of Neogene series creates a moderate amplitude anomaly. Sub-circular low amplitude anomaly in minibasins and smaller sub-circular high amplitude anomalies are lying above salt diapirs. B. Quaternary sediment isopach revealing the differential sedimentation between minibasin areas and diapir areas. C, D, E, F. Seismic sections through the different geophysical anomalies identified on the RMS stack amplitude (see details in text and locations on the Fig. VI-7 A, B). G. Zoom in the black square of Fig. VI-7E.
- Fig. VI-8: a. Map of the RMS amplitude stack of the first 100 ms TWT below seafloor. Geophysical positive amplitude anomalies are visible in warm colours. White circles show the average surfacing areas of recurrent oil seeps. b. Map of the allochthonous salt in purple polygons. Anticlines and synclines are respectively displayed in red and blue dashed polylines. Geophysical anomalies are extracted from the RMS amplitude stack and categorised between four main families: shallow salt diapirs, exhumed older and compacted sediments, pseudo-circular amplitude diming and vertical stack of pseudo-circular high amplitude anomalies.
- Fig. VI-9: a. Extract of the Bottom Simulating Reflection map with respect to basin structure illustrating the relationship with hydrates and oil seeps sites. b. Isochrons map of the HIL (High Impedance Layer) in the shallow subsurface extracted with the sub-bottom profiler. The colour-scale refers to the distance between the seismic horizon and the seafloor. 241
- Fig. VI-11: The study area is located in the Congo deep sea fan that is affected by strong Aptian salt tectonics (redrawn from Guiraud et al., 2010). The coloured dots correspond to the locations of recurrent oil seep sites identified with the SAR system (Jatiault et al., 2017). The occurrence rate refers to the amount of oil slicks compared to the SAR scene coverage density. Black continuous lies are 1000 m bathymetric isocontours. b. Regional geological cross-section redrawn from Lentini et al. (2010). c. Tectono-lithologic framework of the post-rift super-sequence (modified from Séranne and Anka, 2005; Marcano et al., 2013).

- Fig. VI-16: a. Map of the draining paths in the minibasins computed from the Mid-Pliocene (Top Zanclean) horizon. White areas correspond to non-draining paths, blue to low accumulation flow (restricted-size catchment area) and red to large catchment areas or junction areas. b. Superimposition map of the salt diapirs, oil seep sites and sediment thickness accumulation since the Mid-Pliocene (Top Zanclean). Recurrent oil seep sites are displayed as coloured hexagons. The colours refer to the sediment interval in the proximal minibasins. Black arrows correspond to the possible draining paths and migration routes.

- Fig. VII-2: Présentation des différents mécanismes et des gaz générés en lien avec des fuites d'hydrocarbures lourds. a. Dégradation des hydrocarbures par méthanogénèse. Réaction de biodégradation des huiles dans les milieux sédimentaires saturés en eau et sans présence de sulfates abondants (e.g. Spormann et Widdel, 2000; Widdel et Rabus, 2001;Jones et al., 2008). b. Graphique montrant l'évolution de la proportion de pétrole résiduel au cours de la biodégradation, en comparaison à la production de méthane (redessiné d'après Peters et al., 2007). c. Modèle décrivant les observations d'aérosols organiques dans la direction du vent, après un scénario de fuite d'hydrocarbures (Deep Water Horizon, modifié d'après DeGouw et al., 2011).
- Fig. VII-3: Exemple d'anomalie verticale d'amplitude interrompue dans la pile sédimentaire. Bandeaux supérieurs : mosaïque de différentes cartes isochrones et cartes d'amplitudes issues des données de sismique 3D. Bandeau inférieur : section sismique présentant des évidences de migration de fluides.
- Fig. VII-4: Présentation d'un analogue de terrain potentiel pour l'étude de la distribution spatiale des lentilles carbonatées authigènes (Ispaster, Pays basque Espagnol). Modifié d'après Agirrezabala et al. (2013). Lame mince montrant la présence d'asphaltes sur zone (c : calcite, d : dolomite, p : comblement de pyrobitumes en noirs). Coupe montrant la distribution et l'empilement de lentilles de carbonates authigènes dans une matrice de turbidites sableuses.

### Liste des tableaux

Tableau I-1: Compilation des références bibliographiques présentant une estimation de la taille de bulles d'hydrocarbures.       39
Tableau I-2: Vitesses de remontée des hydrocarbures à travers la colonne d'eau.       39
Tableau II-1: Compilation des différents types de roches mères et des systèmes pétroliers associés au sein du bassin du Bas-Congo. SRT : Source Rock Type. TOC : Total Organic Content. HI : Hydrocarbon Indicator. Compilé d'après Cole et al. (2000), Schoellkopf et Patterson (2000), Brownfield et Charpentier (2006), Beglinger et al. (2012). Les valeurs de porosité correspondent aux valeurs maximales reportées dans la littérature. 58
Table III-1: SAR data used for oil slick mapping during both long-term and short-term monitoring 108
Table III-2: Listing and characteristics of SAR scenes acquired during short-term monitoring
Table III-3: Overview of look-alike features detected on SAR scenes and dismissal features 111
Table III-4: Estimation of the regional output of oil from the 102 natural seeps along the Lower Congo Basin, assessed from average surface oil and SAR data coverage.         127
Table III-5: Description of the specific slick used to quantify the oil output
Table IV-1: Compilation of reported values of hydrocarbon ascension velocities through the water column 143
Table IV-2: Characteristic of ADCP records for mooring 1 and mooring 2.       147
Table IV-3: Inventory of SAR scenes collection characteristics       148
Table IV-4: Inventory of modeled deflection values expressed in distance and orientation for a range of probable ascension velocities, considering a water depth of 1820 m (depth of mooring 1). The orientation is provided for a backward deflection from the slicks observed from the sea surface towards the seafloor emission point. It also presents the deflection orientation for forward modeling from a seafloor pockmark towards the sea-surface slick.
Table V-1: Characteristics of the available datasets including seafloor and sub-seafloor imagery
Table V-2: Seepage slicks overview identified on spaceborne SAR scenes and released from the oil seep areas investigated in this study.         189
Table V-3: Estimation of the geothermal gradient computed using the time recorded between the seafloor and the BSR using 3 different propagation velocities
Table VI-1: Inventory of SAR scenes collection characteristics    223
Table VI-2: Characteristics of the available datasets including seafloor and sub-seafloor imagery
Table VI-3: Inventory of pockmarks depicted from the interpretation of the 12.5 m resolution multi-beam bathymetry. The imaged area largely outreaches the 3D-covered exploration seismics and therefore explains the greatest amount of detected seafloor features.         243
Table VI-4: Synthesis of observations related to the regional assessment of the total seeps array compared to detectable oil seeps. Coupling the features related to oil seep sites with unseeping geophysical anomalies enables the understanding of the present day activity of oil seepage compared to the total seeps array.         250
Table VI-5: Characteristics of the 3D seismic data used in this study       257

### **THÈSE DE DOCTORAT**

### Université de Perpignan Via Domitia École doctorale Énergie Environnement - ED 305

### **Romain JATIAULT**

Spécialité

Océanologie

### LES ÉMANATIONS NATURELLES D'HYDROCARBURES LOURDS DEPUIS LES SÉDIMENTS VERS L'HYDRO-ATMOSPHÈRE :

### APPROCHE INTÉGRÉE MULTIÉCHELLE DANS LE BASSIN PROFOND DU BAS-CONGO

Thèse soutenue le 20 novembre 2017 devant le jury composé de

Mr. Aurélien Gay	Maître de conférences, HDR	Université de Montpellier 2	Rapporteur
Mr. Francis Odonne	Professeur	Université de Toulouse 3	Rapporteur
Mr. Marc De Batist	Professeur	Université de Gent	Examinateur
Mr. Benoît Deffontaines	Professeur	Université de Paris-Est	Examinateur
Mme. Stéphanie Dupré	Chargée de recherche	IFREMER	Examinatrice
Mr. Xavier Durrieu de Madron	Directeur de recherche CNRS	Université de Perpignan	Examinateur
Mme. Lies Loncke	Maître de conférences, HDR	Université de Perpignan	Directrice
Mr. Damien Dhont	Ingénieur, HDR	TOTAL	Co-directeur
Mr. Dominique Dubucq	Ingénieur de recherche	TOTAL	Invité

Ce travail de thèse a été réalisé dans le cadre d'une Convention Industrielle de Formation par la REcherche (CIFRE) subventionnée par l'Agence Nationale Recherche Technologie (ANRT), en collaboration avec :

Le CEntre de Formation et de Recherche sur les Environnements Méditerrannéens (CEFREM),

UMR 5110,

Université de Perpignan Via Domitia,

52 Avenue Paul Alduy,

66100 Perpignan,

France

&

Les entités EXPLO/GTS/MTG/MPI et SCR/RD/PRG-IMG,

Société TOTAL SA,

Centre Scientifique et Technique Jean Feger (CSTJF),

Avenue Larribau,

64000 PAU,

France

### Introduction générale

Au cours de l'évolution des bassins sédimentaires, les fluides générés par transformation de la matière organique sont remobilisés depuis les réservoirs, ce qui est à l'origine de nombreux systèmes de migrations vers les niveaux plus superficiels et parfois jusqu'en surface. En domaine marin, la présence de pétrole à la surface de l'eau dans la zone côtière de Santa Barbara (Californie) pendant les années 50 (Dietz et Lafond, 1950) avait été interprétée pour la première fois comme le témoignage de l'expulsion naturelle d'hydrocarbures. L'évolution des techniques nécessaires à l'exploration sous-marine n'a permis d'étendre la reconnaissance géophysique des structures d'échappements des fluides depuis le fond de la mer que plus tardivement. Les premières observations connues ont été établies au niveau du plateau écossais (King et McLean, 1970), permettant la reconnaissance de « pockmarks » pour désigner des figures en forme de dépressions coniques au niveau du plancher marin comme étant liées à l'échappement de fluides. Les développements technologiques au cours des décennies suivantes ont permis leur investigation et leur reconnaissance à travers l'ensemble des marges continentales de notre planète. Depuis leur découverte, les structures associées aux échappements de fluides ont été reconnues au sein de la majorité des marges continentales et leur nombre ne cesse d'augmenter. Devant la diversité des contextes au sein desquels ces figures d'échappements de fluides ont été retrouvées il apparaît clair que ces phénomènes ne perturbent pas uniquement le fond marin, mais qu'ils ont un impact direct sur l'évolution du bassin. Dans un contexte de changement climatique global et de par leur composition, l'évaluation des transferts d'hydrocarbures lourds entre les différents niveaux réservoirs, i.e. sédimentaire ; hydrosphère puis atmosphère apparaît comme un enjeu majeur, tant d'un point de vue sociétal, scientifique qu'économique. De part la multitude des zones de sorties actives de gaz, ces sites ont été largement cartographiés et étudiés. En revanche, les sites associés à des sorties actives d'hydrocarbures plus lourds tels que les pétroles ont été bien moins étudiés spécifiquement, car difficilement différenciables des sorties de gaz par les seuls outils d'exploration acoustique tels que la géophysique marine.

Les **outils satellitaires** permettent la reconnaissance des nappes d'hydrocarbures à la surface de la mer et la surveillance de ces émanations à une échelle régionale. Les **données de courantométrie** permettent d'évaluer les conditions hydrographiques et les déplacements de masses d'eau qui contrôlent les migrations de ces fluides à travers la colonne d'eau et ainsi de calculer et modéliser la position des points d'émanation des hydrocarbures lourds depuis le fond de mer. Ces approches peuvent être combinées à l'analyse des perturbations visibles sur les **mesures géophysiques** de subsurface pour identifier les caractères spécifiques de ces structures de migration dans la pile sédimentaire.



Sources: AAPG Bulletin, CGG, European Geoscience Union, European Space Agency, Florida State University, Marum, Roberts Scribbler, Sea Change, TDI Brooks, Woods Hole Oceanographic Institution

Figure d'introduction générale : Illustration de la démarche utilisée pour caractériser les émanations d'hydrocarbures lourds depuis les sédiments vers la surface de la mer, par couplage de différentes techniques dans le bassin profond du Bas-Congo. Cette figure sera réutilisée au début de chaque chapitre pour illustrer les thèmes traités au cours du manuscrit.

La combinaison de ces différents jeux de données (Figure d'introduction générale) permet de suivre le trajet des fluides depuis leur remobilisation au sein des **sédiments**, jusqu'à leur exutoire à la **surface de la mer** par une approche **multiéchelle**. Nous avons mené cette **approche intégrée** au cours de cette thèse en intégrant (i) les manifestations d'hydrocarbures en surface mer, (ii) leur migration dans la colonne d'eau, (iii) les structures en fond de mer et (iv) les perturbations dans la pile sédimentaire, sur un site particulièrement propice, le domaine **profond du bassin du Bas-Congo**. Ce site est affecté par une large zone de sorties actives d'hydrocarbures liquides visibles à la surface de la mer (*Williams et Lawrence, 2002*) et bénéficie d'un important jeu de données, à la fois (i) en surface mer, (ii) dans la colonne d'eau, (iii) en fond de mer et (iv) en subsurface. Cette zone apparaît donc comme une province de choix pour étudier les sorties naturelles d'hydrocarbures lourds depuis les sédiments vers la surface de la mer.

Ce manuscrit s'organise suivant 7 chapitres distincts :

- Le Chapitre I établit dans un premier temps une revue des connaissances sur la génération, la migration et les expulsions de fluides au niveau des marges continentales, puis renseigne de façon détaillée les questions scientifiques et les problématiques qui seront traitées à travers ce document.
- Le **Chapitre II** présente la zone d'étude d'un point de vue géographique, hydrographique et géologique et présente les données et méthodes utilisées pour mener ce travail.
- Le Chapitre III présente les résultats de la reconnaissance de zones de sorties naturelles d'hydrocarbures liquides issus de l'analyse d'images satellitaire radar dans le bassin du Bas-Congo. Cette étude combine deux périodes de surveillance. La première sur un long terme (18 ans), afin d'identifier les zones actives. La seconde consiste en une acquisition ciblée à haute fréquence sur une courte période (10 jours) pour comprendre les récurrences à court terme, la durée de vie des nappes d'hydrocarbures la surface de la mer avant leur dissipation et la quantification des volumes expulsés. Cette partie correspond à un article publié dans la revue *Remote Sensing of Environment* et intègre quelques résultats supplémentaires.
- Le Chapitre IV est consacré à la compréhension de la dérive du panache d'hydrocarbures liquides à travers la colonne d'eau au niveau des zones de sorties actives identifiées dans le chapitre précédent. L'objectif est de pouvoir relier les signatures surface mer avec les structures en fond de mer. Cette étude combine des données de courantométrie, un jeu de données d'images satellites ainsi que des données bathymétriques et correspond à un article soumis à la revue *Deep Sea Research Part I*.

- Dans le Chapitre V, nous établirons une revue des critères géophysiques fond de mer des sites de suintement d'hydrocarbures liquides en se focalisant sur un site particulièrement bien imagé. Cette étude intègre des jeux de données d'imagerie géophysique de différentes résolutions, offrant des informations complémentaires pour caractériser les sites d'émanation d'hydrocarbures lourds. Nous avons notamment utilisé un bloc de sismique 3D destiné à l'exploration pétrolière, ainsi qu'un jeu de données de très haute résolution (données de sondeur de sédiments et bathymétrie multifaisceaux) au niveau de la proche surface, initialement destiné à quantifier les aléas géologiques. Cette partie correspond à un article accepté avec corrections dans la revue *Marine and Petroleum Geology*.
- Le Chapitre VI se divise en deux sections. Dans la Section I, nous établirons une synthèse régionale de la zone active afin de valider les caractères géophysiques des émanations d'hydrocarbures lourds identifiés à l'échelle locale dans le bassin profond du Bas-Congo dans le chapitre précédent, sur une collection plus importante de sites actifs. Nous mettrons également en lien l'activité actuelle de sorties d'hydrocarbures avec le nombre de sites potentiels de sorties naturelles en couplant des données géophysiques et géochimiques. Cette partie correspond à un article à soumettre à la revue G-cubed (*Geochemistry, Geophysics, Geosystems*). Dans la Section II, nous mettrons en lien l'activité de la tectonique salifère avec les apports sédimentaires dans les mini-bassins et les zones d'expulsion d'hydrocarbures identifiées sur les images satellites. Cette section correspond à un article en cours de préparation pour publication.
- Le Chapitre VII dresse les conclusions générales et met en relief les faits marquants des travaux et des résultats de cette étude. Un ensemble de perspectives associées aux questions restées en suspens sont proposées à l'issue de ce manuscrit.

# <u>Chapitre I.</u> État de l'art sur les sorties naturelles d'hydrocarbures lourds et problématiques









Sources: AAPG Bulletin, Florida State University, Marum, Research Gate, Roberts Scribbler

# I. Génération et migration des hydrocarbures dans les bassins sédimentaires

#### I.1. Composition chimique et structure moléculaire

Les hydrocarbures sont majoritairement constitués de chaînes moléculaires de carbone (C: ~83 - 87 %) et d'hydrogène (H: ~10 - 14%) et en moindre mesure, de sulfures (S: <6%), d'oxygène (O: <6%), d'azote (N: <2%) et de métaux (Fig. I-1a). Les hydrocarbures se formant prioritairement avec des liaisons C-H, ceux-ci sont dits saturés lorsque la quantité d'hydrogène présente en solution est suffisante (Fig. I-1a). D'une manière générale, lorsque la longueur de la chaîne carbonée augmente, le poids moléculaire et la viscosité augmentent également. Ainsi, les chaînes carbonées les plus simples ( $C_1 - C_5$ ) correspondent aux gaz, on retrouve le méthane ( $CH_4$ ), l'éthane  $(C_2H_6)$ , le propane  $(C_3H_8)$ , le butane  $(C_4H_{10})$  et le pentane  $(C_5H_{12})$ . Au-delà, on retrouve les condensats qui correspondent à un stade intermédiaire entre les gaz et les hydrocarbures liquides  $(C_5 \, . \, C_{15})$  puis les pétroles à plus forte viscosité composés de chaînes plus longues  $(C_{15+})$ . Nous utiliserons au cours de ce travail le terme d'hydrocarbures «lourds» pour désigner les pétroles et plus spécifiquement le terme «liquides» pour référer aux pétroles pouvant remonter dans la colonne d'eau et s'épancher à la surface de la mer. Le degré API (°API ; American Petroleum Institution) est largement utilisé pour évaluer le poids moléculaire et la viscosité des hydrocarbures (Équation 1) en comparaison au °API de l'eau (°API=10). Les valeurs diminuent lorsque la densité des hydrocarbures augmente.

$$^{\circ}API = \frac{141,5}{densit\acute{e} a 60 \ ^{\circ}F}^{\circ} - 131,5$$

#### Équation 1 : Calcul du degré API en fonction de la densité des hydrocarbures.

Les composés pétroliers se déclinent en quatre familles (*Tissot et Welte, 1978; Killops et Killops, 2005; 2013*) qui sont:

- les hydrocarbures linéaires (~55%), ils peuvent être soit saturés (alcanes,  $C_nH_{2n+2}$ ) avec ou sans ramification, soit insaturés avec une double liaison C-C (alcènes,  $C_nH_{2n}$ ) ou cycliques (n°1; Fig. I-1a).
- les composés aromatiques (~30%) sont des molécules cycliques avec des liaisons
   *C-C* alternativement simples et doubles (n°2 ; Fig. I-1a).

- les résines sont des composés aromatiques solubles dans l'eau définis par leur forte polarité (n°3; Fig. I-1a).
- les asphaltènes sont également des composés aromatiques complexes (10<sup>5</sup> à 10<sup>6</sup> molécules) définis par leur solubilité (n°4 ; Fig. I-1a).

Les résines et les asphaltènes (~15%) correspondent à des molécules complexes polycycliques, comprenant des composés N, S et O, ainsi que des métaux lourds.



Fig. I-1: Composition des hydrocarbures et processus de formation. a. Illustration de la structure moléculaire des principales catégories constituant les pétroles. b. Illustration de la quantité et du type d'hydrocarbures produit en fonction de la profondeur d'enfouissement. Cette profondeur est représentée d'après un gradient géothermique moyen, mais peut fortement varier en fonction des contextes (adapté d'après Tissot et Welte, 1984; Floodgate et Judd, 1992; Killops et Killops, 2005).

#### I.2. Formation des hydrocarbures

La génération des hydrocarbures se produit par dégradation du kérogène qui est la portion insoluble de matière organique présente dans les sédiments. Une formation sédimentaire est susceptible de produire des hydrocarbures lorsque le pourcentage de matière organique contenue dans les niveaux sédimentaires atteint un pourcentage supérieur à 1 % (*Floodgate et Judd, 1992*). La génération des hydrocarbures à partir des niveaux sédimentaires riches en matière organique se produit principalement suivant deux réactions qui sont la diagenèse microbienne et thermocatalytique (*Whiticar et al., 1994; Whiticar, 1999*).

#### I.2.1. Diagenèse microbienne

Le procédé de fabrication d'hydrocarbures par diagenèse se produit par biodégradation de la matière organique. L'origine de cette matière organique peut provenir de divers environnements de dépôts. Pour les environnements marins, lorsque cette matière organique n'est pas dégradée dans la colonne d'eau, elle est déposée en fond de mer. La matière organique enfouie dans les sédiments marins est initialement composée de polymères complexes qui vont ensuite être dégradés en produits monomères alors assimilables par les bactéries. Cette « dépolymérisation » de la matière organique se produit en plusieurs étapes dont la première se traduit par la formation de sucres, d'acides aminés et d'acides gras issus de l'hydrolyse enzymatique (Fenchel et Jorgensen, 1977; Floodgate et Judd, 1992). Les produits générés sont alors réutilisés / retransformés pour produire des alcools et acides volatiles (Acide acétique:  $CH_3COOH$ ), de l'hydrogène ( $H_2$ ) et du dioxyde de carbone ( $CO_2$ ). L'apport énergétique étant différent entre les produits monomères pour les bactéries, la consommation sera séquentielle. La respiration oxique étant la plus énergétique, elle se produit très précocement lors de l'enfouissement, globalement dans les premiers millimètres de sédiments (Froelich et al., 1979). Intervient ensuite la dénitrification (~ 10 cm sous la surface), puis la réduction des oxydes de Manganèse (Mn(IV)), de Fer (Fe(III)) et de sulfure d'hydrogène ( $H_2S$ ) dans les premiers centimètres (<1 m) pour atteindre la zone de réduction des sulfates ( $SO4^{2-}$ ; ~1m).

La méthanogénèse microbienne constitue le dernier stade de dégradation (*Froelich et al., 1979*) à environ 10 m de profondeur. Les bactéries archées sulfato-réductrices dégradent les éléments monomères en utilisant les molécules de carbone et d'hydrogène pour produire du méthane par réduction du  $CO_2$  en milieu marin (*Équation 2 - Whiticar et al., 1986; Floodgate et Judd, 1992*).

#### $CO_2 + 4 H_2 \rightarrow CH_4 + 2 H_2O$

Équation 2 : Processus de production de méthane par réduction du CO<sub>2</sub>.

La production de méthane par diagenèse dans les lacs ou les rivières (eau douce) se produit par réduction acétique (*Équation 3*) :

#### $CH_3COOH \rightarrow CH_4 + CO_2$ .

#### Équation 3 : Processus de production de méthane par réduction acétique.

Le procédé de fermentation bactérienne génère exclusivement des hydrocarbures légers, tels que le méthane, dont le pourcentage est classiquement supérieur à 99,9% (*Floodgate et Judd, 1992*). La génération de méthane par diagenèse intervient de manière précoce dans l'histoire de

l'enfouissement sédimentaire. L'activité bactérienne varie en fonction de la température, mais elle est maximale entre 20 °C et 45 °C et est contrainte aux 600, voire 1000 premiers mètres sous le fond de mer (Fig. I-1b). Au cours de l'enfouissement, la teneur en sulfates diminue et lorsqu'elle devient trop faible, les bactéries sulfato-réductrices ne peuvent plus agir, ce qui met un terme à la production de méthane d'origine « biogénique ».

#### I.2.2. Catagenèse

La production d'hydrocarbures thermogéniques se produit par « catagenèse », défini comme un processus de craquage de la matière organique sous l'effet l'augmentation de la pression et de la température, cours de l'enfouissement des sédiments (dégradation au thermique). Le craquage thermique consiste à casser les longues chaînes moléculaires constituant le kérogène initial pour produire des éléments de plus en plus petits et légers (Équation 4). Par exemple, une molécule d'heptane rompue produit deux molécules de propane. Ces réactions de séparation nécessitent cependant un apport en hydrogène ( $H^{+}$ ) qui n'est pas toujours disponible (Équation 4), c'est la raison pour laquelle la production d'hydrocarbures par catagenèse peut également être associée à la mise en place de doubles liaisons *C*-*C* ou à la formation de chaînes cycliques.

$$C_{8}H_{18} \rightarrow 2 C_{4}H_{10}$$
 |  $C_{2n}H_{4n+2} + H_{2} \rightarrow 2 C_{n}H_{2n+2}$ 

Équation 4 : Exemples de réactions de séparation de chaînes de molécules hydrocarbonées par catagenèse.

Ces réactions thermocatalytiques sont associées à la production d'une variété plus importante d'hydrocarbures depuis les chaînes hydrocarbonées les plus légères ( $C_1$  - méthane), jusqu'aux plus lourdes ( $C_{15+}$ ). Les premiers produits de la catagenèse issus du craquage primaire correspondent à de longues chaînes carbonées (les pétroles) constituant des hydrocarbures de forte densité et de forte viscosité (Fig. I-1b). L'intensité du craquage thermique augmente au cours de l'enfouissement et génère des molécules de plus en plus légères et de plus en plus mobiles à travers les sédiments (Fig. I-1b).

Les températures nécessaires à la production d'hydrocarbures thermogéniques sont comprises entre 80° et 120 °C, ces réactions interviennent alors lors d'un stade d'enfouissement plus tardif. Les profondeurs nécessaires varie en fonction du gradient géothermique, qui dépend fortement des contextes géologiques avec des valeurs comprises entre 15 °C\*km<sup>-1</sup>, jusqu'à 100 °C\*km<sup>-1</sup> pour les bassins de type rift. La valeur de 30 °C\*km<sup>-1</sup> est une valeur de référence au niveau des marges continentales en milieu marin (*Judd et Hovland, 2009*). Les hydrocarbures lourds sont générés dans

une « fenêtre à huile » à des profondeurs classiquement comprises entre 600 m et 5000 m. Ces réactions atteignent un maximum pour des valeurs d'enfouissement sédimentaire situées aux alentours de 2500 m (Fig. I-1b). A partir de cette profondeur, la quantité d'hydrocarbures lourds générés (pétrole et condensats de gaz) décroît progressivement.

#### I.2.3. Méthanogénèse

Aux environs de 3000 m de profondeur, sous l'action d'un craquage thermique intense, les niveaux sédimentaires quittent la « fenêtre à huile » pour rentrer dans la « fenêtre à gaz » où sont produits des hydrocarbures plus légers (Fig. I-1b). La zone intermédiaire génère des « condensats » qui sont constitués d'un mélange de composés intermédiaires entre les hydrocarbures lourds et gazeux. La partie superficielle de la «fenêtre à gaz » produit un mélange d'hydrocarbures légers avec une faible proportion d'hydrocarbures lourds. Le craquage thermique produit ensuite des gaz « humides » ( $C_{2-}C_{5}$ ), caractéristiques du processus thermogénique, puis le gaz « sec » composé de méthane ( $C_{1}$ ), lors du stade terminal. La distinction entre l'origine biogénique ou thermogénique des composés hydrocarbonés est possible par l'évaluation de la proportion en gaz  $C_{2+}$ , classiquement supérieure à 5% pour les gaz « humides ». Cette valeur est inférieure à 5% pour les « gaz secs » (*Floodgate et Judd, 1992*). Lorsque les températures deviennent trop importantes (>200 °C), le milieu devient stérile à toute production d'hydrocarbures.

#### I.2.4. Les différents types de roches mères

Les roches mères sont définies comme des roches présentant une forte quantité de matière organique. Elles constituent les niveaux à partir desquels vont être générés les hydrocarbures. La matière organique présente dans les sédiments est différente en fonction des environnements de dépôts, ce qui aura une incidence sur le type de kérogène produit. Cette différence influe sur les conditions de températures et de pression nécessaire au craquage thermique, ce qui aura des implications directes sur le potentiel de génération en hydrocarbures selon les types de kérogènes (*Van Krevelen, 1984*). L'origine du kérogène peut être estimée à partir des ratios atomiques (H/C) et (O/C). On distingue trois types principaux de roches mères (Fig. I-2) :

**<u>Type I :</u>** Le type I est associé à des environnements de dépôts lacustres (kérogène sapropélique) dont la matière organique est majoritairement constituée d'algues. Le kérogène de type I est particulièrement intéressant d'un point de vue pétrolier car la quantité d'hydrocarbures générée est potentiellement importante. De plus, l'énergie nécessaire au craquage thermique de ce kérogène étant plus faible, ce type de kérogène est très enclin à produire des hydrocarbures lourds (Fig. I-2).

**<u>Type II :</u>** Le type II correspond à des environnements de dépôts sédimentaires marins (kérogène planctonique). La matière organique présente dans les sédiments est constituée de plancton d'origine animale ou végétale. Le potentiel à hydrocarbure de ce type de roche est modéré et est enclin à produire majoritairement des hydrocarbures lourds, mais également du gaz (Fig. I-2).

**Type III :** Le type III est caractéristique des environnements de dépôts sédimentaires terrestres terrigènes (kérogène humique) dont la matière organique est constituée de plantes terrestres. Le potentiel à hydrocarbure est relativement faible et plutôt enclin à produire du gaz (Fig. I-2).



Fig. I-2: Diagramme de Van Krevelen (1984) replaçant les trois types de kérogènes principaux en fonction de leurs rapports atomiques (H/C) et (O/C). Évolution des rapports atomiques au cours de l'enfouissement sédimentaire.

### I.3. Migration des hydrocarbures

#### I.3.1. Migration primaire

La migration primaire des hydrocarbures correspond à leur mobilisation depuis la roche mère. Ce mécanisme de migration est associé à l'augmentation progressive de la pression sous l'effet de la surcharge sédimentaire au niveau des marges continentales. Les fluides contenus dans les pores étant mobiles et parfois à l'origine de surpressions, ils sont expulsés vers des niveaux plus superficiels. Le changement de phase des hydrocarbures lors du craquage thermique joue un rôle non-négligeable sur la mobilité des hydrocarbures et leur capacité à remonter vers les plus séries plus récentes.

#### I.3.2. Migration secondaire

La migration secondaire correspond à la mobilisation des hydrocarbures vers un drain perméable, soit le long des drains stratigraphiques ou le long des failles. Les hydrocarbures migrent depuis les niveaux de roches mères vers des niveaux présentant une porosité plus importante, plus propices à accueillir les hydrocarbures. Ces roches poreuses sont généralement qualifiées de roche réservoirs. Le piégeage des hydrocarbures nécessite la présence d'une roche couverture imperméable, ainsi qu'un piège structural, qui va stopper la migration des hydrocarbures dans les sédiments. Une large proportion des hydrocarbures demeure piégée au sein de la roche mère (Fig. I-3).

#### I.3.3. Dysmigration

Lorsqu'aucun niveau imperméable n'est présent au-dessus du niveau de roche réservoir, ou lorsque l'intervalle est affecté par une fracturation importante, la migration des hydrocarbures se poursuit vers les niveaux plus récents et parfois jusqu'à la surface (*MacGregor, 1993*). Les fluides sont alors libérés dans l'atmosphère dans le cas de bassins émergés et dans la colonne d'eau pour les bassins immergés.



Fig. I-3: Illustration de la perte d'hydrocarbures lors des différentes étapes de migration à travers la pile sédimentaire. Représentation de la proportion relative de chaque étape (modifié d'après England, 1994; Nemcok et al., 2009).

Chaque étape de migration est associée à la perte d'une quantité significative d'hydrocarbures, principalement sous l'effet de dispersion des eaux de formations sur les hydrocarbures légers (*MacAuliffe, 1979*) et seule une faible proportion se retrouve dans des accumulations commerciales (~5 %; *Biteau et al., 2003*). La somme de toutes les pertes associées à la migration primaire, secondaire et à la dysmigration représente environ 75 % des hydrocarbures générés (*Nemcok et al., 2009*; Fig. I-3). Même si la proportion d'hydrocarbures atteignant la surface n'est pas dominante, elle estimée entre 15 et 20 %, ce qui reste non-négligeable.

#### I.4. Distribution mondiale des zones de sorties de fluides

Les fluides expulsés depuis les formations sédimentaires vers la surface sont qualifiés de suintements froids (*cold seeps* ; T <40 °C), en opposition aux échappements de fluides hydrothermaux le long des rides médio-océaniques (*Ballard, 1997; Marcon, 2013*) et pour lesquels la température est plus importante (~400 °C). Bien que présentant des flux moins importants (*Talukder, 2012*), le terme de suintement froid peut impliquer des sorties de fluides très différents, tels que des hydrocarbures, de l'eau ou des sédiments liquéfiés. Les expulsions naturelles de fluides « froids » ont été observées au niveau de la majorité des marges continentales (Fig. I-4).

Dans le cas de marges actives (marqueurs oranges ; Fig. I-4), les fluides interstitiels sont expulsés depuis les écailles des prismes d'accrétion en réponse à la compression latérale induisant de fortes surpressions (*Suess, 2014*). Dans le cas de marges en érosion, les sédiments et les fluides piégés dans les formations sédimentaires peuvent remonter le long des niveaux de décollement où à travers la plaque supérieure par les réseaux de failles profondes (*Suess, 2014*).

La majorité des zones de suintements froids se localisent au niveau des marges passives et se distribuent depuis les zones les plus côtières jusqu'aux plaines abyssales (marqueurs jaunes ; Fig. I-4). Dans ces contextes, l'origine de l'expulsion des fluides est plutôt en lien avec des éléments de l'évolution du bassin tels que la surcharge sédimentaire, la compaction différentielle, les surpressions ou les changement de faciès (*Gay et al., 2007; Suess, 2014*). Les marges continentales « grasses » présentent des taux de sédimentation suffisamment élevés pour permettre l'enfouissement de la matière organique et le développement de défauts de compaction, potentiellement responsables de la remobilisation des fluides vers la surface.


Fig. I-4 : Répartition des suintements froids à l'échelle mondiale. Compilation d'après De Batist et al. (2002), Cifci et al. (2003), Judd (2003), Nakajima et al. (2003), Loncke et al. (2004), Sumida et al. (2004), Acosta et al. (2005), Marinaro et al. (2006), Pilcher et Argent (2007), Dupré et al. (2007), Sultan et al. (2007), Leon et al. (2009), Moss et al. (2010), Naudts et al. (2010). La carte bathymétrique est issue de la base de données Gebco.

## II. Marqueurs de migration de fluides

Lors de la remontée des fluides, ces deniers interagissent avec l'encaissant sédimentaire, ce qui génère des perturbations, à la fois sur le fond de mer, mais également dans les sédiments.

## II.1. Carbonates authigènes

## II.1.1. Réduction des sulfates en milieu aqueux

Les sulfates ( $SO_4^{2-}$ ) sont présents en abondance dans les océans (~28 mMol.l<sup>-1</sup>). Leur l'origine est principalement contrôlée par les apports fluviatiles. Présents dans l'ensemble de la colonne d'eau, les sulfates se diffusent également au niveau des sédiments les plus superficiels et sont réduits en conditions anaérobiques en présence d'hydrogène (*Équation 5*; *Ivanov et al., 1989*).

#### $2R (CH_2O) + SO_4^{2-} \rightarrow H_2S + 2HCO_3^{-} + 2R$

#### Équation 5 : Principe de réduction des sulfates.

Dans cette équation, **R** correspond à une proportion de résidus organiques qui demeureraient non métabolisés, mais qui peuvent être préservés et enregistrés dans les séries sédimentaires.

Dans les cas de zones de suintements d'hydrocarbures actifs, le carbone est présent en grande quantité de par la nature des composants émis ( $C_nH_{2n+2}$ ). Dans les milieux anaérobiques, le sulfate est alors réduit grâce à l'action des bactéries anaérobies de type archéobactéries procaryotes (micro-organismes unicellulaires), ce qui s'accompagne de la consommation d'hydrocarbures tels que le méthane. Cette consommation se produit par l'oxydation anaérobique du méthane (AOM : Anaerobic oxydation of Methane) (e.g. Ivanov et al., 1989; Hovland et Judd, 1988; Hovland et Irwin, 1992; Judd et Hovland, 2009). Le produit de cette réaction est composé de sulfure d'hydrogène, d'eau et d'ions hydrocarbonates  $HCO_3^-$  (Équation 6).

#### AOM: $CH_4 + SO_4^{2-} \rightarrow HCO_3^{-} + HS^{-} + H_2O$

#### Équation 6 : Oxydation anaérobique du méthane.

Les carbonates authigènes résultent de l'interaction entre les sulfates naturellement présents dans les sédiments marins de la proche surface et les hydrocarbures. En présence de calcium, l'ion  $HCO_3^-$  précipite en carbonate de calcium  $CaCO_3$  in situ (Équation 7).

$$Ca^+ + HCO_3^- \rightarrow CaCO_3$$

#### Équation 7 : Concrétion de carbonates authigènes.

La présence de carbonates authigènes témoigne de la présence de méthane à proximité de la surface et peut être utilisée pour identifier les zones de migration de méthane vers la surface. Une fois formés, les carbonates forment une barrière imperméable au passage des hydrocarbures (*Hovland, 2002*). Ce mécanisme est considéré comme étant à l'origine du déplacement latéral des zones de sorties actives de fluides en fond de mer (*Naudts et al., 2006; Römer et al., 2012; Gay et al., 2006*).

#### II.1.2. Zone de transition sulfate-méthane

La présence de sulfates est associée à la présence d'eau interstitielle, l'expulsion progressive de cette eau lors de l'application d'une surcharge sédimentaire se traduit par un appauvrissement progressif de la teneur en sulfates. La quantité de sulfates présents dans les sédiments décroît progressivement avec l'augmentation de la profondeur. L'oxydation anaérobique du méthane intervient donc majoritairement au niveau des sédiments superficiels, classiquement sous quelques mètres de profondeurs (*Claypool et Kaplan, 1974*). Dans le cas de sorties actives de méthane vers le fond de mer, la limite à l'équilibre entre la zone de sédiments réduits et la zone de présence du méthane détermine la Zone de Transition Sulfate-Méthane (*Sulfate Méthane Transition Zone -* SMTZ). Au-dessus de cette interface, la quantité de sulfates augmente en se rapprochant du fond de mer. En dessous de cette limite, la quantité de méthane augmente progressivement (Fig. I-5).



Fig. 1-5: a. Diagramme conceptuel montrant la relation entre les sulfates et le méthane ainsi que la zone de concrétion de carbonates authigènes issus de l'oxydation anaérobique du méthane à l'interface entre ces deux composés. b. Illustration de la variation de profondeur de l'interface Sulfate-Méthane en fonction de la quantité de flux de méthane depuis les zones de suintements d'hydrocarbures naturels (modifié d'après Paull et Ussler, 2008).

La profondeur de cette zone de transition est contrôlée par la quantité de méthane ascendant (Fig. I-5). Plus cette quantité est importante, plus la profondeur de la SMTZ dans les sédiments est faible et plus l'AOM se produit proche du fond de mer. Les flux de méthane élevés sont également associés à une augmentation de la production de carbonates authigènes (*Paull et Ussler, 2008*). La profondeur de la SMTZ a été reportée avec une forte variabilité, généralement dans les niveaux superficiels (~10 m) mais localement reportée à des niveaux plus profonds (~200 m ; *Wellsbury et al., 2002; Borowski et al., 1999; Paull and Ussler, 2008*). Dans le cas d'un flux de méthane très important, la production de carbonates intervient au niveau du fond de mer sous la forme de larges dalles affleurantes (*Bayon et al., 2009; Naudts et al., 2010; Römer et al., 2012*).

D'une manière générale, la profondeur maximale de la SMTZ augmente avec la profondeur d'eau (Fig. I-6; *Borowski et al., 1999*) car la vitesse de déplétion en sulfates d'un milieu est contrôlée en partie par le taux de sédimentation (*Lyons and Gaudette, 1979*):

- En domaine peu profond, la profondeur de la SMTZ se situe à quelques centimètres sous le fond de mer avec un fort gradient de concentration en sulfates.
- Au niveau du plateau continental, la profondeur de la SMTZ augmente avec la profondeur d'eau, mais reste globalement à des profondeurs inférieures à 10 m sous le fond de mer.
- En domaine profond, la profondeur de la SMTZ augmente significativement avec des valeurs reportées à 200 m sous le fond de mer.
- Au niveau de la plaine abyssale, la SMTZ disparait pour faire place à une décroissance progressive de la quantité de sulfates avec la profondeur. Cette décroissance peut se poursuivre jusqu'à plusieurs centaines de mètres sous le fond de mer.



Fig. I-6: Profil de concentration en sulfates depuis le plateau continental jusqu'à la plaine abyssale (modifié d'après Borowski et al., 1999). SMI: Sulphate Methane Interface.

## II.2. Hydrates de gaz

#### II.2.1. Principe de formation et conditions de stabilité

Les hydrates de gaz (ou clathrates ; *Davy, 1811*) correspondent à la modification de l'état physique des molécules d'eau ( $H_2\theta$ ) qui cristallisent sous la forme d'une matrice rigide de glace. Cette transformation ne se produit qu'en présence de gaz, les matrices agissent alors comme des pièges pour le gaz présent. La formation d'hydrates s'accompagne de la transformation de l'état physique du méthane gazeux avec une diminution importante de son volume moléculaire. Les hydrates de méthane peuvent accueillir **164 fois** leur volume en méthane (*Koh and Sloan, 2007*), ce qui représente un ratio considérable et donc une capacité d'accueil conséquente. Les hydrates peuvent prendre des formes moléculaires différentes, leur permettant ainsi d'accueillir des molécules avec des dimensions plus ou moins importantes (Fig. I-7a). On retrouve trois structures principales d'hydrates (Fig. I-7.a) :

- Structure I
- Structure II
- Structure H

La structure I est la plus petite et la plus commune. Elle peut accueillir des molécules hydrocarbonées légères, depuis le méthane ( $CH_4$ ) jusqu'au propane ( $C_3H_8$ ). En revanche, les structures II et H sont de plus grandes dimensions, ce qui leur permet d'accueillir des molécules de plus grande taille, tels que les hydrocarbures cycliques (Fig. I-7.a).

Les hydrates ne sont stables qu'au sein d'une fenêtre restreinte qui est principalement fonction de la pression et de la température (Fig. I-7b) et correspond à la Zone de Stabilité des Hydrates de Gaz (ZSHG). Deux contextes très différents sont propices à la formation d'hydrates ; (i) en domaine océanique profond et (ii) dans les régions polaires où les faibles températures sont propices à leur développement.

Dans les sédiments marins, l'intersection de la limite de phase du gradient thermique de l'eau et du gradient géothermique (~30 °C.km<sup>-1</sup>) délimite la zone de stabilité des hydrates de gaz (Fig. I-7.b). Les hydrates se forment dans des conditions de haute pression et de faible température, typiquement inférieure à 25 °C et pour des pressions supérieures à 60 bars (*Sloan, 2003 -* Fig. I-7.b). Leur profondeur de stabilité dans les sédiments varie en fonction des latitudes et de la température, mais ces conditions se trouvent généralement après la rupture de pente du plateau continental. Dans une moindre mesure, la salinité et la concentration en gaz peuvent faire varier ces conditions de stabilité (*Sloan 2003; Qi et al., 2012; Chong et al., 2015*). La concentration en gaz doit être au moins

100 fois supérieure à la solubilité du méthane dans les sédiments (*Bohrman et Torres, 2006*). Le taux de saturation en méthane, dépendant de la lithologie (porosité, perméabilité) influe la formation des hydrates en limitant le volume de méthane potentiellement piégé par les hydrates.

L'addition de gaz plus lourds tels que l'éthane ( $C_2H_6$ ), le propane ( $C_3H_8$ ) ou le butane ( $C_4H_{10}$ ) se traduit par un approfondissement de la base de stabilité des hydrates en raison du déplacement de la courbe de limite de phase vers des températures plus élevées (*Sloan, 1990*). La stabilité des hydrates de gaz est également conditionnée par une alimentation contemporaine du système en hydrocarbures depuis le soubassement. Dans le cas d'un arrêt de l'approvisionnement en méthane, les hydrates se dissocient naturellement. La présence d'hydrates atteste donc de la migration contemporaine de gaz vers le fond de mer.



Fig. 1-7 : Les hydrates de gaz. a. Illustration des trois structures moléculaires (Source : Heriot Watt institue of petroleum engineering ; Sloan, 2003). b. Conditions de stabilité des hydrates de gaz en fonction de la pression et de la température dans les sédiments marins et dans la colonne d'eau (e.g. Jadhawar et al., 2006). c. Illustration de l'accroissement de l'épaisseur de l'intervalle de stabilité des hydrates avec l'augmentation de la profondeur d'eau (modifié d'après Kvenvolden et Barnard, 1983). d. Effet des hydrates sur l'imagerie

# sismique. Le gaz piégé sous le niveau à hydrates fait considérablement diminuer la vitesse des ondes de propagation (Vp - d'après Haacke et al., 2007).

En domaine marin, l'épaisseur de la zone de stabilité des hydrates dans les sédiments croît progressivement avec l'augmentation de la profondeur d'eau (Fig. I-7.c). La SMTZ constitue la frontière supérieure pour la formation des hydrates (*Borowski et al., 1999*). Au-dessus de cette interface, la présence en méthane devient très faible car il est consommé par les bactéries sulfato-réductrices. Lorsque les apports de méthane sont conséquents, la zone d'interface entre les sulfates et le méthane atteint le fond de mer, ce qui génère des nodules ou monticules d'hydrates ("*Hydrate Pingoes*"; *Hovland et Svenssen, 2006*) ainsi que des dalles continues d'hydrates sur le fond de mer (*Sassen et al., 2001*). Dans la colonne d'eau, la profondeur d'eau minimum nécessaire à la stabilité des hydrates varie en fonction de la salinité et de la température de surface, mais est globalement de 380 mètres dans l'eau douce à 4 °C et de 430 mètres dans l'eau de mer (*Dholabhai et al., 1991; Sloan et Koh, 2008*).

#### II.2.2. Signature géophysique

La présence d'hydrates dans les sédiments au sein de la ZSHG augmente les vitesses de propagation acoustique et produit une anomalie d'impédance (produit de la vitesse de propagation par la masse volumique) positive dans les sédiments. Il est estimé que pour une occupation de 15 à 20% des pores des sédiments par les hydrates, la vitesse de propagation augmente de 7 à 10% (*Spence et al., 1995*).

Lorsque l'apport en gaz excède le taux de saturation des sédiments, le surplus en gaz reste piégé sous la Base de Stabilité des Hydrates de Gaz (BSHG) qui constitue une barrière plus ou moins imperméable pour la migration des hydrocarbures vers la surface. Sous la BSHG, la présence de gaz est associée à la diminution de la vitesse de propagation des ondes acoustiques. L'interface entre (i) la ZSHG correspondant à une anomalie d'impédance positive et (ii) la zone chargée en gaz sous jacente de faible impédance génère une diminution de vitesse de propagation des ondes acoustiques. Dans des conditions normales, cette vitesse augmente avec l'enfouissement à cause de la compaction et donc de l'augmentation de la densité des sédiments. Cette diminution de vitesse crée un contraste d'impédance négatif sur les données de géophysique marine qui se traduit par l'apparition d'un réflecteur à polarité négative au niveau de la BSHG (Fig. I-7d). La profondeur du fond de mer conditionnant la position de ce réflecteur, ce deuxième mime généralement le premier en l'absence d'anomalie de température. On parle ainsi de réflecteur imitant le fond de mer (BSR *: Bottom Simulating Reflector*) comme un réflecteur à polarité négative simulant le fond de mer.

## II.2.3. BSR-multiples

L'observation de plusieurs BSR superposés a été mise en évidence dans plusieurs régions dans le monde, que ce soit en Mer Noire (*Popescu et al., 2006*), en Papouasie-Nouvelle-Guinée (*Huuse et al., 2014*), au niveau des côtes japonaises (*Foucher et al., 2002*) ou dans la mer du Nord (*Posewang et Mienert, 1999*). L'observation de BSR multiples se limite à un nombre restreint d'études (Fig. I-8) et leur interprétation est encore fortement controversée. Plusieurs hypothèses sont avancées pour expliquer l'origine du second réflecteur sismique :

- La première hypothèse concerne la transformation de la silice (*SiO*<sub>2</sub>), initialement sous sa forme d'Opale-A (silice biogénique) vers une forme microcristalline, l'Opale-CT (Cristobalite et Tridymite) qui est stable à des températures plus importantes. Cette recristallisation dépendant de la température, la signature géophysique associée à ce front de transformation se produit sous la forme d'un réflecteur continu, parallèle au fond de mer (*Davies and Cartwright, 2002; Lee et al., 2003; Berndt et al., 2004; Carthwright et al., 2003; Davies et Carthwright, 2007*).
- Une relique ou des résidus de la position d'un ancien BSR peut également être envisagée pour expliquer la présence d'un second BSR. La variation de la base de stabilité des hydrates liée à une variation de P-T (variation du niveau marin ou changements de contextes environnementaux par exemple) peut faire varier la position de la BSHG. Au large l'Oregon (*Hydrate Ridge;* côte Ouest des États-Unis), la position du second BSR à polarité négative correspond à la position passée du BSR lors du dernier maximum glaciaire (18 000 ans) dont la signature géophysique passée est préservée au sein d'une ZSHG à présent plus importante (*Bangs et al., 2005*).
- La composition en gaz peut modifier les conditions thermodynamiques de stabilité des hydrates. L'ajout d'une proportion d'hydrocarbures gazeux plus lourds augmente la profondeur de la BSHG. La différence de composition en gaz entre le premier BSR (Structure I ; 100% méthane) et le deuxième (composé en partie de gaz plus lourds et associé aux structures d'hydrates II et H) crée des profondeurs de stabilité différentes. La formation d'un BSR double pourrait s'expliquer d'après cette différence de composition (*Andreassen et al., 2000; Macmahon et al., 2014; Pecher et al., 2014*) et témoigner de la coexistence de gaz légers et d'hydrocarbures gazeux plus lourds.



Fig. I-8: Compilation de profils de sismique réflexion illustrant la présence de plusieurs niveaux de BSR dans les séries sédimentaires. Compilé d'après Pospescu et al. (2007) en Mer Noire, Andreassen et al. (2000) dans la Mer du Nord, Foucher et al. (2012) et Macmahon et al. (2014) au Japon, Bangs et al. (2005) aux USA, Huuse et al. (2014) en Papouasie-Nouvelle-Guinée, Cullen et al. (2008) au niveau de la marge écossaise.

## II.3. Communautés de vies sous marines

Les zones d'émanations naturelles d'hydrocarbures constituent des environnements privilégiés pour le développement de la vie dans les conditions extrêmes. Il en résulte le développement de communautés de vie sous-marine sont méthanophages, qui consomment une partie des résidus du méthane lorsqu'il parvient en fond de mer (*Boetius et Wenkhöfer, 2013; Khripounoff et al., 2015*). Ces zones d'expulsion de fluide sont le siège d'une oasis de vie abondante (*Van dover et al., 2002; Lessard-Pillon et al., 2010*) avec une diversité d'espèces benthiques très importante en comparaison des fonds environnants (*Cordes et al., 2007*). On retrouve classiquement des Vesicomyidae, des moules, crevettes, tubes de

vers (*MacDonald et al., 1989; Vrijenhoek et al., 1994; Macdonald et al., 1996; Ondreas et al., 2005; Olu et al., 2007; Van Geaver et al., 2009; Olu et al., 2010*) et des vertébrés de plus grande taille (*Le Guilloux et al., 2009*). La proportion de méthane potentiellement absorbée par les communautés benthiques est naturellement fonction du flux d'hydrocarbures et de l'abondance des individus in-situ, mais il est estimé à environ 20 % (*Boethius et al., 2013*). L'identification de communautés de vie extrêmes constitue un indicateur de sorties actives depuis le fond de mer.

Les communautés de vie sous-marines associées aux sites de déversements d'hydrocarbures lourds peuvent être excessivement abondantes et diversifiées (Macdonald et al., 1996; Jones et al., 2014). On y retrouve des organismes communs aux sites d'émanations de méthane, chimio et/ou non chimio-synthétiques, tels que les tubes de vers vestimentifères, des moules et coques (MacDonald et al., 2004; Weiland et al., 2008). On retrouve également crabes, crevettes et poulpes aux environs des sites d'émanations d'hydrocarbures lourds. Certains coraux mous (MacDonald et al., 2004) ou gorgoniens (Alcyonacés) peuvent s'accrocher aux composés hydrocarbonés déposés en fond de mer (Weiland et al., 2008; Williamson et al., 2008). Les communautés de vie des sites d'émanation d'hydrocarbures lourds du bassin de Santa Barbara se rapprochent de celles des récifs rocheux, accueillant des espèces tels que des anémones, crinoïdes, langoustes et diverses espèces de poissons (Valentine et al., 2010).

#### II.4. Pockmarks

#### II.4.1. Définition

Les pockmarks sont définis comme l'expression d'un flux focalisé de fluides, générant des dépressions en fond de mer (*King et MacLean, 1970*). La géométrie des pockmarks est généralement circulaire et symétrique, mais elle peut fortement varier (*Hovland 1981; Hovland et al., 1984; Hovland et Judd, 1988; Hovland, 2010; Andresen et Huuse, 2011; Andresen, 2012*). Leur dimensions varie en fonction du flux de fluides et des propriété des sédiments hôtes (*Roberts et al., 2006*), avec des diamètres de dépression pouvant atteindre l'échelle kilométrique (*Pilcher et Argent, 2009*, voir Regab pockmark au large du Gabon ; *Charlou et al., 2004; Ondreas et al., 2005; Gay et al., 2006a; Marcon et al., 2014*) et des profondeurs de plus de 100 m (*Pilcher et Argent, 2009*). Les pockmarks se retrouvent généralement dans des environnements où l'encaissant sédimentaire est suffisamment meuble pour être déformé et/ou fluidisé au passage des fluides, classiquement dans des sédiments fins. Depuis les premières découvertes de figures d'échappements de fluides en fond de mer au large des côtes écossaises (*King et MacLean, 1970*), le nombre de pockmarks découverts n'a cessé d'augmenter

en parallèle avec les propositions de modèles associé à leur genèse. La localisation des pockmarks est généralement liée à l'exutoire de drains propices à la migration des fluides, pouvant correspondre à (i) des failles (*Papatheodorou et al., 1993; Cartwright et al., 2004; Plaza-Faverola et al., 2015; Mohammedyasin et al., 2016*) et (ii) des corps sableux (chenaux; *Gay et al., 2006b* ou injectites; *Davies et al., 2006*).

#### II.4.2. Modèles de genèse

#### a. Modèle de Josenhans et al. (1978)

Le modèle de *Josenhans et al. (1978)* représente la première description interprétative de la formation des pockmarks. Ce modèle propose un mode de genèse par modification des courants de fond en relation avec les flux de fluides expulsés, au droit des zones de sorties du fond de mer (Fig. I-9a). Ce schéma implique la modification de l'action d'un courant latéral en fond de mer au droit des zones de sorties de fluides puis par une augmentation de la vitesse dans la dépression se traduisant par l'érosion des flancs.

#### b. Modèle de Hovland et Judd (1988)

Le modèle de *Hovland et Judd (1988)* fait intervenir un scénario instantané pour la formation de ces dépressions (Fig. I-9b). La création d'une poche de gaz à proximité du fond de mer augmente la pression de pore et crée un bombement dans l'intervalle encaissant qui se répercute jusqu'en fond de mer. Lorsque la pression de pore devient critique, le gaz piégé établit une route pour migrer jusqu'au fond marin et être libéré dans la colonne d'eau. Les sédiments expulsés se retrouvent alors sous forme d'un nuage de particules pouvant retomber sur le fond de mer dans les zones périphériques du pockmark (Fig. I-9b<sub>3</sub>). Le chemin de migration de fluides précédemment créé peut alors être réutilisé comme conduit pour d'ultérieurs échappements de fluides (Fig. I-9b<sub>4</sub>).

#### c. Modèle de Gay et al. (2002)

Le modèle de *Gay et al., (2002)* suggère une formation lente issue de l'interaction entre le processus d'expulsion fluide et le taux de sédimentation (Fig. I-9c). Dans ce modèle, le taux de sédimentation au sein des pockmarks est nettement plus faible qu'à l'extérieur de la pente en raison du flux ascendant de fluides (Fig. I-9c). Cela laisse supposer que la quantité de sédiments déposée par unité de temps est plus faible au sein du pockmark. La dépression du pockmark se construit progressivement au cours du temps grâce au différentiel de sédimentation.

## a. Modele de Josenhans et al. (1978)



## b. Modele de Hovland et Judd (1988)



c. Modele de Gay et al. (2002)



d. Modele de Sultan et al. (2010)



Fig. I-9: (page précédente) Modèles conceptuels de genèse des pockmarks. a. Modèle de genèse d'un pockmark d'après Josenhans et al. (1978), par modification des courants de fond. b. Modèle de Hovland et Judd (1988) par éruption spontanée des fluides. c. Modèle de formation par non-sédimentation, d'après Gay et al. (2002). d. Modèle de formation de Sultan et al. (2010) par dissociation/ dissolution des hydrates de gaz.

#### d. Modèle de formation des pockmark à hydrates de Sultan et al. (2010)

En milieu profond, *Sultan et al. (2010)* proposent que la déstabilisation des hydrates de gaz en raison des modifications des conditions d'alimentation en gaz puisse être à l'origine de la formation de pockmarks (Fig. I-9d). Dans ce scénario, la migration et l'accumulation de gaz vers la surface conduit à la formation d'hydrates de gaz. La dissolution des hydrates s'initie en lien avec la diminution, voire l'interruption du flux de méthane lorsqu'il devient insuffisant pour préserver les hydrates. Une dépression à fond plat, peu profonde, se forme alors au niveau du fond de mer par effondrement de la partie basale du nodule d'hydrates qui s'approfondit au cours de la dissociation des hydrates. Ce type de pockmark atteste de l'arrêt de l'approvisionnement du système en gaz et d'une déstabilisation/dissolution des hydrates de gaz dans un système qui n'est plus à l'équilibre. Contrairement aux autres types de pockmarks, celui-ci est un marqueur de l'arrêt du fonctionnement des échappements d'hydrocarbures vers la surface. Les variations climato-eustatiques sont également considérées comme étant potentiellement à l'origine de la formation de ces pockmarks de par modifications des environnementales (*Riboulot et al., 2016*). La présence de pockmarks à hydrates sur les données de géophysiques de subsurface apparaît comme des marqueurs enfouis de changements d'apports en gaz ou des conditions environnementales passées (*Imbert et Ho, 2012*).

## II.4.3. Différentes terminologies

La reconnaissance des pockmarks dans divers contextes a mené à la définition d'un nombre sans cesse grandissant de terminologies pour les pockmarks en fonction de leurs morphologies. En fonction du contexte structural, de l'environnement sédimentaire, des conditions hydrographiques et du mécanisme de formation, les pockmarks montrent des dimensions et des morphologies très variables (Fig. I-10). La différenciation terminologique implique différents facteurs :

- <u>Un contrôle structural</u>: les « pockmarks alignés » ("*Lined-up pockmarks*"; *Andresen et al.,* 2011) sont associés à la migration préférentielle des fluides au niveau de la zone de flexure maximale des mini-bassins intra-salifères, le long d'axes synclinaux.
- <u>Un environnement hydro-sédimentaire :</u> la prédominance de certains courants peut mener à la formation de « **pockmarks allongés** » ("*Elongated pockmarks*" ; *Andresen et Clausen, 2008*).

La direction d'allongement de la dépression est parallèle à la direction du courant. L'érosion peut à la fois se produire au niveau du flanc amont du pockmark grâce à l'action de « volutes » (retro-courant) et au niveau du flanc aval à cause de l'accélération du flux associé à la zone dépressionnaire.

- <u>Un mécanisme</u>: la dissociation/dissolution des hydrates induit généralement des dépressions avec un fond aplati créant des « pockmarks irréguliers » ("*Irregular pockmarks*"; *Sultan et al., 2010*; Fig. I-10), également classifiés en « Type II » (*Riboulot et al., 2016*) en comparaison aux pockmarks classiques de « Type I ».
- <u>Un processus temporel : l</u>es dépressions associées aux expulsions de fluides s'empilent au cours du temps. Une succession verticale de paléo-pockmarks exprimant la pérennité des expulsions de fluides peut être bien exprimée sur les réflecteurs des données de géophysique marine. Sur la sismique 3D, la possibilité de visualiser des données en "tranches" isotemporelles (*Time slice*) permet ainsi de définir des successions verticales de pockmarks, comme les "Bulls-eyed pockmarks" (Andresen et al., 2011; Fig. I-10) observables à travers un empilement sédimentaire de plusieurs centaines de mètres au cœur d'un réseau de failles polygonales.
- <u>Une densité de distribution :</u> les « pockmarks agglutinés » ("*Clustered pockmarks*" ; *Andresen, 2012;* Fig. I-10) correspondent à une agrégation de nombreuses micro-dépressions associés à des pockmarks unitaires ("*Unit-Pockmarks*"; *Hovland et al., 2010; Moss et al., 2012*). Les structures sous-jacentes, le réseau de failles et l'origine des fluides jouent un rôle prépondérant sur la localisation de ces micro-dépressions.
- <u>Une différenciation géométrique</u>: les « pockmarks complexes » ("Complex pockmarks" ; Hovland et al., 2005; Fig. I-10) sont formés par la combinaison d'une dépression centrale et de reliefs positifs en périphérie. Les zones dépressionnaires sont interprétées comme étant le lieu de sorties des fluides et sont massivement constituées de nodules d'hydrates. Les reliefs positifs sont construits de carbonates authigènes agissant comme un frein pour la migration des fluides vers la surface en déviant le flux vers les zones dépressionnaires (Hovland et Svenssen, 2006).

Il est important de noter que la définition de certaines morphologies dépend de la résolution et des fréquences d'acquisition des données, ainsi que et de leur couverture spatiale.



Fig. I-10: Revue des différents pockmarks décrits dans la littérature (compilé d'après Andresen et al., 2011; Andresen et Clausen 2008; Andresen, 2012; Moss et al., 2012; Hovland et al., 2005; Sultan et al., 2007).

## III. Sorties naturelles d'hydrocarbures lourds vers l'hydroatmosphère



## **III.1. Distribution mondiale**



Parallèlement aux émanations de méthane, de nombreuses marges continentales présentent des zones de suintements d'hydrocarbures lourds (Fig. I-11). La présence d'hydrocarbures lourds a été mise en évidence par l'identification de plusieurs témoins, tels que des inclusions d'hydrocarbures indurés au niveau des premiers mètres de sédiments, mais également à la surface de la mer par la détection de nappes d'hydrocarbures (*Dietz et Lafont, 1950*). En particulier, le golfe du Mexique et la mer Caspienne sont connus pour être des zones qui expulsent un volume conséquent d'hydrocarbures vers la surface de la mer (*Zatyagalova et al., 2007 ; Garcia-Pineda et al., 2010, 2015; Asl et al., 2017*).

À l'exception de ces deux zones, les émanations d'hydrocarbures liquides ou lourds se retrouvent de manière sporadique à travers l'ensemble des marges continentales (Fig. I-11).

Indépendamment, les marges continentales ont été classées en trois catégories suivant leur potentiel d'expulsion (*Wilson et al., 1973*). Ce « potentiel de suintement » a été établi d'après la sismicité de la région, de l'estimation de la maturité des roches mères et du contexte géologique (marge passive, compressive, transformante). On distingue les zones à potentiels fort, modéré et faible (Fig. I-12). Les zones à fort potentiel de suintements pétroliers se distribuent le long de la zone de subduction du sud-Alaska, de la marge transformante de San Andreas, de la marge compressive équatorienne, Venezuelienne, ainsi que sur le plateau indonésien.



Fig. I-12: Potentiel mondial d'échappements d'hydrocarbures lourds en fonction des contextes sédimentaires au niveau des marges continentales (modifié d'après Wilson et al., 1973).

## III.2. Processus d'altération des hydrocarbures lourds dans les sédiments

Les asphaltes (ou bitumes) correspondent à des pétroles ultralourds présentant des viscosités importantes. Leur existence est due à l'activité d'un consortium de bactéries, d'archéobactéries et d'eucaryotes (*Hazen et al., 2016*) qui dégradent les composés des hydrocarbures en les oxydant en conditions aérobiques (*MacKenna et Kallio, 1965; Prince et al., 2007*) ou anaérobiques (*Peters et al.,* 

2005; Mishra et al., 2017). En conditions anaérobiques, la dégradation des hydrocarbures se produit par une séquence de réactions dont l'ordre est défini par leur apport énergétique (voir synthèse par Spormann et Widdel, 2000). Ils sont premièrement oxydés par dénitrification ( $NO_3^-$ ) (*Traxler et* Bernard, 1969), puis par ammonification ( $NH_4^+$ ) des nitrates, ensuite par réduction des oxydes de fer ( $Fe(OH)_3$ ). L'oxydation des composants hydrocarbonés lourds se poursuit ensuite par réduction des sulfates ( $SO_4^{2^-}$ ) (Équation 8 : Widdel et Rabus, 2001; Orcutt et al., 2010).

$$C_{16}H_{34} + 12.25 SO_4^{2-} \rightarrow 16 HCO_3^{-} + 12.25 HS^{-} + 3.75 H^{+} + H_2O_3^{-}$$

Équation 8 : Oxydation anaérobique de l'hexadecane par réduction des sulfates.

Le dernier stade de dégradation se produit par méthanogénèse ( $CH_4$ ) dans des environnements déplétés en sulfates. Proche du fond de mer, la dégradation anaérobique des alcanes se produit par l'action des communautés bactériennes méthanogéniques (Équation 9 ; Zengler et al., 1999; Anderson et Lowley, 2000).

#### $C_{16}H_{34} + 11.25 H_2O \rightarrow 12.25 CH_4 + 3.75 HCO_3^- + 3.75 H^+$

Équation 9 : Dégradation des hydrocarbures par méthanogénèse dans les niveaux superficiels (Spormann et Widdel, 2000; Widdel et Rabus, 2001).

Dans les réservoirs enfouis, les zones où les hydrocarbures sont en contact avec l'eau constituent des zones privilégiées pour la biodégradation des hydrocarbures (*Larter et al., 2003, 2006*). La dégradation des hydrocarbures par méthanogénèse (Équation 10) est alors associée à la production d'acides organiques, de dioxyde de carbone ( $CO_2$ ) et de méthane ( $CH_4$ ) :

#### $4 C_{16}H_{34} + 30 H_2O \rightarrow 15 CO_2 + 49 CH_4$

Équation 10 : Dégradation des hydrocarbures par méthanogénèse dans les réservoirs enfouis (Jones et al., 2008).

La biodégradation est associée à une perte de matière et une détérioration de la qualité des pétroles (*Wenger et Isaksen, 2002*). Elle se produit de manière asynchrone et séquentielle en fonction du poids moléculaire des hydrocarbures (Fig. I-13). Ainsi, plus le poids moléculaire des hydrocarbures est important, plus leur altération intervient tardivement. La dégradation moléculaire affecte les types d'hydrocarbures dans l'ordre suivant (*Wenger et Isaksen, 2002; Head et al., 2003; Peters et al., 2007*): (i) les chaînes linéaires telles que les alcanes, (ii) les alcanes dérivés mono ou poly-méthyles, (iii) les résines et asphaltènes, puis (iv) les aromatiques et les bio-marqueurs (hydrocarbures aromatiques polycycliques). La Fig. I-13 présente le degré de dégradation des éléments au cours du temps, en

fonction du poids moléculaire et de la longueur de la chaîne hydrocarbonée. Les éléments subissent en premier une perte mineure de matière dans les premiers stades de dégradation (Fig. I-13), puis une altération avant que la consommation des hydrocarbures ne soit effective et que la perte de masse devienne majeure. Le taux de dégradation varie entre 1 pour des hydrocarbures non dégradés et 10 pour un stade de dégradation maximal (Fig. I-13). Les éléments légers comme les gaz ( $C_1$  à  $C_5$ ) subissent des pertes de matière dans les stades très précoces de la dégradation (taux de biodégradation = 1). Les alcanes légers subissent également des pertes lors d'un stade précoce (taux de biodégradation : 1 à 3), alors que les chaînes plus longues ( $C_{15+}$ ) ne commencent à être dégradées que lors d'un stade plus avancé, voir sévère (taux de biodégradation : 3 à 10).

Le produit final de cette biodégradation séquentielle induit une modification de la teneur des différents composés, en particulier une forte diminution du ratio pétrole/gaz (GOR : *Gas Oil Ratio*) et de la quantité des hydrocarbures saturés (alcanes), mais aussi à une augmentation de l'acidité du milieu, de la proportion en sulfures et de la teneur en composés **NSO** (Fig. I-13; *Head et al., 2003*).

La modification de ces teneurs (ex : la perte en éléments légers de type alcanes) alourdit le mélange au cours de la biodégradation et les hydrocarbures initialement liquides peuvent s'épaissir voir se consolider (*Edwards et al., 1998; Kar, 2006; Hall et al., 2014*). Le niveau de biodégradation peut être estimé à partir de la proportion de chaque élément résiduel. La présence d'asphaltes et de matériaux hydrocarbonés indurés atteste d'une biodégradation importante.

La température maximale de coexistence des bactéries est de 80 °C, ce qui marque la limite des conditions propices à la biodégradation. Cependant, l'activité bactérienne est plus efficace pour des températures plus faibles, globalement entre 0 et 55 °C (*Larter et al., 2006, Hazen et al., 2010*). Elle est maximale vers 20 °C (*Das et Chadran, 2011*) et jusqu'à 40 °C dans les sédiments marins en domaine profond (*Jones et al., 2008; Chen et al., 2014*). Dans le cas de systèmes d'expulsion naturels, l'efficacité de la biodégradation est proportionnelle au flux d'hydrocarbures (*Wenger et Isasken, 2002; Peters et al., 2005*). Ces observations peuvent s'expliquer par le fait qu'il existe probablement un seuil de concentration pour que les communautés bactériennes subsistent.

Dans le cas de suintements naturels, les hydrocarbures se retrouvent dans des environnements sédimentaires saturés en eau lorsqu'ils se rapprochent du fond de mer, ce qui constitue des zones très favorables à la dégradation des hydrocarbures lourds (*Wilkes et al., 2002*).

			Lig	ht oils		Hea	vy oils		
			➤ Major mass loss ~50%			Structural rearrangement/ minor mass loss ~<20%			
Total acid r (mg KOH p	number* ergoil)	0.2	0.5	1.0	1.5	2.0	2.5+		
API gravity (°API)		36	32	31	28	20	5-20		
Gas:oil ratio		0.17		0.12	0.08	0.06	< 0.04		
kg gas per	r kg oil)								
Gas wetness (%)		20		10		5	2		
Sulphur content (wt%)		0.3	0.4	0.5	-	1.0	1.5+		
C15+ satura	ited hydrocarbon	75	70	65	60	50	35		
content (%)			-	Laurdoff	the design deathers				
Scale of Peters and Moldowan		Level of blodegradation							
ref. 34)									
Scale of W	enger <i>et al.</i> (ref. 16)	None	Very slight	Slight	Moderate	Heavy	Severe		
c.c.	Methane‡		-						
01-05	Ethane								
gaoco	Propane						C		
	Isobutane								
	n-Butane								
	Pentanes				1				
	n-Alkanes			-					
CC.	Isoalkanes								
HCs .	Isoprenoid alkanes	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·							
	BTEX aromatics								
	Alkylcyclohexanes						-		
C15-C35	n-Alkanes, isoalkanes								
	Isoprenoid alkanes			1					
nus .	Naphthalenes (C+10)			22					
	Phenanthrenes,						_		
	Chargeonee								
	Chrysenes		-						
	Regular steranes								
	C C hopanes								
C15-C35	Tripromotic storoid		-						
biomarkers	hydrocarbons			1		11 1			
	Monoaromatic steroid hydrocarbons						1		
	Gammacerane			A		A			
	Oleanane			· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	1				
	C <sub>21</sub> -C <sub>22</sub> steranes					1- 1- 1- 1-			
	Tricyclic terpanes								
	Diasteranes								
	Diahopanes								
	25-Norhopanes‡			-					
N†	Alkylcarbazoles								
0*	Carboxylic acids‡	_					_		
* Ref. 14 † Ref. 21	Carboryin addot	M M	inor removal ajor alteration emoval ethane generation a	‡ Produced and de	estroyed during bio	degration			

Fig. I-13: Diagramme schématique des processus physiques et chimiques intervenant lors de la biodégradation des pétroles et du gaz, d'après Wenger et Isaksen (2002), modifié par Head et al. (2003).

## III.3. Structures en fond de mer

La reconnaissance des zones de suintements d'hydrocarbures lourds sur le fond de mer est relativement récente. D'une manière générale et contrairement aux zones de suintements dominés par le gaz, les anomalies de topographies induites par les hydrocarbures (*Hydrocarbon induced topography - Keller et al., 2007*) sont positives, formées par le stockage d'asphaltes, sur le fond de mer (Fig. I-14).

#### III.3.1. "Knolls" du Golfe du Mexique

Le dépôt de ces pétroles indurés sur le fond de mer s'illustre dans le Golfe du Mexique par la présence de monticules ("*knolls*") dont les dimensions peuvent être relativement importantes (plus de 20 m en hauteur). Les coulées successives d'asphaltes contribuent, de la même manière que pour les édifices volcaniques associés aux phénomènes d'extrusion magmatique, à l'accroissement de ces objets au cours du temps créant ainsi des volcans, ou "*knolls*" d'asphaltes (*Macdonald et al., 2004*). Récemment, *Sahling et al. (2016)* montrent une cimentation d'hydrates parmi les différents nodules d'asphaltes (Fig. I-14a, b). Les caractéristiques géophysiques associées à la présence de ces hydrocarbures lourds en subsurface demeure peu contraintes, si ce n'est la présence de fortes amplitudes visibles sur les enregistrements sismiques (Fig. I-14c, d - *Ding et al., 2009*) dont l'origine n'est pas encore définie. Les signatures géophysiques se répartissent sous deux « faciès » différents à travers le niveau affecté :

- Le premier concerne des zones à forte amplitude acoustique isolées et déconnectées entre elles, associées à certains niveaux stratigraphiques et affectées par des failles.
- Le second faciès se présente sous la forme d'une forte atténuation acoustique qui constitue la matrice du profil sismique en « proche surface ».

Ces objets sont relativement peu étudiés par la sismique, en particulier en ce qui concerne la représentation en 3D de l'organisation et de l'interaction entre les hydrocarbures lourds et les sédiments.

#### III.3.2. Volcans d'asphaltes du bassin de Santa Barbara

Les volcans d'asphaltes résultent d'une extrusion d'hydrocarbures rapide vers le fond de mer, préalablement biodégradés dans les sédiments. Les bulles de méthane sont expulsées dans l'hydrosphère alors que les huiles plus denses et peu solubles dans l'eau demeurent stockées sur le fond de mer. Elles créent ainsi des reliefs positifs dont les dimensions peuvent atteindre plusieurs dizaines de mètres verticalement (Fig. I-14e, f; *Valentine et al., 2010*). Les échantillonnages géochimiques ont permis de mettre en évidence un rapport méthane/huile de 5/1, ce qui indique que le volume **de méthane expulsé demeure nettement plus important que le volume d'huile** sur ce type de site. Les interactions avec le flux continuel de méthane sous-jacent demeurent également incomprises. La présence en fond de mer de pétrole induré pourrait agir comme une couche imperméable à la migration du gaz (*Keller et al., 2007*) et donc être associé à un réservoir peu profond (Fig. I-14f).



Fig. I-14: (page précédente) Structures associées à la présence d'hydrocarbures lourds sur le fond de mer. a. Coulée d'asphaltes à Mictlan knoll (Hovland et al., 2005). b. Représentation en section d'un monticule (Knoll) d'asphaltes sur le fond de mer dans le Golfe du Mexique. Interaction possible avec les hydrates de méthane, les asphaltes et les carbonates authigènes (Sahling et al., 2016). c. Section sismique à travers le monticule de "Chapopote" dans le bassin de Campeche. d. Dessin de ligne présentant la distribution de fortes amplitudes sous la zone de sorties actives d'asphaltes (extrait de Ding et al., 2009). e. Vue en carte des topographies positives induites par la présence d'asphaltes sur le fond de mer dans le bassin de Santa Barbara, Californie (d'après Valentine et al., 2010). f. Profil topographique d'un mont d'asphaltes. Les asphaltes agissent comme une barrière pour la migration des gaz sous-jacents (Keller et al., 2007). g. Carte des pentes du fond de mer dans le bassin du Bas-Congo (modifié d'après Jones et al., 2014). h. Imagerie issue de plongées montrant la présence de monts d'asphaltes sur le fond de mer de sédiments à travers les zones affectées par la présence de monts d'asphaltes.

#### III.3.3. Monts d'asphaltes du bassin du Bas-Congo

Les extrusions d'asphaltes visibles dans le bassin du Bas-Congo se présentent sous la forme de nodules de tailles réduites, généralement inférieurs à un mètre de hauteur et à quelques mètres de diamètre (Fig. I-14g, h, i; *Jones et al., 2014*). Ces extrusions sont présentes en nombre important avec un total de 2250 monts sur une zone de 3,7 km<sup>2</sup>. La localisation des monts apparaît en lien étroit avec la tectonique salifère, au droit de la tête des diapirs de sel *(Jones et al., 2014)*. Les plongées avec les sous-marins montrent que les monts d'asphaltes sont le siège de plusieurs dizaines d'espèces associées aux environnements extrêmes (*Jones et al., 2014*). La distribution de ces monts d'asphaltes permet le développement de ponts biologiques, augmentant la connectivité entre diverses populations isolées. Ils pourraient être à l'origine de la diversification des espèces dans le bassin du Bas-Congo. Sur ces sites, les données de sondeurs de sédiments montrent la présence de corps de forte amplitude proches de la surface, en revanche les données sismiques, bien que disponibles sur cette zone, n'ont jamais été publiées.

## III.4. Hydrocarbures liquides dans la colonne d'eau

#### III.4.1. Mécanismes et vitesses de remontée du panache de fluides

Dans le domaine maritime, les hydrocarbures expulsés des formations sédimentaires peuvent soit être stockés sur le fond de mer et induire des topographies positives (Fig. I-14) lorsque les éléments ont une densité supérieure à l'eau de mer, soit poursuivre leur dysmigration dans la colonne lorsque leur

densité est suffisamment faible (*Macdonald et al., 1993*). La migration dans la colonne d'eau se produit généralement sous la forme de bulles lorsqu'il y a présence de gaz (méthane ou gaz plus lourds ; *de Beukelaer et al., 2003; Körber et al., 2014*). La compréhension du mécanisme de remontée des hydrocarbures liquides ainsi que de la dérive fait appel à une bonne connaissance des courants et de leur impact sur les gouttelettes d'huile. Le temps de résidence des gouttelettes dans la colonne d'eau est fonction de la vitesse de remontée, elle-même dépendante du type d'huile et probablement du flux, à travers la colonne d'eau (*Clift et al., 1978;* Fig. I-15a).



Fig. I-15: a. Vitesse « d'ascension » des bulles en fonction du diamètre équivalent (modifié d'après Clift et al., 1978). b. Mécanisme de compartimentation et fusion des bulles d'hydrocarbures (inspiré d'après Grammeltvedt, 2014). c. Distance maximale de l'origine des nappes d'huile en fond de mer par rapport au point d'impact moyen à la surface de l'eau, selon la profondeur (modifié d'après Garcia-Pineda et al., 2010).

Le régime de remontée se décompose en deux phases. La première correspond à une « vitesse d'expulsion » où la vitesse augmente fortement et qui intervient directement après la libération des fluides en fond de mer. La seconde correspond à un régime où la vitesse se stabilise, elle est dite « vitesse d'ascension ». Cette dernière est atteinte quelques secondes après la libération des fluides. La « vitesse d'expulsion » n'intervient donc que sur une partie négligeable de l'ensemble de la colonne d'eau, notamment dans le cas de sites libérant des hydrocarbures en milieu profond.

Les caractéristiques morphologiques des bulles déterminent le comportement des fluides dans la colonne d'eau. La taille et la forme de la bulle contrôlent ainsi la vitesse de remontée du fluide et sont des facteurs importants à prendre en compte. La taille de la bulle varie en fonction de différents paramètres tels que la pression hydrostatique et le type de fluide expulsé (*Macdonald et al., 2002; Leifer et Macdonald., 2003*). La forme peut être sphérique, ellipsoïdale ou semblable à un dôme sphérique. Chaque bulle indépendante fait partie intégrante du panache de fluide au sein duquel l'ensemble des bulles d'hydrocarbures peuvent interagir entre elles (*Grammeltvedt, 2014*). Celles de faibles dimensions peuvent fusionner (principe de coalescence) et les plus grosses bulles peuvent se compartimenter (Fig. I-15b), complexifiant ainsi le comportement du panache de fluides. La vitesse de remontée des fluides dans la colonne d'eau peut être calculée d'après les équations de mécanique des fluides (loi de Navier-Stokes). Ces équations font cependant appel à des dérivées partielles et de nombreuses inconnues. Parallèlement, la vitesse de remontée des bulles peut être estimée d'après des modèles (*Clift et al., 1978; Aprin et al., 2015*) qui font intervenir:

- $\mu_i$  = viscosité de l'huile
- $d_e = diamètre équivalent de la bulle$
- $\sigma$  = tension interfaciale
- $\rho_w \rho_i = \text{contraste de densité entre l'huile et l'eau}$
- g = attraction de pesanteur

La forme des gouttes d'hydrocarbures, généralement constituées d'un mélange d'hydrocarbures liquides et de gaz, peut être estimée à partir de la taille des bulles (*Clift et al., 1978*; Fig. I-15a):

- sphérique pour les bulles de tailles inférieures à 1 mm.
- ellipsoïdale lorsque la taille des bulles est comprise entre 1 et 15 mm.
- dôme sphérique lorsque cette taille dépasse 15 mm d'envergure.

En pratique, les vitesses étant fortement dépendantes de la forme de la bulle et de leur taille, nous avons établi un inventaire des propriétés des bulles, soit à partir d'observations au niveau de sites actifs à travers le monde ou de mesures expérimentales en laboratoire (Tableau I-1).

Références	Type d'hydrocarbures	Diamètre	Diamètre
		minimum (mm)	maximum (mm)
Macdonald et al. (2002)	Méthane recouvert d'huile	6	10
Greinert et al. (2006)	Méthane	1	15
Leifer et Macdonald (2003)	Méthane recouvert d'huile	-	10
DeMoustier et al. (2013)	Méthane	3	3.52

Tableau I-1: Compilation des références bibliographiques présentant une estimation de la taille de bulles d'hydrocarbures.

Les études montrent que la taille des bulles enregistrées varie entre 1 à 15 mm (Tableau I-1). D'après *Clift et al., (1978)*, la forme des gouttes de fluide présentant des diamètres compris entre 1 et 15 mm peuvent être approximées à une forme ellipsoïdale.

En comparaison, différents auteurs ont également procédé à des estimations de vitesse de remontée, soit par analyse en laboratoire, soit par mesures acoustiques, ou par prises de vues dans la colonne d'eau. Les vitesses qui ont été observées à l'échelle mondiale varient entre 2 à 50 cm.s<sup>-1</sup> et semblent être liées à la composition du fluide (Tableau I-2).

Références	Types d'hydrocarbures	Valeur minimale (cm.s <sup>-1</sup> )	Valeur maximale (cm.s <sup>-1</sup> )	Conditions environnementales
Macdonald et al. (2002)	Méthane recouvert d'huile	10	50	Laboratoire
Greinert et al. (2006)	Méthane	12-14	19-22	Mer Noire
<b>Rehder et al. (2002)</b>	Méthane	26	27	Laboratoire
Leifer et Patro (2002)	Méthane	5	15	Laboratoire
DeMoustier et al. (2013)	Méthane	17	23	Golfe du Mexique
<i>Crooke et al. (2014)</i>	Mélange huile/ gaz	5	50	Golfe du Mexique
Van Ganse et Lefloch (2013)	Mélange huile/ gaz	2	18	Laboratoire
Körber et al. (2014)	Mélange huile/ gaz	13	15	Mer Noire

Tableau I-2: Vitesses de remontée des hydrocarbures à travers la colonne d'eau.

#### III.4.2. Interaction entre gaz, pétrole et hydrates dans la colonne d'eau

#### a. Formation d'une peau d'hydrates

Dans les conditions de stabilité des hydrates, une peau d'hydrates se forme autour de la bulle, empêchant les interactions entre les hydrocarbures et l'eau et contribuant à diminuer significativement la vitesse d'oxydation des gaz dans la colonne d'eau. La limite supérieure de stabilité des hydrates varie en fonction de plusieurs paramètres environnementaux, mais ils sont stables dans la colonne d'eau sous des profondeurs d'environ 430 m (voir sous-section II.2. Hydrates de gaz ), soit à travers la

plus grande partie de la colonne d'eau lorsque les hydrocarbures sont expulsés en domaine profond. La nucléation de cette peau d'hydrates est un phénomène quasi-instantané intervenant dès la libération de la bulle. Les propriétés physiques des bulles d'hydrocarbures sont fortement influencées dans la ZSHG et la vitesse de dissolution du méthane dans l'eau y est **4 fois plus faible qu'ailleurs** (*Rehder et al., 2002*). Au-dessus de la ZSHG, les gaz sont très rapidement dissous dans l'eau et seule une très faible proportion (<1%) parvient à la surface (*Greinert et al., 2006; Rehder et al., 2002*).

#### b. Formation d'une peau d'huile

En présence d'hydrocarbures liquides, une peau d'huile se forme entre la proportion gazeuse de la bulle et l'eau. Dans le cas de systèmes dominés à huile, le panache de fluides peut être détecté par échosondeur acoustique jusqu'à la surface alors que classiquement le panache se dissout rapidement au-dessus de la BSHG. Ces observations ont été menées dans le Golfe du Mexique (*De Beukelaer et al., 2003*) et dans la Mer Noire (*Körber et al., 2014*), au niveau de sites d'émanations naturelles d'hydrocarbures liquides détectés par imagerie satellitaire. La présence d'huile serait à l'origine de l'augmentation considérable de la durée de vie des bulles de gaz en formant une couche liquide autour de la bulle. Cela a pour conséquence d'empêcher les interactions entre l'eau et le gaz et de fortement ralentir la vitesse de dissolution du gaz dans la colonne d'eau. La présence d'une proportion d'hydrocarbures liquides ferait ainsi diminuer la proportion de gaz dissous et près de 20 % du volume initial de gaz pourrait atteindre la surface de la mer (*Solomon et al., 2009*). L'interaction entre les trois composés hydrates, gaz et hydrocarbures liquides demeure cependant totalement inconnu.

#### III.4.3. Déflection latérale entre le fond de mer et la surface

L'abondance des échappements naturels d'hydrocarbures sous forme liquide dans le Golfe du Mexique a permis d'établir une relation entre la défection latérale du panache de fluides dans la colonne d'eau et la profondeur d'eau (Fig. I-15c; *Équation 11; Garcia-Pineda et al., 2010*), soit:

#### C = 1.2346 z + 796.86

Équation 11 : Loi de déflection latérale linéaire en fonction de la profondeur d'eau.

Dans cette équation, C correspond à la déflection latérale maximale entre la position de l'origine d'une nappe d'huile à la surface de la mer et le point d'impact moyen (barycentre). La variable Z correspond à la profondeur. Cette relation montre que le diamètre des zones d'apparition des hydrocarbures en surface mer croît avec la profondeur d'eau. La loi empirique (Équation 11) a été établie à partir de zones ou les profondeurs sont importantes, typiquement supérieures à 1000 m. Cependant, elle ne s'applique pas pour les zones côtières ou les profondeurs d'eau seront plus faibles que le minimum de 796.86 m (Équation 11), où dans des environnements océaniques où les vitesses et directions de déplacement des masses d'eau ne sont pas uniformes dans la tranche d'eau.

## III.5. Nappes d'hydrocarbures liquides à la surface de la mer

## III.5.1. Généralités

Lorsque les hydrocarbures liquides atteignent la surface de la mer, les déplacements des eaux de surface associés aux vents et aux courants produisent un épanchement du filet d'hydrocarbures à la surface de l'eau (Fig. I-16a ; *Dietz et Lafond, 1950*).



Fig. I-16: Les hydrocarbures liquides à la surface de la mer. a. Photographie aérienne illustrant la présence d'un film d'hydrocarbures à la surface de l'eau (Crédit I.R. Macdonald). b. Image optique MODIS illustrant la présence de nappes naturelles d'hydrocarbures dans le Golfe du Mexique. Les suintements apparaissent sous forme de

## traces blanches sur une composition en couleurs naturelles. Credit : Norman Kuring/ NASA. c. Répartition des différentes sources d'hydrocarbures liquides en milieu marin (modifié d'après Prince et al., 2003).

Leur présence affecte les propriétés de surface de l'eau de mer, en diminuant les tensions à l'interface avec l'air, ce qui se traduit simplement par le lissage de la surface de la mer (*Franklin, 1774*). Les épanchements d'hydrocarbures sont déplacés par les vents et les courants de surface et dans le cas de suintements continus, elles forment des traces continues (Fig. I-16a).

Lorsque la quantité d'hydrocarbures présente à la surface est suffisante, l'imagerie satellitaire de par sa forte couverture spatiale permet de localiser ces zones d'émanations (Fig. I-16b). Certains épanchements peuvent être également liés aux activités anthropiques et il apparait primordial de pouvoir différencier les deux origines (*Macdonald et al., 2015*). Les émanations naturelles représentent cependant un volume important de pétrole retrouvé dans l'environnement. Il est estimé qu'environ la moitié des hydrocarbures liquides déversés dans l'environnement est associée aux phénomènes de suintements naturels (Fig. I-16c; *National Research Council, 2003; Prince et al., 2003*).

## III.5.2. Processus d'altération

Les déversements accidentels d'hydrocarbures dans le Golfe du Mexique, en particulier lors de l'accident *Deep Water Horizon*, ont fait l'objet de nombreuses investigations afin de déterminer quels sont les comportements des huiles à la surface de l'eau, ainsi que les processus naturels de dégradation en surface de mer (Fig. I-17). Plusieurs paramètres interviennent sur la persistance et le temps de résidence des hydrocarbures liquides à la surface de la mer (Fig. I-17; *Lehr, 2001; National Research Council, 2003; Leifer et al., 2012*).

#### a. Évaporation

L'évaporation correspond au transfert des composants les plus légers vers l'atmosphère (Fig. I-17a). Il s'agit de la cause principale de la dégradation des nappes d'huile à la surface de l'eau et peut causer une perte jusqu'a 75% du volume initial (*Fingas et al., 1996; Leifer et al., 2012*). Malgré l'ampleur du phénomène, les processus physico-chimiques associés demeurent encore mal compris (*Fingas et al., 1995, 1996*), mais semblent d'autant plus efficaces lorsque les éléments hydrocarbonés sont légers et les températures élevées. Les particules évaporées sont relâchées dans l'atmosphère. La quantification de cette évaporation est fonction de deux paramètres qui sont la température (T) ainsi que le temps de résidence à la surface de la mer (t).

Elle peut être obtenue d'après la loi ci-dessous (National Research Council, 2003) :

$$P = C.T.ln(t)$$

*C* est une constante fonction du type d'huile et déterminée empiriquement en laboratoire.

#### <u>b. Émulsion</u>

L'émulsion correspond à la formation et à l'agrégation d'eau au sein de la nappe d'huile. Elle est accompagnée d'un changement de l'état physique de la nappe. Ce phénomène n'intervient que lorsque le volume d'hydrocarbures présent est important. L'état d'émulsion varie et augmente au cours du temps et dans les cas extrêmes, la quantité d'eau contenue dans la nappe d'huile peut atteindre 85%, soit une multiplication jusqu'à 5 à 6 fois du volume initial. La densité maximale mesurée de l'émulsion est de l'ordre de 1030 kg.m<sup>3</sup> (*National Research Council, 2003*), à comparer avec la densité de l'eau de mer qui est d'environ 1,024 g.ml<sup>-1</sup> (à une salinité moyenne de 35 psu à 20 °C). Les nappes d'huile peuvent devenir plus lourdes que l'eau de mer et redescendre dans la tranche d'eau pour ensuite se redéposer sur le fond de mer et sédimenter (*Leifer et al., 2012; Romero et al., 2017*; Fig. I-17a). Cependant, le processus d'émulsion est long à mettre en place (Fig. I-17b) et il demeure mineur comparé à l'effet de l'évaporation, en particulier pour les suintements naturels.

#### c. Dissolution

La dissolution correspond au mélange et à la perte de matière (pétrole) liée à la déstabilisation chimique des composants de l'huile dans l'eau de mer. Cette dissolution représente cependant une partie faible de la perte de matière, largement due au fait que l'huile et l'eau ne sont pas miscibles.

#### d. Oxydation

L'oxydation représente l'interaction entre les hydrocarbures et l'oxygène, ce dernier étant présent en partie abondante que ce soit dans la colonne d'eau où à la surface de la mer. L'équation peut être généralisée sous la forme suivante pour l'oxydation d'hydrocarbures liquides (Équation 12) :

## $C_nH_{n+2}+2nO_2 \rightarrow nCO_2+nH_2O$

#### Équation 12 : Oxydation des hydrocarbures à la surface de la mer en milieu aérobique.

L'oxydation se produit dès lors que les hydrocarbures sont en présence d'oxygène, soit tout au long de la remontée dans la colonne d'eau et durant la période de résidence à la surface de la mer. Cependant, l'effet de l'oxydation demeure marginal comparé à celui de l'évaporation (Fig. I-17b).

#### e. Dispersion

La dispersion résulte de l'action mécanique des vagues sur les nappes d'hydrocarbures. Elle induit un morcellement des nappes d'hydrocarbures au cours du transport en surface sous l'action de la force/direction des vents et des courants. Celle-ci peut intervenir soit à la surface de la mer, soit légèrement sous la surface (*National Research Council, 2003*). La dispersion joue un rôle important sur la dégradation de la nappe, en particulier au cours des premières heures (Fig. I-17b).

#### <u>f. Étalement</u>

L'étalement de la nappe d'huile correspond à l'expansion des particules d'hydrocarbures à la surface de la mer. Il en résulte que la surface totale d'eau recouverte par les nappes d'hydrocarbures s'accroît avec le temps diminuant ainsi progressivement l'épaisseur moyenne de la nappe d'hydrocarbures liquides (Fig. I-17b). Ce phénomène est naturellement fonction de la viscosité des composés pétroliers et des tensions interfaciales. Cet étalement se produit rapidement lorsque les hydrocarbures parviennent en surface et son effet diminue au bout de quelques heures.

#### g. Biodégradation

La biodégradation correspond à l'action des protéobactéries qui dégradent et consomment les composants pétroliers en les oxydant à la surface de la mer. Les produits de cette transformation diffèrent suivant les composés initiaux (alcanes saturés, insaturés ou cycliques; Fig. I-17c), mais produisent généralement des alcools (*R-OH*) et des acides carboxyliques (*R-COOH*; *Harayama et al., 1999*). Les processus de biodégradation sont plus efficaces en milieu aérobie qu'en milieu anaérobie, pour des températures comprises entre 15 et 20 °C (*Das et Chadran, 2011*). Ce mécanisme pourrait potentiellement constituer une « bio-remédiation » des hydrocarbures à la surface de la mer dans le cas de déversements accidentels. Devant la prise de conscience croissante de l'enjeu potentiel de la dégradation des hydrocarbures dans l'environnement par l'action des bactéries, ce processus encore mal contraint fait l'objet de multiples projet de recherche (*Prince et al., 2013; Kleindienst et al., 2017; Marinescu et al., 2017*).



Fig. I-17. a. Illustration des différents processus externes contribuant à la dissociation/dispersion des nappes d'huile sur des échelles de temps de quelques jours. b. Illustration des phénomènes altérant les hydrocarbures et du temps nécessaire pour chaque phénomène (modifié d'après Johansen et al., 2003). c. Synthèse des processus de dégradation à la surface de la mer, dans la colonne d'eau et dans les sédiments.

## IV. Problématiques et motivations

De par leur abondance au niveau des marges continentales, la caractérisation des sites de sorties actives de méthane (notamment biogénique) a contribué à développer une vision étoffée de leur caractéristiques géophysiques, des processus biogéochimiques et des aléas géologiques associés. L'identification de zones de sorties naturelles d'hydrocarbures lourds a récemment été effectuée sur bon de nombreuses marges continentales, en lien avec le développement de méthodes de détection par photographies aériennes et satellitaires. Les systèmes associés aux émanations d'hydrocarbures lourds depuis le fond de mer ont fait l'objet de moins de travaux que les sites d'expulsion exclusivement liés aux gaz. La compréhension de ces systèmes revêt pourtant des enjeux majeurs :

- D'un point de vue économique, l'identification de zones de sorties naturelles d'hydrocarbures lourds permet de révéler la présence de systèmes pétroliers avec une roche mère mature,
- D'un point de vue des aléas géologiques, il est important d'identifier les particularités de ces systèmes à huile afin d'orienter les implantations des infrastructures en domaine sous-marins.
- D'un point de vue biologique, ces zones constituent des oasis de vie et sont le siège d'une forte diversité biologique, probablement plus complexe qu'au niveau des sites exclusivement gazeux. La distribution spécifique de ces échappements et la possibilité de développement de «ponts biologiques» sont des questions à approfondir.
- D'un point de vue écologique, la compréhension du mécanisme de suintement naturel d'hydrocarbures lourds vers la surface de la mer peut permettre de mieux orienter les déploiements logistiques lors des marées noires.
- D'un point de vue sociétal, les sorties naturelles d'hydrocarbures s'accompagnent potentiellement d'une grande quantité de composants présentant une forte puissance radiative vers l'hydrosphère et l'atmosphère (méthane, dioxyde de carbone, gaz lourds) qu'il est essentiel de quantifier.

Dans ce contexte, cette thèse vise à aborder le fonctionnement des systèmes d'émanation d'hydrocarbures lourds dans le bassin du Bas-Congo, laboratoire naturel de premier plan car il représente (i) le siège de nombreux épanchements d'hydrocarbures en surface mer (*Williams et Lawrence, 2002*) et fond de mer (*Gay et al., 2007; Andresen et al., 2011; Andresen, 2012*), (ii) une province intensément explorée par l'industrie pétrolière et notamment par TOTAL ces dernières années. La zone bénéficie donc d'une banque de données (images satellitaires, courantologie, géophysique marine) importante permettant d'aborder ces systèmes de façon intégrée.

Les problématiques de cette thèse peuvent être alors regroupées en trois grandes catégories :

#### 1. Distribution géographique en surface mer

Les émanations d'hydrocarbures liquides sont identifiés uniquement à l'échelle régionale dans le bassin du Bas-Congo (*Williams et Lawrence, 2002*), les positions des points de sorties demeurent toujours inconnues. De plus, même si la connaissance de la rythmicité (*Garcia-Pineda et al., 2015*) des expulsions sont primordiales pour la quantification des volumes expulsés, les périodes de quiescence et d'activité demeurent encore mal contraintes. Ce travail vise à répondre à ces questions :

- Où se localisent les zones de sorties naturelles d'hydrocarbures liquides dans le bassin du Bas-Congo ?
- Quelles sont les périodes d'activité/d'inactivité des zones de suintements d'hydrocarbures lourds ?
- Quel est le volume d'hydrocarbures liquides atteignant la surface de la mer dans le bassin du Bas-Congo ?

#### 2. Dérive du panache de fluide dans la colonne d'eau

La remontée du panache de fluide dans la colonne a été imagée par des méthodes acoustiques pour divers sites dominés à gaz (*e.g. Greinert et al., 2006; Dupré et al., 2014; Dupré et al., 2015*), mais rarement pour les sites à hydrocarbures lourds. Les questions suivantes permettront de mieux comprendre la remontée des fluides dans la colonne d'eau :

- Quelle est la trajectoire des nappes d'hydrocarbures dans la colonne d'eau entre les points d'émission en fond de mer et leur point d'impact à la surface de la mer ?
- Quel sont les gammes de vitesse de remontée du panache de fluide ?
- Les lois de déflections linéaires en fonction de la profondeur d'eau s'appliquent-elles à l'ensemble des marges continentales ?

## 3. Mise en place de ces systèmes et caractérisation géophysique en fond de mer

Les systèmes à hydrocarbures lourds sont bien moins étudiés que les systèmes à gaz pour l'heure, notamment par les méthodes de géophysiques marine car la distinction entre ces deux types de systèmes n'est pas possible avec ces seuls outils. Les questions que nous aborderons par l'analyse de donnés géophysiques sont les suivantes :

- Existe-t-il des critères géophysiques caractérisant les zones de suintements d'hydrocarbures lourds ?
- Existe-t-il des configurations géologiques, où des éléments internes à la marge, favorisant ces émanations d'hydrocarbures lourds ?

Dans un contexte de changements des conditions environnementales, il est crucial de connaître quelle est l'activité actuelle, à l'échelle régionale, de ces sorties naturelles par rapport au potentiel total d'hydrocarbures pouvant être libérés dans notre zone d'étude :

• Combien de sites pouvant potentiellement être associé à des émanations d'hydrocarbures lourds sont actuellement actifs ?

# <u>Chapitre II.</u> Zone d'étude, données et méthodes



Sources: CGG, European Geoscience Union, European Space Agency, Sea Change, Woods Hole Oceanographic Institution
# I. Le bassin du Bas-Congo

# I.1. Contexte géographique

Le bassin du Bas-Congo est une partie constituante du bassin angolais, lui-même intégré au sein de la province centrale ouest Africaine (*Brownfield et Charpentier, 2006*). Cette dernière s'étend depuis le nord du Cameroun jusqu'au nord de la Namibie et est bordée au nord par la limite méridionale du Delta du Niger et au Sud par la ride volcanique de Walvis (Fig. II-1; *Brownfield et Charpentier, 2006*). La province côtière Ouest Africaine est ancrée au niveau d'une ceinture de hauts de socles Précambrien, principalement orientée perpendiculairement à la côte. La province ouest Africaine se divise en plusieurs sous-bassins individualisés par leurs systèmes fluviatiles. On retrouve du nord au sud, le bassin de Douala, le bassin du Gabon, le bassin du Bas-Congo, le bassin de la Cuanza, le bassin de Benguela et le bassin du Namibe. La zone d'étude se situe au niveau du bassin du Bas-Congo (Fig. II-1) à des latitudes comprises entre 6 à 10 °S et des longitudes comprises entre 9 et 13° E, ce qui correspond à des zones distantes de 150 à 220 km de la côte angolaise. La superficie de la zone d'intérêt couvre une surface d'environ 18 500 km<sup>2</sup> et s'étend du nord au sud sur près de 250 km. La partie orientale de la zone d'étude se situe à une profondeur d'environ 1000 m, alors que la partie la plus au large se retrouve sous plus de 3000 m d'eau.

La zone d'étude est bordée au nord par le canyon du fleuve Congo qui se situe au niveau du prolongement occidental de la frontière entre l'Angola et la République démocratique du Congo (RDC) et au sud par la limite des dépôts sédimentaires de l'éventail profond du paléo fleuve Congo. Le fleuve Congo actuel mesure près de 4700 km de long, draine une aire d'environ 3.7.10<sup>6</sup> km<sup>2</sup> (*Van Weering et Iperen, 1984; Droz et al., 1996*) qui se distribue à travers l'Angola, le Gabon, la RDC, une partie du Cameroun et de la Centrafrique (Fig. II-1). La taille de sa zone de captage le classe à la deuxième place mondiale, son panache en surface mer pouvant atteindre la ride médio-atlantique (*Uwke et al., 2006*). Le bassin profond est associé à un éventail sédimentaire sous-marin qui s'étend jusqu'à plus de 1000 km au large de la marge angolaise et couvre une surface d'environ 300 000 km<sup>2</sup> (*Savoye et al., 2000; Droz et al., 2003; Séranne et Anka, 2005; Savoye et al., 2009*). L'épaisseur maximale des apports sédimentaires du Congo sont estimées à environ 5 km au niveau du bassin profond (*Anderson et al., 2000; Cramez et Jackson, 2000; Marton et al., 2000; Séranne et Anka 2005; Anka et al., 2009*).



Fig. II-1: Localisation géographique de la zone d'étude et du bassin du Bas-Congo. Position des bassins sédimentaires de la province centrale Ouest Africaine. Les valeurs bathymétriques sont extraites de la base mondiale Gebco. Carte de localisation du système hydrographique du fleuve Congo.

# I.2. Dynamique hydrographique actuelle

# I.2.1. Les courants de surface

# a. Le courant Angolais

Le courant de surface principal aux abords des côtes angolaises est le Courant Angolais (AC – *Angolan Current*) qui est un courant puissant, étroit et relativement constant en direction et en puissance au cours de l'année, avec des vitesses généralement comprises entre 25 et 50 cm.s<sup>-1</sup> (*Moroshkin., 1970, Shannon, 2001, Hardman-Mountford et al., 2003; Kopte et al., 2017*; Fig. II-2). Il prend sa source au niveau des courants Équatoriaux s'écoulant vers l'est depuis les zones centre atlantiques (Fig. II-2). Les températures des eaux du AC sont chaudes (>20 °C) et salées (36.4) même si elles présentent des variations saisonnières. La profondeur d'influence de ce courant atteint 250 à 300 mètres (*Hardman-Mountford et al., 2003*). Le AC est bordé au Nord par le front angolais (*Angolan Front* – AF ; *Shannon, 2001*) qui constitue la limite méridionale du courant côtier des eaux Gabonaises (GC – *Gabon current*) et la transition avec les courants équatoriaux. Au sud, le AC est bordé par la Zone Frontale Angola-Benguela (ABFZ – *Angola Benguela Frontal Zone* ; *Schneider et al., 1996; Boyer et al., 2000; Lass et al., 2000; Shannon, 2001; Hardman-Mountford et al., 2003*, il est plus ou moins constant durant toute l'année et sa zone d'influence est relativement bien restreinte aux côtes angolaises. La dynamique océanographique est constitué principalement de 4 saisons (*Dias et al., 1983; Hardman-Mountford et al., 2003*) :

- 2 périodes chaudes (février-avril et octobre-novembre) avec des températures d'environ 27 °C.
- 2 périodes froides (décembre et juillet-septembre) avec des températures d'environ 20 °C. Ces périodes sont caractérisées par la présence de nombreux *upwellings* qui remonte des eaux froides.

# b. Le courant côtier de Benguela

Le courant de côtier Benguela (BCC – *Benguela Counter Current*) correspond à l'intrusion du courant de Benguela vers les côtes Angolaises, jusqu'à l'embouchure du fleuve Congo (Fig. II-2; *Holmes et al., 1997; Hardman-Mountford et al., 2003; Hopkins et al., 2013*). Il est composé d'eaux froides (22-23 °C) et peu salées et issus d'un intime mélange entre les eaux indiennes et sud-Atlantiques. La zone de collision frontale ABFZ induit une déviation des courants de Benguela vers la zone centre-Atlantique (BOC – *Benguela Offshore Current*). La profondeur d'influence de l'intrusion du BCC demeure mal connue, mais elle serait visible jusqu'aux courants de subsurface (200-300 m; *Schneider et al., 1996*).



Fig. II-2: Systèmes hydrographiques à l'échelle du bassin angolais. Compilation des courants superficiels, intermédiaires et profonds, des limites de systèmes hydrographiques et des apports fluviatiles. Compilé d'après Mazeika (1970), Moroshkin et al. (1970), Picaut

(1984), Peterson et Stramma (1991); Schneider et al. (1996) Holmes et al. (1997), Stramma et England (1999), Stramma et Schott (1999), Lass et al. (2000), Shannon (2001), Mercier et al. (2003), Hardman-Mountford et al. (2003), Hopkins et al. (2013). AC: Angolan Current, BCC: Benguela Counter Current, AD: Angolan Dome, SECC: South Equatorial Counter Current GC: Gabon Current, BOC: Benguela Offshore Current, CP: Congo Plume, AG: Angolan Gyre, EUC: Equatorial Under Current, SEUC: South Equatorial Under Current, SICC: South Intermediate Counter Current, NAWD: North Atlantic Deep Water.

#### c. Dôme angolais

Le dôme angolais (AD - *Angolan Dome*) correspond à une zone giratoire dans les niveaux superficiels et de subsurface (Fig. II-2), induite par la déviation vers le sud des courants équatoriaux, puis par la déviation de ces mêmes masses d'eau par le BOC vers l'Ouest. Le AD est un gyre cyclonique centré sur 12° S, 4–5° E avec une extension spatiale de l'ordre de 500 à 1000 km d'envergure (*Voituriez, 1981; Stramma et Schott, 1999; Shannon, 2001; Hardman-Mountford et al., 2003; Doi et al., 2007*).

#### d. Le panache du fleuve Congo

Le fleuve Congo (CP - *Congo Plume*) présente une zone de drainage parmi les plus larges du monde (*Ukwe et al., 2006*) avec des débits estimés de l'ordre de 45.10<sup>13</sup> m<sup>3</sup>.s<sup>-1</sup> (*Dupont, 2013*). Le panache du fleuve Congo est observé jusqu'à plusieurs centaines de kilomètres des côtes angolaises (*Hopkins et al., 2013*) et les données de la campagne Zaïango (*Anka et al., 2009*) ont montré que les dépôts sédimentaires terrigènes du fleuve se retrouvaient à plusieurs milliers de kilomètres de son exutoire. Les apports du CP modifient la dynamique hydrographique de manière significative dans la région, en créant une fermeture hydrologique au Nord (Fig. II-2; *Hardman-Mountford et al., 2003*). La salinité du CP varie dans le bassin de 0 pour les zones fluviales à 25 psu en s'éloignant vers les zones distales (*Hopkins et al., 2013*). La zone d'influence du panache du fleuve Congo est principalement localisée dans la partie nord du bassin du Bas-Congo, bien que l'on puisse retrouver des intrusions régulières dans la partie Sud (*Hopkins et al., 2013*).

# I.2.2. Les courants de subsurface

# a. Les courants équatoriaux

Les courants de subsurface au large de l'Angola sont majoritairement induits par les courants équatoriaux qui sont composés, entre autres, du EUC (*Equatorial Under Current*) et du SEUC (*South Equatorial Under Current*; *Peterson et Stramma, 1991; Stramma et England, 1999*). L'EUC se localise à des latitudes proches de celles de l'équateur et trouve son maximum à environ 100 m de profondeur. avec des vitesses pouvant atteindre 60 cm.s<sup>-1</sup> (*Mercier et al., 2003*). Le SEUC présente un maximum de vitesses au niveau de la surface et présente des valeurs maximales d'environ 30 cm.s<sup>-1</sup> aux abords du bassin du Bas-Congo. Le SECC (*South Equatorial Counter Current*) est plus profond, atteignant jusqu'a 400 m de profondeur avec une vitesse d'environ 10 cm.s<sup>-1</sup>.

#### b. Le gyre angolais

Le gyre angolais (AG – angolan gyre ou *Tsuchiya Jet*) est un courant giratoire dextre à forte composante saisonnière (Fig. II-2; *Mazeika, 1967*), il constitue le prolongement des courants équatoriaux (EUC et SEUC) vers le Sud. Les investigations ultérieures ont montré que l'impact du AG pouvait être enregistré à des profondeurs de plusieurs centaines de mètres (*Voituriez, 1981; Picaut, 1991; Peterson et Stramma., 1991; Schneider et al., 1996; Holmes et al., 1997; Stramma et England, 1999*). Le nord du bassin du Bas-Congo présente également un courant giratoire issu de la convergence des courants équatoriaux et de la rétroflexion du CP (Fig. II-2; *Hardman-Mountford et al., 2003*).

# I.2.3. Les courants intermédiaires

Les courants intermédiaires (500 à 1200 m de profondeur) sont principalement induits par le SICC (*South Intermediate Counter Current ;* Fig. II-2) au large des côtes angolaises, soutenus par le AG (*Stramma et Scott, 1999; Stramma et England, 1999*). Le SICC fait parti du grand complexe du courant Atlantique Intermédiaire (AAIW - *AntArctic Intermediate Waters*) qui prend sa source dans les eaux subpolaires, longe les côtes brésiliennes, puis traverse l'Atlantique pour atteindre les côtes africaines et la côte angolaise. La salinité est très faible (*Shillington et al., 2006*), la littérature n'apporte pas d'information sur les vitesses de déplacement dans cette tranche d'eau.

# I.2.4. Les courants profonds

La circulation profonde et de fond du bassin du Bas-Congo est principalement induite par la branche sud du courant ouest de bordure profond (DWBC - *Deep Western Boundary Current*) transportant les masses d'eau de l'Atlantique Nord (NADW - *North Atlantic Deep Water*) à des longitudes aux environs de 10°E (Fig. II-2; *Garzoli et al., 2015*). Ce courant est connu pour avoir une influence aux alentours de 2000 m de profondeur (*Stramma et England, 1999; Arhan et al., 2003*) et des vitesses plutôt faibles en direction du sud (environ 2 cm.s<sup>-1</sup>; *Lynn, 1971*). Il est classiquement admit que le NADW se subdivise en trois niveaux identifiés d'après leurs valeurs de salinité entre un niveau supérieur, moyen et inférieur (*Friedrichs et al., 1994; Stramma et England, 1999*).

# I.3. Contexte géologique

# I.3.1. Évolution géodynamique et ouverture du bassin

Le bassin du Bas-Congo résulte de la séparation de la plaque sud Amérique et Afrique lors de la dislocation du Gondwana (ouverture de la marge passive Ouest Africaine) au Crétacé inférieur à 130 Ma (*Duval, Cramez et Jackson, 1991; Brownfield et Charpentier, 2006; Beglinger et al., 2012*). L'histoire géodynamique et le développement du bassin peuvent être décomposés en quatre étapes majeures : étape pré-rift, étape syn-rift, une étape de transition et une super-séquence post-rift.

# a. Épisode pré-Rift

Avant le stade d'extension crustale associée à l'ouverture de l'Atlantique sud, les plaques Afrique et Amérique sont regroupées en un supercontinent, le **Gondwana**. Le futur bassin angolais se situe au niveau de la transition entre deux cratons Précambriens, au niveau de zones héritées de la dislocation de la **Pangée**. La fin du Trias voit une première phase de dislocation du supercontinent de la **Pangée** en trois super blocs (e.g. *May, 1971; Moulin et al., 2005; 2010*). La plaque Amérique du Nord se sépare de la plaque Afrique au sein de la Province Magmatique Centre Atlantique (CAMP - *Central Atlantique Magmatic Province*).

#### b. Épisode syn-rift

Le Crétacé inférieur correspond à une nouvelle phase de quiescence magnétique et voit une nouvelle période de dislocation majeure du super continent **Gondwana** avec la séparation de l'Amérique du Sud du continent Afrique. L'extension crustale se localise au niveau d'une zone de faiblesse héritée des terrains précambriens. L'ouverture de l'océan Atlantique se produit de manière progressive entre le Valangien et l'Aptien (Crétacé inférieur ; 145 -113 Ma) à travers ce segment long de 2000 km, en se propageant depuis le sud vers le nord, individualisant quatre segments principaux (Fig. II-3) :

- Le segment des *Falklands*, à l'extrémité sud dont la limite septentrionale correspond à la ride fossile des Agulhas, au niveau de la Zone frontale Agulhas-Falklands ;
- Le segment Austral, qui donne lieu au développement du bassin d'Orange. Le début de l'épisode de l'extension crustale est controversé, mais est globalement daté aux alentours de 144 Ma. Ce segment présente des réflecteurs pentés vers le bassin (*Seaward-Dipping Reflectors*; SDRs), interprétés comme des marqueurs de forte influence volcanique, associée à la genèse de la marge;
- Le segment Central incluant le futur bassin angolais. Il se localise globalement ente la zone de fractures du *Rio Grande* au sud, jusqu'au fossé de la Bénoué. Cette zone se distingue par la

présence d'un large bassin évaporitique (Fig. II-3). La période d'extension crustale au niveau de la ride de Walvis est datée du Barrémien supérieur (*Brice et al., 1982; Cainelli et Moriak, 1999; Marton et al., 2000*);

 Le segment Équatorial marque la limite Septentrionale de l'océan Atlantique sud, lui même délimité par la zone de fracture du Marathon. L'ouverture Atlantique y est plus précoce, datée entre 120 à 113 Ma.



Fig. II-3: Carte tectono-structurale de l'océan Atlantique Sud à 84 Ma (modifiée d'après Moulin et al., 2010). La ligne rouge centrale marque la position de la ride médio-Atlantique. Du nord au sud, l'océan Atlantique est subdivisé en quatre grands segments : Equatorial, Central, Austral et celui des Falklands. Les cratons précambriens apparaissent en beige. Les provinces salifères aptiennes sont affichées en rose.

Au niveau de l'Atlantique Sud, cette période de dislocation associée à une phase de Rift est caractérisée par une subsidence rapide. Le bassin se subdivise en de nombreux systèmes de horst/graben et de blocs basculés (*Cainelli et Mohriak, 1999 ; Beglinger et al, 2012*). Ce système voit la mise en place d'un réseau de lacs longitudinaux en lien avec le régime tectonique en extension

(*MacHargue, 1990*). Les variations climato-eustatiques font varier le niveau des lacs, modifiant sensiblement les conditions de dépôts : dépôt de carbonates durant les hauts niveaux marins ; dépôt d'argiles organiques durant les bas niveaux marins (*MacHargue, 1990*).

La sédimentation lacustre du Crétacé inférieur (Néocomien - Barrémien ; 145- 125 Ma) au sein des lacs syn-rift correspond au premier niveau de roche mère avec un fort potentiel pétrolier et correspond à la formation **Bucomazi** (Tableau II-1). Elle est essentiellement constituée d'une succession de marnes, d'argiles lacustres et de boue carbonatée très riches en matière organique (5 to 20 % TOC ; *Burwood, 1999; McHargue, 1990; Brownfield et Charpentier, 2006, Schoellkopf et Patterson, 2000, Beglinger et al, 2012*). Elle constitue de nombreuses découvertes pétrolières au niveau du bassin a terre "*Onshore*" ainsi que dans la partie en extension dans les provinces de l'Angola, du Gabon et du Congo (*MacHargue, 1990; Burwood, 1999*). L'épaisseur des dépôts est très variable en fonction de la position par rapport au bassin, mais elle est globalement comprise entre 400 à 2100 m (*MacHargue, 1990; Cole et al., 2000; Schoelkopf et Patterson, 2000; Brownfield et Charpentier, 2006*).

Tableau II-1: Compilation des différents types de roches mères et des systèmes pétroliers associés au sein du bassin du Bas-Congo. SRT : Source Rock Type. TOC : Total Organic Content. HI : Hydrocarbon Indicator. Compilé d'après Cole et al. (2000), Schoellkopf et Patterson (2000), Brownfield et Charpentier (2006), Beglinger et al. (2012). Les valeurs de porosité correspondent aux valeurs maximales reportées dans la littérature.

	Source Rock						Petroleum System Play			
Sequence	Age	Fm Name	Lythology	SRT	TOC	HI	Reservoir	Poro-	Permea-	Seal
						(mgHC/TOC)	Fm	sity	bility	
Pre-Rift	Tithonian to	Lucula	Clastic			350	Lucula	<19%		Bucomazi
	Neocomian		Sandstones							Loeme Salt
Syn-Rift	Neocomian Baremian	Bucomazi				1.4ton/m <sup>3</sup>	Toca, Pinda	16-20%	<600mD	
		Lower	Lacustrine shales	1	2 - 3 %	350				Loeme Fm
		Middle	Carbonate shales	I and II	5%	570				Evaporites
		Upper	Lacustrine shales	1	2 - 3 %	420				
Transitional	Early Aptian	Chela	Mudstone and shales	II and III	2 - 4%	400	Chela	20-30%	100 - 5000 mD	Loeme Fm
	Albian to	Moita	Marine		>3 %					labe,
Restricted	Cenomanian	Seca	shales and							Landana
Marine			Marls							
Post Rift	Albian to		~			110				labe,
	Cenomanian	Pinda	Carbonate				Pinda	22-30%	150mD	Landana
	Turonian to	labe	Sandstone		4.6 %	>400	Landana	25%	1000mD	labe,
Open	Late		and shales							Landana
marine post	Cretaceous									
Rift	Paleocene to Mid Eocene	Landana	Sandstones and Shales	11	> 4%	>300	Malembo	20 %	1000 - 5000 mD	Malembo
Deltaic	Oligocene to Quaternary	Malembo	Marine shales	ll and mixed II,III	~4%	<200	Malembo	20 %	-	

Les dépôts pré-rift continentaux et lacustres du Barrémien sont recouverts à la fin de l'épisode syn-rift par des dépôts fluvio-deltaïques. Cette période correspond aux prémices du développement du delta du Congo. À partir du Barrémien supérieur, le taux de subsidence diminue progressivement, parallèlement au taux d'extension et marque la fin de l'étirement crustal.

Le Rift Sud Atlantique aboutit à l'individualisation de deux marges conjuguées : la marge Ouest Africaine à l'est qui intègre le bassin du Bas-Congo et la marge brésilienne intégrant les bassins de *Los Campos* et du bassin de *Los Santos* qui correspondent à des analogues à notre zone d'étude (*Cainelli et Moriak, 1999; Beglinger, 2012*).

# c. Épisode de transition

La période de transition entre le Barrémien et l'Aptien inférieur est marquée par une forte érosion des reliefs associés aux blocs basculés (*McHargue, 1990; Beglinger et al, 2012*). Les matériaux érodés sont transportés et redéposés dans le bassin profond, constituant alors la discordance Aptienne (*Cainelli et Mohriak, 1999; Uchupi 1992; Beglinger et al, 2012*). Ces dépôts silico-clastiques correspondent à un analogue de la formation **Chela** datée de l'Aptien (*Burwood, 1999; Beglinger et al., 2012*).

Entre l'Aptien et le début de l'Albien (118 à 115 Ma), le bassin subit une forte subsidence associée au refroidissement post-rift (*Uchupi, 1992; Jackson et al., 2000; Marton et al., 2000*). Cette période marque le début des intrusions marines dans un contexte d'approfondissement progressif du bassin. La subsidence du bassin provoque périodiquement de nombreuses intrusions marines à partir de la ride de Walvis, ce qui résulte en une mer épicontinentale en milieu confiné. Les conditions anoxiques associées à une faible profondeur d'eau et à de faibles circulations marines sont alors propices au développement de dépôts évaporitiques (*Duval et al., 1991; Cramez et Jackson, 2000; Brownfield et Charpentier, 2006; Karner et al., 1997; Beglinger et al, 2012; Uchupi 1992; Anka et al., 2013*). Ces dépôts composés en partie d'halite (*NaCl*), de sels potassiques tels que la carnallite (*KMgCl<sub>3</sub>6H<sub>2</sub>0*) et d'anhydrite (*CaSO<sub>4</sub>*), peuvent atteindre ponctuellement jusqu'au 1000 m d'épaisseur (*Brownfield et Charpentier, 2006*). Ces séries sont également inter-stratifiées par des niveaux argileux à plus forte concentration en matière organique (*Turner, 1995*). L'ensemble de ces dépôts correspond à la formation de Loeme (*Brice et al., 1982*).

# d. Épisode Post-Rift

À partir du Crétacé inférieur, l'éloignement progressif du bassin par rapport à la ride médio-atlantique continu de refroidir et d'alourdir la lithosphère. La subsidence thermique se poursuivra, mais de

manière beaucoup plus progressive. La fin de l'extension crustale au Crétacé inférieur scelle l'activité géodynamique de la marge qui passe alors dans un contexte de marge passive.

# I.3.2. Stratigraphie sédimentaire de la séquence post-rift

#### a. La séquence aggradante

La période comprise entre le Crétacé inférieur et l'Oligocène est associée à de faibles variations des conditions climato-eustatiques, elle correspond à une période dite de "green-house" (Haq et al., 1987; Séranne, 1999).

Entre l'Albien et le Cénomanien l'environnement est hyper-salin, confiné par la ride de Walvis au sud qui joue encore un rôle de frontière hydrographique périodique (Fig. II-4 a, b). Combiné à des fortes températures dans le bassin, cet environnement peu profond et confiné est propice à la précipitation de carbonates qui se développent sous la forme d'une plate-forme aggradante (*Da Costa et al., 2000; Beglinger et al., 2012*). Ces dépôts sont majoritairement carbonatés et intercalés de dépôts silico-clastiques correspondant à la formation **Pinda**. Ces dépôts mis en place en condition de transgression marine peuvent atteindre des épaisseurs relativement importante, jusqu'à 800 m (*Cole et al., 2000*).

Pendant le crétacé supérieur, le bassin s'approfondit sous l'effet de l'accentuation de la subsidence thermique et l'environnement de dépôt devient fluvio-marin (*Brice et al., 1982*).

À partir du Turonien, la ride de Walvis est totalement submergée (Fig. II-4c, d), ce qui résulte en une modification importante des circulations marines qui passe dans un contexte de mer ouverte. Les dépôts sont caractéristiques d'une sédimentation en domaine marin profond en conditions alternativement anoxiques, principalement constitués de marnes noires et de boues carbonatées. Ces dépôts, très riches en matière organique constituent la formation **Iabe** (*Cole et al., 2000; Shoelkopf et Patterson, 2000*). Ces niveaux riches en matière organique constituent une excellente succession de niveaux roche mère (Tableau II-1) et présente un fort potentiel pétrolier dominé à huile (*Burwood, 1999, Cole, 2000*). La fin du Crétacé est marquée par une période de régression marine régionale associée à une diminution des apports détritiques et un faible taux de sédimentation.

Entre le Paléocène et l'Éocène, la sédimentation est constituée d'un niveau condensé de boues carbonatées déposées dans le bassin profond, correspondant à la formation **Landana** (*Anderson et al., 2000*) qui se dépose dans un contexte de mer ouverte. Elle est reporté avec un fort potentiel pétrolier de part sa concentration en matière organique (>4 %; Tableau II-1; *Cole et al., 2000*).



Fig. II-4: Évolution géodynamique de la marge Ouest Africaine entre l'Albien et le Crétacé supérieur. (modifié d'après Beglinger et al., 2012, issue de Tissot et Welde, 1984; Brownfield et Charpentier, 2006).

# b. Discordance de l'Oligocène

La transition entre l'Éocène et l'Oligocène est associée à un événement érosif majeur, induisant un hiatus régional des séries de l'Éocène supérieur de près de 10 Ma. Cette discordance de l'Oligocène érode une épaisseur de sédiments estimée à environ 500 m et les déplace depuis la plate-forme vers le bassin profond (*Séranne et al., 1992; Teisserenc et Villemin, 1989*). L'Oligocène inférieur marque également le passage vers un contexte à fortes variations climato-eustatiques, correspondant à une période dite de "*Ice-house*".

Cette période correspond à augmentation conséquente des apports terrigènes dans le bassin, en lien avec le développement de l'éventail sous-marin du paléo-fleuve Congo (*Séranne et al., 1992*). La discordance Oligocène marque donc (i) une période d'érosion des dépôts Éocènes et (ii) une augmentation des apports détritiques vers le bassin. Deux hypothèses sont avancées pour expliquer l'origine de ces changements majeurs :

- La baisse globale du niveau marin dans un contexte de forte circulation océanique associée à la connexion des océans indien et pacifique (*Haq et al., 1987*).
- Le soulèvement du continent africain (*African superswell*), en lien avec la dynamique mantellique (*Nyblade and Robinson, 1994; Tinker et al., 2008; Moucha et Forte, 2011*).

#### c. Séquence progradante

La connexion entre les divers océans (Pacifique, Antarctique, Atlantique) au Miocène génère une meilleure circulation des courants océaniques et permet une meilleure régulation thermique de l'océan Atlantique Sud. Cette circulation océanique isole thermiquement le continent Antarctique au début du Miocène qui subit alors un refroidissement brutal, qui se traduit par la formation d'une calotte polaire en condition de régression marine mondiale (*Haq et al., 1987, Séranne, 1999; Anka et al., 2009;* Fig. II-5).

La période comprise entre l'Oligocène inférieur et l'Actuel est dite de "*Ice-house*" et est associée à de fortes variations climato-eustatiques et des amplitudes de variations du niveau marin supérieures à 100 m (Fig. II-5) en réponse à la variation du volume de glaces piégées dans les calottes glaciaires. La transition vers un régime de "*Ice-house*" est également associée à un changement majeur du régime des dépôts sédimentaires, qui devient progradant par la mise en place d'un système de drainage du matériel terrigène vers le bassin profond (*Séranne et al., 1999*). L'augmentation de la quantité de matériel terrigène alimentant un large système turbiditique s'accompagne par la mise en place du paléo-fleuve Congo à l'Oligocène. Le système sédimentaire est alors constitué de dépôts de chenaux turbiditiques et de lobes distaux correspondant à la formation **Malembo** (*Andersson et al., 2000*). Les épaisseurs de ces dépôts sont conséquents, avec une fortes concentration en matière organique ce qui en fait une roche à fort potentiel de roche mère (Tableau II-1; *Brownfield et Charpentier, 2006, Burwood, 1999, Beglinger et al., 2012*). Ce régime progradant est associé à la réactivation de la tectonique salifère (voir I.3.3. Tectonique salifère) qui va confiner les sédiments dans les mini-bassins au moins depuis le Miocène inférieur (*Séranne et Anka, 2005; Oluboyo et al., 2014*).

Le Miocène moyen est associé à un second événement érosif avec le basculement du bassin et induit un transfert des sédiments vers les milieux plus profonds, qui se caractérise par des systèmes de chenaux et de lobes distaux distributaires, ainsi que des transports de masses complexes. L'origine de ce basculement pourrait être dû à la surrection du continent Africain lui même engendré par des perturbations thermiques de la lithosphère (*The African Superswell*; *e.g. Nyblade and Robinson, 1994*).



Fig. II-5: Échelle chrono-stratigraphique du bassin du Bas-Congo ; charte de corrélation du log stratigraphique, du taux de sédimentation, de la tectonique et des forçages externes. Compilé d'après les travaux de Séranne et Anka (2005), Anka et al. (2009) et Andresen et al. (2011).

#### d. Sédimentation au Plio-Quaternaire

Le basculement du continent africain vers le bassin pendant le Miocène est probablement à l'origine du déplacement latéral de la position du fleuve Congo pendant la transition Miocène-Pliocène, qui est passé d'une position très septentrionale à sa position actuelle (Fig. II-1; *Ferry et al., 2004; Savoye et al., 2009*). Les apports continentaux clastiques et les écoulements turbiditiques transitent directement vers le bassin profond et la plaine abyssale. L'éventail profond Néogène du Congo n'est alors plus alimenté en matériel terrigène à cause du déplacement du fleuve Congo vers le Nord. Les dépôts sont alors uniquement constitués de grains fins, principalement composés de marnes et d'argiles (*Jansel, 1985; Uenzelmann-Neben, 1998*).

Le quaternaire inférieur est caractérisé par une augmentation de la productivité primaire dans le bassin du Bas-Congo (*Berger et al., 1998*), en lien avec l'établissement d'une zone d'upwelling au niveau de la zone de convergence entre (i) le panache du fleuve Congo et (ii) les intrusions du BCC. Cette augmentation de productivité est associée à une augmentation considérable de la quantité de sédiments déposés (5 à 20 cm.ka<sup>-1</sup>; *Berger et al., 2005*), principalement sous la forme de grains fins. Depuis le début de l'histoire de la marge, les taux de sédimentation atteignent leur maximum pendant cette période (*Marcano et al., 2013*). Pendant le Quaternaire supérieur, les intrusions du BCC dans le bassin du Bas-Congo diminuent fortement, ce qui se traduit par une diminution de la sédimentation et un déplacement des dépôts centres plus en amont de la pente (*Uenzelmann-Neben, 1988*).

#### I.3.3. Tectonique salifère

Le contraste de densité entre les dépôts évaporitiques Aptiens et les séries du Crétacé inférieur et du Tertaire, amènent le sel à migrer sous la surcharge sédimentaire, ce qui est à l'origine d'une forte tectonique salifère omniprésente dans notre zone d'étude (Fig. II-6). La formation évaporitique de **Loeme** agit comme une couche savon sur laquelle glissent les sédiments post-rift vers le bas de pente (*Marton et al., 2000; Brun et al., 2004; Fort et al., 2004*).

Les régions affectées par la tectonique salifère sont comprises entre la ride de Walvis (ou point chaud de *Tristan dan Cunha - Brownfield et Charpentier, 2006*) pour la partie méridionale, et la zone de fracture camerounaise pour la partie septentrionale. Elles se distribuent sur une zone de plus de 1500 km de long, avec des largeurs variables pouvant atteindre plus de 200 km (Fig. II-6). Ces deux zones de suture majeures délimitent le bassin salifère aptien (*Duval et al., 1991; Davison, 1999; Marton et al., 2000; Brownfield et Charpentier, 2006*).

L'intensité de la tectonique salifère intervient en lien étroit avec le taux de sédimentation (*Séranne et Anka, 2005*). La tectonique salifère a connu deux périodes d'activité majeure, marquées par un accroissement de la déformation dans la province du bassin du Bas-Congo (Fig. II-5) :

- La première intervient pendant l'Albien jusqu'au Cénomanien, lors du stade précoce de l'enfouissement et en réponse aux dépôts aggradants.
- La seconde intervient depuis l'Oligocène en réponse à la mise en place de l'éventail profond du Congo depuis le Néogène. Cette seconde période est de plus de forte intensité et engendre une déformation maximale depuis le Quaternaire (*Séranne et Anka, 2005*).



*Fig. II-6: Carte simplifiée de la province salifère aptienne au niveau de la marge angolaise. Carte modifiée de Marton et al. (2000), Hudec et Jackson (2004) et Guiraud et al. (2010).* 



Fig. II-7: Coupe régionale de la marge angolaise présentant les structures profondes du bassin (redessiné d'après Lentini et al., 2010). La coupe est localisée en Fig. II-6.

La tectonique salifère subdivise le bassin en trois domaines (Fig. II-7) :

### a. Le domaine de haut de pente en extension

Ce domaine est majoritairement dominé par la présence de failles de croissance normales syn-sédimentaires (*Brice et al., 1982*), s'enracinant sur le niveau de décollement évaporitique aptien (Fig. II-7). Ces failles compartimentent la zone en de multiples blocs basculés, ou demi-grabens (*MacHargue, 1990; Duval et al., 1991*), également appelés radeaux tectoniques (ou "*Rafts*"; *Brice et al., 1982*). L'épaisseur des dépôts évaporitiques est fortement amincie dans cette partie du bassin, ces séries mobiles ayant été largement remobilisées vers l'aval.

#### b. Le domaine en translation

Le déplacement latéral des séries post-salifères vers le bas de pente (Fig. II-7) est induit par le poids de la surcharge sédimentaire en amont. Le peu de déformation enregistré dans cette province est accommodé par la combinaison de failles normales conjuguées. Cette zone est marquée par la présence de nombreuses structures salifères d'extension, avec notamment la mise en place d'anticlinaux en dos de tortue (*turtle back* et mock *turtle anticline*; *Vendeville et Jackson 1992, a, b*). Quelques diapirs de sel isolés se retrouvent disséminés au sein de ce domaine.

#### c. Le domaine externe en compression

La partie externe, en bas de pente constitue la partie compressive de la marge. Elle est associée à une tectonique salifère vigoureuse (Fig. II-7; *Marton et al., 2000; Brun et Fort, 2004; Fort et al., 2004; Marton et al., 2004*). La zone en compression peut elle même être subdivisée en trois sous-ensembles en fonction du caractère morphologique de la tectonique salifère (Fig. II-6) :

# • Un domaine diapirique

Le déplacement latéral des sédiments post-rifts génère de nombreux diapirs en contexte compressif, présentant des morphologies diverses et complexes (voir la classification de *Warren, 2016*, p. 492). Dans ce domaine (Fig. II-6), les diapirs sont souvent comprimés, leur base étant déconnectée du sommet formant des glaciers, ou des langues de sel (*salt glacier, salt stocks* ou *salt sheets*). Des morphologies particulières en diapirs basculés (*squeezed Diapirs*; *Fort et al., 2004*) sont également observées. La couverture des diapirs est constituée de dépôts Plio-Quaternaires à miocènes dans les parties proximale et distale, respectivement.

Certaines séries anciennes pouvant aller jusqu'au Crétacé inférieur, sont soulevées en lien avec ces épisodes de compression salifère, produisant des dalles (*slabs*) avec des redressements importants près des diapirs. Le retrait du sel au niveau de la partie basale (*salt weld*) connecte localement les dépôts lacustres du Barrémien/Aptien pré-sel avec les sédiments post-sel du Crétacé supérieur.

#### • Un domaine de sel massif

La partie externe de la marge (Fig. II-6) présente des unités salifères continues verticalement (*salt canopy* ou *salt sheets*) associées à la translation des évaporites vers le bas de pente. Cette translation s'accompagne d'un épaississement du sel par empilement de plusieurs bourrelets compressifs (jusqu'à 3000 m) et de forts raccourcissements. Cette zone est globalement bien contraintes au niveau du pied de pente de l'éventail profond (*Marton et al., 2000; Guiraud et al., 2010; Brun et Fort, 2004*). La couverture sédimentaire est excessivement amincie dans ce domaine, avec des séries de quelques centaines de mètres d'épaisseur. Le front de chevauchement compressif se caractérise par une série de failles inverses (b*ack thrusts*) enracinées sur les canopées, qui marque la transition avec la plaine abyssale.

#### • Un domaine de murs de sel

La partie méridionale de la zone d'étude est caractérisée par une succession d'anticlinaux et de rides salifères (*salt anticline, salt ridge*; *Warren, 2016*, p.492) dont la longueur d'onde est de l'ordre de 15 à 20 km et l'amplitude de quelques centaines de mètres, orientées parallèlement à la pente (Fig. II-6; *Oluboyo et al., 2014*). La déformation syn-sédimentaire crée par ces structures est modérée. Celle-ci s'exprime par la création d'une série de biseaux (*Salt wedges*) dans les séries Néogènes des bassins intra-salifères.

#### I.3.4. Systèmes pétroliers

#### a. Sous le niveau de décollement salifère

Les systèmes pétroliers du bassin du Bas-Congo sont constitués de plusieurs niveaux superposés (*Beglinger et al., 2012*). Les niveaux Crétacés (**Bucomazi** et **Iabe**) sont matures thermiquement pour la génération d'hydrocarbures thermogéniques. Ces deux niveaux constituent les séries actuellement exploitées dans le bassin du Bas-Congo. La formation **Bucomazi** se situe dans la « fenêtre à huile » depuis la transition Crétacé/Tertiaire (*Burwood, 1999; Brownfield et Charpentier, 2006*). La formation évaporitique Aptienne fournit une couverture imperméable propice au piégeage/stockage des hydrocarbures sous le sel (Tableau II-1). Les processus de dysmigration vers la surface des

hydrocarbures des séries anté-salifères ne sont reportés que depuis l'Oligocène (*Cole et al., 2000*), période correspondant à la mise en place de la séquence progradante et la réactivation de la tectonique salifère (Fig. II-5). La formation **Pinda**, grâce à des valeurs de porosité importantes (Tableau II-1), peut jouer le rôle de roche réservoir pour les hydrocarbures des dépôts anté-salifères si ces séries sont mises en connexion avec les dépôts post-salifère.

#### b. Au dessus des dépôts salifères

La maturité de la formation marine **Iabe** est estimée au Tertiaire moyen (*Danforth et al., 1998; Brownfield et Charpentier, 2006*). Les formations Tertiaires **Landana** et **Malembo** ne sont pas suffisamment matures thermiquement pour donner lieu à une production d'hydrocarbures thermogéniques, mis à part dans certains cas particulier du domaine en extension (*Anka et al., 2013*). Cependant, ces formations présentent de bonnes propriétés de roches réservoirs et peuvent accueillir les hydrocarbures de la formation **Iabe**. Ils peuvent également agir comme des drains pour la migration des fluides vers le fond de mer. Les niveaux Plio-Quaternaire, constitués de grains fins représentent un excellent niveau de couverture de part leur très faible porosité.

Dans le domaine interne de la marge, les blocs basculés, les combinaisons de horsts et de grabens ainsi que les anticlinaux à dos de tortue (*Mock Turtle Back*) des bassins intra-salifères créent des fermetures structurales qui sont propices au piégeage des hydrocarbures. Ils constituent de nombreuses découvertes et confère en majeure partie le potentiel pétrolier du bassin du Bas-Congo.

Dans la province en compression, la tectonique salifère Aptienne complexifie la structure de la marge (Marton et al., 2000; Jackson et Hudec, 2009). La forme convexe des mini-bassins salifères ne leur octroie de structurales hydrocarbures. pas propriétés propices piégeage des au Cependant, le basculement des diapirs du bassin profond du Bas-Congo vers la pente leur confère une morphologie particulière. La très faible perméabilité des évaporites, associée à leur caractère ductile leur attribue cependant un fort potentiel de roche couverture. En fonction des configurations salifères, le piégeage des hydrocarbures sous les dômes de sel basculés est envisageable.

# II. Matériel et méthodes

# II.1. Imagerie spatiale

# II.1.1. Principe d'acquisition et fondamentaux du radar

La technique de l'imagerie radar (*Radio Detection And Ranging*) est une méthode d'acquisition active et non destructrice. Le radar envoie de l'énergie sous forme d'ondes électromagnétiques et mesure l'énergie rétrodiffusée par une surface vers le satellite (Fig. II-8). Les ondes électromagnétiques sont constituées d'un champ électrique et d'un champ magnétique orthogonaux. Les satellites décrivent des rotations orbitales longitudinales avec une période de l'ordre de **120 minutes** en passant par les pôles. La rotation de la Terre sur elle-même induit un décalage dans l'espace ce qui permet d'imager toute la surface du globe. Le radar à synthèse d'ouverture (SAR - *Synthetic Aperture radar*) opère en visée latérale et recueille les informations au cours de son déplacement depuis la plate-forme orbitale (*McCandless et Jackson, 2003*).





Le système SAR est sensible à la topographie qui induit des distorsions d'imagerie, cependant au niveau des surfaces océaniques celle-ci est inexistante et la surface peut être considérée comme plane. Il est possible de régler l'angle d'ouverture (angle entre la perpendiculaire de la surface terrestre et la direction du signal émis ; Fig. II-8), ce qui a un impact direct sur l'angle d'incidence (Fig. II-8;

angle entre l'incidence du signal reçu et la perpendiculaire à la surface terrestre). D'une manière générale, la quantité d'énergie rétrodiffusée décroît lorsque l'angle d'ouverture augmente.

Il existe différents modes d'acquisition qui permettent de régler la largeur de fauchée (Fig. II-8; largeur de la surface terrestre imagée au passage du satellite, variable de quelques km jusqu'à 400 km) et la résolution des images (taille du plus petit objet identifiable, dépendante de la taille du pixel). Les modes proposés par les agences spatiales sont des compromis entre ces deux paramètres. Améliorer l'un des deux affectera inévitablement l'autre.

Depuis le lancement de SEASAT en 1978 qui constituait alors le premier satellite SAR destiné aux utilisations civiles, le déploiement de satellites opérant la technique SAR se sont considérablement développés, de telle manière que aujourd'hui chaque portion sur notre Terre est imagée plusieurs fois par jour. Le domaine d'acquisition du radar opère dans le domaine des micro-ondes, i.e. infra-métrique avec des fréquences comprises entre 0.4 - 10 GHz (*Jackson et Apel, 2004;* Fig. II-9).



Fig. II-9: Spectre des ondes électromagnétiques. Illustration des différentes longueurs d'ondes et lien avec leur utilisation anthropique (modifié d'après le site internet de la NASA). Replacement du domaine des micro-ondes et des gammes de longueur d'onde utilisées par la technique SAR en fonction des différentes bandes. Caractéristiques en fréquence et longueur d'onde des différentes bandes définies au sein du domaine des «micro-ondes ».

La longueur d'onde utilisée a une incidence directe sur les objets imagés par le système. Ainsi, l'utilisation de différentes bandes permet d'enregistrer des informations différentes qu'il peut être intéressant de coupler (Fig. II-9). Les longueurs d'onde utilisées par le système SAR sont suffisamment importantes pour s'affranchir de la couverture nuageuse, ce qui constitue un des atouts majeurs de l'utilisation du radar et contrairement aux systèmes optiques (*Lacava et al., 2017; Lu et al., 2017*) le dispositif ne dépend pas des conditions d'ensoleillement et peut donc acquérir des images de jour, comme de nuit.

# II.1.2. Détection des hydrocarbures avec le système SAR

En domaine marin, le système SAR mesure la rétrodiffusion de la surface de la mer. Cette rétrodiffusion est fonction de la rugosité de la surface de l'eau, elle-même induite par le clapot sous l'action du vent (Réflexion de Bragg ; Fig. II-10a). La longueur d'onde moyenne du clapot permet à l'onde radar de rentrer en résonance et de renvoyer l'énergie vers le satellite. La rugosité de la surface de l'eau est susceptible de varier dès lors qu'une perturbation locale, comme par exemple par la présence d'un corps de viscosité différente de celle de l'eau libre, est présente à la surface de l'eau.



Fig. II-10: a. Principe de détection des hydrocarbures par imagerie satellitaire radar (inspiré d'après McCandless and Jackson., 2003; Garcia-Pineda et al., 2009). b. Extrait d'image satellite montrant la présence d'une anomalie de rétrodiffusion entre l'eau environnante (n°1) et une nappe de pétrole à la surface de la mer (n°2). c. Coupe sur les valeurs de rétrodiffusion de l'image radar au niveau de la nappe d'hydrocarbures, présentant une anomalie de rétrodiffusion dans la partie centrale.

La présence d'hydrocarbures à la surface de l'eau diminue considérablement la rugosité de surface (Johannessen et al., 2000; Espedal and Johannessen, 2000; Williams and Lawrence, 2002; Zatyagalova et al., 2007; Ivanov et al., 2007; Garcia-Pineda et al., 2009; Körber et al., 2014).

Aucune énergie n'est renvoyée vers le satellite en présence d'hydrocarbures, elle apparaît alors comme une tâche à faible rétrodiffusion sur les images SAR, affichée en noir par convention (Fig. II-10b). L'identification des nappes naturelles est directement dépendante de la différence de rugosité de surface entre l'eau non recouverte par l'huile, dite eau « libre » et l'eau recouverte d'hydrocarbures (Fig. II-10b, c).

# a. Critères de reconnaissance des émanations naturelles d'hydrocarbures

<u>Dimension :</u> La dimension des nappes est fonction de la vitesse de déplacement des eaux de surface ainsi que du débit d'hydrocarbures expulsés. Les longueurs de nappes observées varient de quelques centaines de mètres à plusieurs dizaines de kilomètres et les largeurs sont d'environ 2-300m.

<u>Morphologie :</u> La morphologie des nappes est induite par la direction des courants de surface ainsi que les vents, qui sont très variables et induisent des géométries sinueuses (Fig. II-11a, b, c). Pour les sites d'émanation voisins, les courants vont induire des déplacements de surface similaires, ce qui engendre des géométries de nappes semblables (Fig. II-11a, b, c). La similitude des objets constitue un critère important pour la reconnaissance des expulsions naturelles d'hydrocarbures.



Fig. II-11: Extraits d'images SAR montrant des évidences de suintements de pétrole avec des morphologies similaires a. RADARSAT (14.03.2003). b. ENVISAT WSM (25.02.2012). c. ENVISAT IMP (15.11.1998).

<u>Répétitivité :</u> Les émanations d'hydrocarbures sont récurrentes dans le temps et leurs signatures de présence à la surface de la mer sont retrouvent sur les images acquises successivement. Les hydrocarbures divergent à partir d'une zone d'apparition à la surface de la mer. La variabilité des courants de surface induit des orientations de déplacements de nappe différents au cours de temps. La superposition en carte des contours des nappes naturelles d'hydrocarbures crée des motifs divergents « en fleur » et permet d'identifier les zones d'apparition des hydrocarbures à la surface de la mer à partir des contrales. Les émanations d'hydrocarbures correspondant à un phénomène

récurrent dans le temps, la répétitivité des objets est un critère déterminant pour identifier les suintements naturels des autres phénomènes.

# b. Limitations de la technique de détection des hydrocarbures avec le système SAR

<u>Effet du vent :</u> La détection des hydrocarbures est directement dépendante des conditions océano-météorologiques, elle est possible uniquement au sein d'une « fenêtre de vent ». Dans le cas d'un vent trop faible, la rugosité de surface de l'eau « libre » sera nulle, ce qui créera un contraste de rétrodiffusion trop faible pour identifier les nappes (Fig. II-12; *Bern, 1992; Espedal and Wahl., 1999; Brekke et Sölberg, 2005; Skrunes, 2014*). Dans le cas d'un vent trop fort, la proportion d'énergie réfléchie est trop importante au niveau des zones affectées par la présence d'hydrocarbures pour créer un contraste de rugosité avec les hydrocarbures (Fig. II-12; *Espedal et Johannessen, 2000*). En pratique, les limites de détectabilité sont mal contraintes car différents paramètres (viscosité, l'épaisseur de la nappe, température) peuvent les faire varier (*Lammoglia, 2012*). Cependant, il est admis que la détection est possible entre 3 et 7 m.s<sup>-1</sup> pour les hydrocarbures issus d'émanations naturelles.



Fig. II-12: Illustration de la dépendance des conditions océano-météorologiques sur la détection des nappes d'hydrocarbures à la surface de l'eau par imagerie satellitaire radar.

<u>Épaisseur</u>: L'atténuation des ondes capillaires est possible pour des nappes d'épaisseur minimum estimée à 0,1  $\mu$ m (*Gade and Alpers, 1998; De Beukelear et al., 2003; Brekke and Sölberg, 2005*). Les nappes plus fines ne sont pas détectées par le système radar.

<u>Angle d'ouverture :</u> Les angles d'ouverture propices à une bonne imagerie sont compris entre 20 et 70° par rapport à la position du nadir. Les acquisitions proches du nadir (<20°) ne permettent pas un bon replacement des objets dans l'espace. La quantité d'énergie rétrodiffusée décroît avec l'augmentation de l'angle d'incidence, au-delà de 70° les angles d'incidence sont trop forts pour que la quantité d'énergie rétrodiffusée soit significative.

Longueur d'onde : Les hydrocarbures ne sont pas détectés de la même manière selon les longueurs d'onde utilisées (*Gade et al., 1998*). Les petites longueurs d'onde, en particulier les bandes **X** et **C** sont les plus efficaces pour détecter les hydrocarbures liquides (Fig. II-13). Le couplage de données SAR de différentes longueurs d'onde permet d'observer les variations d'épaisseurs au sein des nappes et donc d'améliorer les quantifications du volume de pétrole présent (*Dubucq et al., 2016; Angeliaume et al., 2017*).



*Fig. II-13 : Performance de détection des hydrocarbures en fonction de la longueur d'onde utilisée (Gade et al., 1998).* 

#### c. Pièges d'interprétation et sosies d'émanation naturelles d'hydrocarbures

Les « sosies » correspondent à tous corps étrangers présents à la surface pouvant être interprétés à tort, comme des nappes naturelles d'hydrocarbures. Les valeurs de rétrodiffusion ne permettent pas de différencier les nappes d'hydrocarbures et les sosies car elles sont similaires, la reconnaissance des expulsions naturelles de fluides est effectuée uniquement à partir de la géométrie des objets.

<u>Nappes biogéniques :</u> Les nappes biogéniques correspondent à des zones de prolifération planctonique (*Algual Blooms*) à la surface de la mer. Ces développements présentent généralement un aspect filamenteux dont les limites de l'objet sont difficilement discernables (Fig. II-14a).

Elles se répartissent (i) au niveau des zones de plongement des eaux de surface vers les profondeurs (*downwelling*), qui constituent des zones de concentration des matières flottantes et (ii), au niveau des zones de remontée des eaux profondes (upwelling) qui apportent des nutriments vers la surface.

<u>Ondes internes</u>: Les ondes internes (ou « Solitons », *Jackson et al., 2013*) sont des oscillations parcourant les océans à la surface de la mer. On les retrouve sous la forme de train d'ondes parallèles (Fig. II-14b). Le relief engendré par les vagues crée une face vers le satellite (liseré blanc, réfléchissant) et une face à l'opposé (liseré noir car peu d'énergie renvoyée).

<u>Cellules de pluie :</u> Les cellules de pluies sont liées à des phénomènes atmosphériques qui perturbent localement les vents et engendrent des hétérogénéités de rugosité à la surface de l'eau (Fig. II-14c). Trois types d'anomalies de rugosité sont caractéristiques des cellules atmosphériques, (i) une diminution dans les régions centrales, (ii) une augmentation au niveau des zones périphériques et (iii) une diminution au niveau de la zone de collision entre la masse d'air perturbée et non perturbée.

<u>Fronts atmosphériques :</u> Les fronts atmosphériques correspondent à des chocs frontaux entre deux masses d'air et résultent en une diminution locale de la rugosité de surface (Fig. II-15). Ces fronts atmosphériques peuvent atteindre plusieurs dizaines, voire une centaine de kilomètres et prennent des formes curvilignes.

<u>Zones de faibles vents :</u> Lorsque le vent est trop faible, la rétrodiffusion d'énergie devient impossible et génère de larges zones noires, à faible rétrodiffusion (Fig. II-15). La dimension de ces zones est variable, mais généralement plus importante que les anomalies associées aux nappes d'hydrocarbures.

<u>Pollutions anthropiques :</u> Les pollutions associées aux activités humaines peuvent provenir des bateaux où des infrastructures pétrolières. Le déballastage des cales de bateaux est facilement reconnaissable grâce au point à très forte rétrodiffusion crée par le bateau (blanc), à la terminaison des nappes d'hydrocarbures (Fig. II-14d). La géométrie de la nappe de pétrole est généralement rectiligne suivant la trajectoire du bateau à cause de l'effet de vitesse. Les fuites d'hydrocarbures depuis les infrastructures pétrolières peuvent provenir des plates-formes et des conduits sous-marins (*pipes*) destinés à l'acheminement des hydrocarbures. La position des infrastructures est connue grâce au référencement mondial et de la même manière que les bateaux, les plates-formes produisent un point diffractant sur les images radar (Fig. II-14e), ce qui permet de les discerner des fuites naturelles.



Fig. II-14: Exemples de « sosies » visibles à la surface de la mer sur les images satellites. a. Développement de films alguaires. b. Trains d'ondes successifs associés aux ondes internes. L'image a été acquise au moment d'un choc frontal entre deux ondes internes. c. A gauche : Formation d'une cellule de pluie. A droite : Extrait d'une image radar Envisat WSM au niveau d'une cellule de pluie. d. Déversement volontaire d'hydrocarbures depuis une embarcation maritime. e. Déversement d'hydrocarbures depuis une plate-forme pétrolière.



Fig. II-15: Image Envisat WSM acquise le 06 Juin 2012 présentant un grand nombre de suintements naturels d'hydrocarbures ainsi que de nombreux sosies.

#### d. Méthode de pointé : manuel vs automatique

Depuis le lancement des premiers satellites dédiés à l'observation de la surface de la Terre (en particulier SEASAT lancé en 1978 - Jackson et Apel, 2004) de nombreuses équipes de recherche ont utilisé les données spatiales pour identifier les épanchements naturels d'hydrocarbures. Avec l'accroissement du volume de données disponibles, la méthode d'analyse des images revêt un enjeu majeur pour l'identification de ces nappes. Ainsi, des algorithmes de reconnaissance automatique des nappes d'hydrocarbures ont été élaborés par le milieu industriel et académique. Ces algorithmes se basent sur différents paramètres propres aux objets visibles sur les images satellites, tels que : (1) les valeurs radiométriques, (2) le contraste de rétrodiffusion avec l'eau « libre », (3) leur continuité/ discontinuité, (4) leur morphologie, (5) leur dimension, etc. La distinction entre les nappes d'hydrocarbures et leurs sosies demeure cependant toujours délicate. Malgré les efforts déployés pour développer des outils de détection automatique depuis une trentaine d'années (e.g., Bern et al., 1992; Brekke et Solberg, 2005; Karantzalos et Argialas 2008; Garcia-Pineda et al., 2009; Fiscella et al., 2000; Suresh et al., 2013), aucune méthode ne permet à ce jour de distinguer de façon automatique les nappes naturelles d'hydrocarbures de leurs sosies. Nous avons donc opté pour une cartographie manuelle des nappes qui permet alors d'attribuer un « rang » pour chaque objet identifié en fonction des paramètres géométriques et radiométriques. La technique de pointé manuel qui consiste à carter les contours des objets avec des outils de cartographie (TNT Mips, ArcGIS ; Fig. II-16a, b).



Fig. II-16: Cartographie des nappes d'hydrocarbures. a. Extrait d'une image satellite ERS sans cartographie. d. Extrait d'une image satellite ERS avec cartographie.

# II.1.3. Données spatiales

Les données utilisées dans cette étude sont issues des archives disponibles au sein des données patrimoniales de Total ainsi que d'images mises à disposition par l'Agence Spatiale Européenne (*ESA*). Actuellement, le nombre d'images radar augmente constamment avec le nombre de satellites en orbite

autour de notre planète, ce qui s'accompagne également de l'augmentation de la fréquence de revisite. Ainsi, la couverture en images radar utilisé dans cette étude est en constante augmentation (Fig. II-17).



Fig. II-17: Distribution temporelle des acquisitions radar, tous capteurs confondus.

Parallèlement à la variabilité temporelle, la couverture en image varie fortement à travers la zone d'étude avec une densité d'image variant entre 25 jusqu'à 150 images par zone (Fig. II-18).



Fig. II-18: Carte de densité de couverture en images radar disponible sur la zone d'étude.

# II.2. Courantométrie

Pour quantifier les déplacements des masses d'eau, les mesures ADCP (*Acoustic Dopler Current Profiler*) utilisent le déplacement des particules dans l'eau. Les mesures de vitesse et de direction par ADCP utilisent l'effet Doppler en émettant des ondes ultrasonores dans l'eau et en observant le décalage en fréquence de la réponse acoustique (Fig. II-19a; *Rowe et Yound, 1979, Gordon et RDI, 1996*).



Fig. II-19: a. Principe de mesure de vitesse de déplacement avec l'effet Doppler. Le signal transmis pendant la période Tp avec la fréquence f est reçu avec un décalage en fréquence associé à la vitesse de déplacement des particules. La source est une onde acoustique à très haute fréquence. b. Dispositif d'acquisition de mesures courantométriques à travers la colonne d'eau utilisée pour le mouillage ADCP 1 (extrait de rapports internes à Total, modifié d'après Fugro, 2009).

Les appareils utilisés dans cette étude sont développés par *RDI instruments*. Ils sont constitués d'une combinaison de 3 capteurs destinés à mesurer le déplacement des particules suivant les 3 trois composantes (X, Y, Z). Ces mesures requièrent une certaine turbidité de l'eau, qui est largement atteinte dans la majorité des marges continentales mondiales à l'exception de certaines zones isolées dans le Pacifique. Les appareils utilisent différentes gammes de fréquences, globalement comprises entre 1200 kHz et 75 kHz, qui ont un effet sur la pénétration des ondes dans l'eau et sur la résolution des mesures. Au niveau de la tranche d'eau superficielle et dans notre zone d'étude, les capteurs ADCP mesurent le déplacement des particules à travers un intervalle qui varie en fonction de la fréquence utilisée (Fig. II-19b). Parallèlement aux systèmes ADCP, les courantomètres utilisés à des profondeurs plus importantes sont constitués de capteurs fixes qui mesurent la vitesse de rotation d'une hélice pour quantifier la vitesse de déplacement de l'eau. Cette hélice est fixée à une aile verticale qui permet quant à elle d'établir l'orientation du dispositif de mesure (courantomètres Aanderaa).

# II.3. Géophysique marine

# II.3.1. Principe d'acquisition

La géophysique marine utilise le mécanisme de propagation des ondes acoustiques pour imager le fond marin et le sous-sol. Le principe d'acquisition sismique dans le domaine marin repose sur l'émission brutale d'une quantité d'énergie dans l'eau sous la forme d'air comprimé. Les récepteurs sont constitués d'une (ou plusieurs) série(s) de capteurs de pression qui vont enregistrer la réponse acoustique de l'énergie émise, qui peut alors être réfléchie par les différentes interfaces lithologiques. Les mesures des temps de réflexion des ondes réfléchies ainsi que la puissance d'énergie rétrodiffusée sont utilisées comme technique d'imagerie du sous-sol (Fig. II-20).

Dans les sédiments, la puissance de l'énergie est fonction du contraste d'impédance entre deux couches sédimentaires, elle-même dépendante de la vitesse de propagation et de la masse volumique des couches sus et sous-jacentes. Couplé à un géo référencement grâce à l'aide de GPS différentiels, le repositionnement des temps enregistrés fournit une « échographie » du sous-sol.



Fig. II-20: Schéma d'illustration du principe d'acquisition de la sismique réflexion multitraces (modifié d'après Petersen et al., 2010).

# II.3.2. Données utilisées

#### a. Données de sismique 3D

La province du bassin du Bas-Congo est connue pour avoir un fort potentiel pétrolier depuis la découverte de plusieurs champs proches des côtes (Cabinda), puis plus tardivement dans le bassin profond (Girassol, Bloc 17). La découverte du potentiel pétrolier de la zone a été suivie de l'acquisition d'un jeu de données hors normes, avec notamment, plusieurs acquisitions de sismique 3D (Fig. II-21). Les blocs 3D permettent d'obtenir une image en 3 dimensions de la subsurface, permettant ainsi l'observation des structures dans toutes les directions et en tout point.

Les données de sismique 3D utilisées sont constituées de deux blocs. Seules les données acquises avec un faible déport entre la source et les récepteurs sont disponibles. Le premier consiste en un jeu de données « anciennes » acquises pendant les années 1990. Ces données couvrent la majeure partie du bassin profond du Bas-Congo mais seule une partie a été utilisée dans le cadre de cette étude (encadrée en rouge ; Fig. II-21). Elles fournissent une imagerie de résolution modeste (50 m) avec cependant une pénétration de 8 à 10 secondes « temps double » (Fig. II-22). Elles permettent notamment d'observer l'intervalle sédimentaire post-salifère. Le second consiste en une acquisition sismique 3D plus récente (2007) au niveau d'une zone plus focalisée (encadré en noir ; Fig. II-21). La résolution est bien meilleure avec une taille de pixel de 12.5 m<sup>2</sup> (Fig. II-22). Les données ont été coupées à 4.5 secondes temps double à partir du niveau de la mer, soit un temps d'enregistrement d'environ 2.5 secondes sous le fond de mer.



Fig. II-21: Présentation des données sismiques et bathymétriques disponibles dans la zone d'étude. Les acquisitions de sismique 3D se recoupent spatialement. D'une manière générale, l'extension spatiale des blocs sismiques décroît avec l'augmentation de la qualité des données.

# b. Données 2D haute résolution

Le jeu de données sismiques 2D correspond à des lignes de sondeur de sédiments (polygone gris ; Fig. II-21) issues de deux campagnes réalisées pour la reconnaissance des instabilités de fond de mer et des zones susceptibles d'accueillir des installations pétrolières. Le système d'acquisition est basé sur un véhicule sous-marin mobile et autonome qui gère sa profondeur en fonction des variations bathymétriques (AUV - *Autonomous Underwater Vehicule* ; voir *Wynn et al., 2014*). Le système embarque à la fois la source acoustique et les récepteurs. Les données sont donc affectées par la présence d'une bande à signature constante associée à

l'enregistrement de l'arrivée directe des ondes par les récepteurs situés seulement à quelques mètres de la source. Pour cette étude, nous disposons d'environ 5 500 km de données 2D de haute résolution (~30 cm ; Fig. II-22) qui s'organisent suivant un quadrillage dont les lignes sont espacées de 175 m parallèlement à la pente régionale et de 1000 m perpendiculairement.

Les données sismiques disponibles présentent des gammes de fréquence très hétérogènes, comme par exemple entre la sismique 3D « ancienne » et le sondeur de sédiments. Le couplage des différentes données permet une bonne corrélation entre les dimensions des objets visibles et un bon replacement dans l'espace lors du passage d'un jeu de données à l'autre (Fig. II-22).

#### c. Imagerie fond de mer

L'imagerie du fond de mer consiste à effectuer des relevés topographiques des reliefs sous-marins, par rapport à un niveau océanique de référence. Divers systèmes issus des techniques d'imagerie géophysiques permettent d'avoir des informations sur le fond de mer. Dans notre étude, les relevés bathymétriques sont issus de plusieurs jeux de données (Fig. II-23):

- Premièrement, les sondeurs multifaisceaux, équipés sur les navires de reconnaissance océanographiques permettent d'obtenir une carte du fond de mer par l'émission d'impulsions acoustiques sous la forme de faisceaux. Le système acquiert des données sur une bande dont la largeur dépend de l'angle d'incidence, ainsi que de la distance entre le système d'acquisition et le fond de mer. Les données de sondeurs multifaisceaux sont issues de trois jeux de données résolument différents. Le premier, acquis avec un dispositif situé sous un bateau d'exploration pétrolière, consiste en une imagerie régionale (~16 000 km<sup>2</sup>) avec une grille à 12.5 m (pointillés noirs ; Fig. II-21). Les deux autres ont été acquis en 2009 par Fugro, puis en 2011 par C&C, grâce à une source proche du fond de mer fixée sur l'appareil AUV, couplée aux acquisitions de sondeur de sédiments. Les fréquences d'acquisition sont de 200 kHz avec une résolution de 1.5 m pour le jeu de données acquis par C&C et de 3 m pour le jeu de données acquis par Fugro (Fig. II-22).
- Ensuite, le pointé des premières arrivées de la sismique permet d'obtenir des informations sur les temps de propagation entre le fond de mer et le système d'acquisition, qui grâce à une loi conversion linéaire (V<sub>p</sub>= 1525 m.s<sup>-1</sup> dans l'eau de mer) permet d'obtenir la profondeur du fond marin. La résolution du jeu de données dépend donc la résolution de la sismique qui varie entre 12.5 m et 50 m dans cette étude (Fig. II-23).
|              |                   | Section d'Illustration  | Dispositif<br>d'acquisition | Espacement<br>entre les<br>lignes (m) | Pénétration<br>acoustique<br>maximale | Fréquence        | Résolution<br>verticale | Etendue<br>spatiale<br>des données  |
|--------------|-------------------|---|-----------------------------|---------------------------------------|---------------------------------------|------------------|-------------------------|---|
| le sédments  | Fugro<br>(2009)   | Ondes directes  | EdggeTech<br>Chirp          | 175<br>x<br>1000                      | 60m<br>(max: 80m)                     | 2 - 8 kHz        | ~30 cm                  | Longueur<br>totale:<br>3946 km  |
| Sondeurs o   | C&C<br>(2011)     | 100 ms<br>TWT Amplitude sismique<br>Filtre en enveloppe<br>Faible Elevé | EdggeTech<br>Chirp          | 175<br>x<br>1000                      | 70m<br>max: 180m                      | 1.5 - 4.5 kHz    | ~10 cm                  | Longueur<br>totale:<br>1515 km  |
| Ciemicuto 3D | "récente" (2007)  | Fond de mer<br>500 ms<br>TWT<br>3 km<br>0                               | Sismique<br>multi-trace     | 12.5<br>x<br>12.5                     | 0 - 4.5 s                             | ~ 20 - 100<br>Hz | ~ 4m                    | 3 300<br>km²  |
| Ciemicuto 3D | "ancienne" (1990) | 23<br>TWT<br>10 km<br>10 km   | Sismique<br>multi-trace     | 50<br>×<br>50                         | 10,2s                                 | ~ 10 - 60<br>Hz  | ~ 20m                   | Total:<br>37 000<br>km <sup>2</sup><br>Utilisé:<br>6 200<br>km <sup>2</sup> |

Fig. II-22: Inventaire des différents jeux de données sismiques disponibles dans le bassin du Bas-Congo et détails des caractéristiques. Les rectangles noirs correspondent à la position de la section sismique au dessus. Le pointé des horizons permet un replacement en profondeur.

		Extrait 1: carte des pentes (dip)	Extrait 2: Zoom	Résolution (m)	Surface couverte (m)
ultifaisceaux	Fugro		0 · · ·	3 m	610 km²
	୧୫୯	2.5 km	1 km	1.5 m	220 km²
ел	Données	Réfléctivité: fréquence: 120 kHz		3 m	830 km <sup>2</sup>
étri	supplém.	Side Scan Sonar: fréquence: 410 kHz		0.9 m	830 km <sup>2</sup>
Bathym	Régionale	2.5 km		Pixel 12.5 m	16 000 km²
Premières arrivées	Sismique 3D "récente" (2007)	2.5 km	1 km	Pixel 12.5 m	3 300 km²
	Sismique 3D "ancienne" (1990)	2.5 km	* 1 km	Pixel 50 m	Total: 37 000 km <sup>2</sup> Utilisé: 6 200 km <sup>2</sup>

Fig. II-23: Caractéristiques des différentes données bathymétriques disponibles. Les extraits des différents jeux de données se localisent au niveau d'une zone commune, permettant ainsi une comparaison de la qualité des données à la même échelle.

### d. Données de réflectivité et sonar à balayage déporté

Le sonar à balayage latéral utilise les propriétés de rétrodiffusion acoustique du fond de mer. Ce système enregistre l'énergie de retour qui est fonction de l'impédance acoustique entre l'eau et les sédiments du fond marin. Ce système acquiert également des données sur une bande dont la largeur est variable en fonction de l'angle d'ouverture et de la distance avec le fond de mer. La quantité d'énergie rétrodiffusée est à pondérer en fonction de l'angle d'incidence. Dans notre étude, les données de réflectivité sont issues des deux jeux de données haute résolution (C&C et Fugro), acquis avec un système d'émission modulable en fréquence, centré sur les fréquences dominantes de 120 kHz et 410 kHz. Ces deux modes permettent une résolution de 3 et 0.9 m respectivement. La pénétration des données de réflectivité dans les sédiments varie en fonction de la fréquence d'acquisition, mais reste relativement faible sur ces jeux de données haute fréquence, soit quelques centimètres.

#### II.3.3. Interprétation des données sismiques

#### a. Exploitation des données sur station

L'analyse et l'exploitation des données de sismique 3D ont été réalisées à partir du logiciel *Sismage* développé et mis à disposition par Total (*Guillon et Keskes, 2004*). Le travail de pointé sismique en 3D s'effectue par la sélection manuelle d'une, ou de plusieurs, traces sismiques à un temps donné. Ces traces sont ensuite propagées automatiquement en 3D à travers le cube de données. Cette propagation crée une surface correspondant à la carte du réflecteur. Le logiciel tente de corréler, trace par trace, les signaux ayant les mêmes propriétés que la trace sélectionnée. Cette propagation se base sur des critères de semblance de la trace pointée tels que l'amplitude. L'utilisateur dispose de moyens de gestion pour cette propagation, notamment en ajustant la fenêtre d'amplitude (*threshold*) et la fenêtre de corrélation verticale (*ms*). Classiquement, la propagation ne fournit pas de cartes parfaitement continues à cause des variations locales d'amplitudes et les cartes générées sont parsemées de zones vides. Une interpolation entre deux traces suffisamment proches (10 à 15 traces maximum pour ne pas fausser la propagation) permet de palier au problème et de fournir des cartes continues. Ces horizons servent de base pour les interprétations sismiques et sont réutilisés pour produire des cartes d'attributs sismiques.

#### b. Les filtres et attributs sismiques

#### • Attributs géométriques

<u>Carte isochrones :</u> Les cartes isochrones correspondent à la représentation des horizons sismiques sous forme de cartes (Fig. II-24a). Il s'agit de la représentation des horizons sismiques la plus simple, où la localisation géoréférencée (x, y) est affichée en fonction de la profondeur (z). Le terme isochrone est spécifique à l'interprétation sismique et correspond à une surface stratigraphique (réflecteur) où les sédiments ont été déposés au même moment, la surface correspond donc à un marqueur temporel.

<u>Carte iso-contours :</u> Les cartes d'iso-contour permettent d'extraire les lignes de même profondeur à partir de n'importe quelle surface (Fig. II-24b). Ces cartes sont particulièrement utiles pour illustrer les

variations de profondeur. L'intervalle est déterminé par l'utilisateur, mais reste limité par la résolution des données.

<u>Carte des pentes</u>: Il s'agit de la dérivée des valeurs en isochrones. Les fortes variations de position verticale, quelles soient positives ou négatives produisent de fortes pentes qui seront mises en évidence avec ce mode de représentation. La carte des pentes (*dip*) présente une information de texture qui permet de mettre en évidence des variations verticales (z) de niveau (Fig. II-24c). Ainsi, ces cartes de pentes font ressortir très distinctement les failles où les surfaces d'érosion, mais ne permettent pas une bonne représentation de la position en profondeur des objets.

<u>Azimut</u>: Cet attribut correspond à la direction de la plus forte pente locale (Fig. II-24d). Cette valeur est normalisée par rapport à la pente régionale afin de faire ressortir des variations de pendage sur un intervalle déterminé par l'utilisateur.

<u>Courbure</u> : La courbure (*curvature*) décrit l'angle à partir duquel la pente de l'horizon est déviée par rapport à une droite (tangente), elle mesure le taux de variation angulaire de l'horizon (Fig. II-24e ; *Roberts, 2001*). Les valeurs sont positives dans le cas d'une déviation vers le bas (courbure positive par rapport au cercle osculateur) et négatives dans le cas d'un rétablissement vers l'horizontal.

<u>Chemins de drainage</u> : L'attribut chemin de drainage ("*Draining path*") est issu des méthodes d'analyses hydrographiques des bassins versants et permet d'identifier le sens d'écoulement de fluides le long d'une surface (Fig. II-24f). Les anticlinaux et crêtes sont identifiés comme de bons candidats pour les chemins de drainage. Les fortes valeurs correspondent à de larges zones de captage.

### • Attributs physiques

<u>Amplitude</u>: Les données en amplitude représentent la force de réflexion, ou le contraste d'impédance acoustique qui caractérise l'interface entre deux unités sédimentaires (Fig. II-24g). Les valeurs en amplitude correspondent au mode de représentation le plus courant pour l'illustration des lignes sismiques. Les fortes valeurs sont caractéristiques d'un fort contraste d'impédance sismique entre deux unités, soit une forte variation de la vitesse de propagation des ondes P entre le milieu A et le milieu B et/ou une forte variation de la masse volumique. Les fortes amplitudes positives marquent un fort contraste entre les produits  $\rho *Vp$  ( $\rho$  = masse volumique, Vp = vitesse des ondes p). Les fortes amplitudes négatives marquent un contraste d'impédance négatif, donc une valeur  $\rho$  et/ou Vp plus faible pour le milieu sous-jacent. D'une manière générale, les vitesses sismiques ainsi que les densités augmentent au cours de l'enfouissement et de la compaction. Les valeurs d'amplitudes sont généralement positives.



Fig. II-24: Compilation des attributs sismiques de surface utilisés dans cette étude.

<u>Cohérence</u> : La cohérence mesure le degré de corrélation en amplitude entre deux traces voisines (Fig. II-24h). Le calcul de corrélation est effectué sur une fenêtre fixée par l'utilisateur. Ce mode de représentation permet de mettre en avant les discontinuités lithologiques en termes d'amplitude. La cohérence correspond à l'attribut classiquement utilisé pour représenter les failles.

<u>L'enveloppe</u> : L'attribut « enveloppe » est obtenu à partir du calcul de la moyenne RMS (*Root Mean Square* = Racine des moyennes au carré) de l'amplitude du signal sismique, calculé sur une fenêtre glissante. Même si la visualisation des données est parfois facilitée avec cet attribut, les cartes d'amplitudes RMS sont de moins bonne résolution que celles de l'amplitude, du fait que l'on considère l'enveloppe du signal et non les traces sismiques. Dans notre étude, nous avons utilisé les données en amplitude pour le travail de pointé sismique sur les données de sondeur de sédiments et l'attribut en enveloppe pour les illustrations de ces données.

<u>Le chaotisme (iso5) :</u> Le chaotisme mesure les variations de continuité des surfaces. Les horizons perturbés, présentant de faible continuité présenteront de fortes valeurs de chaotisme. Ce calcul s'effectue sur une fenêtre de lissage, celle-ci détermine la précision de l'extraction et également la taille des corps extraits. Le seuil de lissage est à déterminer en fonction du type d'objet recherché. Une valeur trop forte aura tendance à regrouper plusieurs objets et à l'inverse, des valeurs trop faibles auront tendance à séparer des objets uniques en plusieurs petits corps.

### c. Cartes de sommation

<u>Isopaques</u> : Les cartes isopaques sont calculées à partir de l'épaisseur sédimentaire entre deux horizons pointés au préalable. Elles permettent en particulier d'identifier les variations d'épaisseur des dépôts sur un intervalle de temps et donc d'identifier la position des dépôts centres.

<u>Amplitude RMS :</u> Les cartes de sommation d'amplitudes RMS (*Root Mean Square*) sont générées à partir de la somme de la racine carrée des amplitudes au carré, divisé par le nombre d'échantillons. L'intervalle de calcul peut être effectué sur une fenêtre constante, où délimité par deux horizons. Ces cartes révèlent les fortes variations d'impédance acoustiques à travers les contrastes alternativement positifs et négatifs (*Brown, 2011*). D'une manière générale, plus les contrastes d'impédance acoustique sont importants, plus les valeurs des cartes d'amplitudes RMS seront fortes. Cet outil est largement utilisé comme un indicateur direct de présence d'hydrocarbures (DHI - *Direct Hydrocarbon Indicator ; Chopra et Marfurt, 2008*).

Le logiciel Sismage permet de combiner plusieurs attributs sismiques, notamment en appliquant une transparence. Cette combinaison peut parfois faciliter l'interprétation des données et l'identification de certains objets.

# II.4. Carottage géochimique en fond de mer

### II.4.1.Principe d'échantillonnage

Notre étude repose également sur une collecte d'analyse de données géochimiques issues de carottages en fond de mer. Les techniques de carottage consistent à prélever des sédiments non-indurés au niveau des premiers mètres de sédiments au fond de la mer. Le système de prélèvement est composé :

- d'un lest d'environ 1000 kg qui permet au carottier de s'enfoncer sous son propre poids dans les sédiments,
- d'une sonde pilote qui permet du déclencher le dispositif et libérer le carottier lorsque celle-ci atteint le fond de mer,
- du tube de carottage destiné à accueillir les sédiments prélevés. L'extrémité du tube est dotée d'un piston pour évacuer l'air contenu dans le carottier.

La gravité constitue le moteur de la technique d'échantillonnage (*Emery and Dietz, 1941*) qui utilise la chute libre du dispositif comme méthode de pénétration des sédiments (Fig. II-25). Le carottier est plus lourd que les sédiments et s'enfonce son sous propre poids. Le piston assure une bonne pénétration des sédiments dans la carotte. Les sédiments piégés à l'intérieur du carottier sont alors remontés vers la surface (Fig. II-25).

Cette technique est utilisée pour procéder à un échantillonnage des premiers mètres de sédiments. Les échantillonnages sont replacés dans l'espace grâce à un système de positionnement par GPS différentiel (DGPS) ce qui permet une localisation à environ 5 m.

Les prélèvements des carottes, de même que les analyses géochimiques, ont été conduits par TDI-Brooks à travers différentes campagnes d'échantillonnage entre 1999 et 2010 (*https://www.tdi-bi.com/our programs/west africa/west-africa main.htm*). Les profondeurs de pénétration sont limitées aux premiers mètres de sédiments (~5 m) avec la technique des carottiers gravitaires.



Fig. II-25: Système de prélèvement des sédiments superficiels avec la technique de carottage à piston (modifié d'après le site internet de TDI Brooks).

Dans notre zone d'éude, ces analyses géochimiques menées sur les carottes gravitaires ont été effectuées sur une succession verticale de sections de carottes de 20 cm. La position des carottes se distribue de manière assez homogène sur l'ensemble du bassin du Bas-Congo, à l'exception de la province interne du bassin (Fig. II-26; voir la distribution géographique totale sur *https://www.tdi-bi.com/our\_programs/\_west\_africa/west-africa\_main.htm*). La limite distale de répartition des points de carottage se situe au niveau de la limite d'influence de la tectonique salifère. Parmi les 490 points de carottage effectués, 300 se localisent au niveau de notre zone d'intérêt (Fig. II-26).

# II.4.2. Analyses par chromatographie

Le principe de chromatographie consiste à séparer les différents éléments contenus dans les échantillons et d'en estimer les quantités par unité de volume. La séparation des particules lourdes étant plus longue que pour les composés légers, leur temps de rétention est différent et permet de discriminer les proportions de chaque composé organique présent.

### a. Gaz en tête de carottier

Les analyses des gaz en tête de carottier (*Headspace gas*) sont basées sur la technique d'*Abrams et Narimanov, (1997).* Elles fournissent des informations sur la composition des gaz ( $C_1 - C_5$ ) au niveau de la tête de carotte.



Fig. II-26: Distribution géographique des points d'échantillonnage fond de mer, destinés à l'identification d'hydrocarbures grâce aux analyses géochimiques.

### b. Carbone organique total

Le TOC (*Total Organic Carbon*) correspond à la somme de tous les composés organiques ayant pu être séparés par chromatographie. Classiquement, on considère que les composés extractibles sont compris entre  $C_1$  et  $C_{15}$ .

#### c. Résidus du mélange complexe

Les mesures des composants résiduels (UCM - *Unresolved Complex Mixture*) correspondent à la charge supplémentaire en hydrocarbures ne pouvant pas être séparée par la technique de la chromatographie. La proportion de la matière non-extractible est généralement composée de longues chaînes de carbone ( $C_{15+}$ ).

#### d. Total scanning fluorescence (TSF)

La TSF est obtenue par spectrométrie et renseigne sur les composés organiques contenus dans la carotte. Les analyses consistent à irradier les sédiments avec des rayons ultraviolets dont les longueurs d'onde sont comprises entre 200 à 500 nm et à mesurer la réponse spectrale sur ces longueurs d'ondes. Les hydrocarbures, en particulier les composés aromatiques, absorbent et réémettent les UV, ce qui permet d'utiliser l'analyse de la fluorescence comme traceur/marqueur de présence d'hydrocarbures lourds. Deux paramètres sont essentiels pour évaluer la présence d'hydrocarbures :

-Le ratio  $\mathbf{R}_1$  correspond au rapport entre les valeurs des spectres en émission (EM) et en excitation (ES ; *Abrams, 2005; 2013*).

 $-I_{max}$ : correspond à la valeur d'intensité maximale de fluorescence pour les valeurs du spectre d'émission (EM) et d'excitation (ES). Plus cette valeur est élevée, plus la certitude de présence d'hydrocarbures lourds dans la carotte augmente.

Il est possible d'estimer la valeur du °API des huiles originelles, présentes dans les réservoirs, en utilisant une relation linéaire avec le rapport  $\mathbf{R}_1$  (Équation 13 ; Barwise and Hay, 1996):

 $^{\circ}$  API = -10,1\*R<sub>1</sub> + 59,8

Équation 13 : Relation entre le rapport  $R_1$  et le °API des huiles originelles.

#### e. Analyse des biomarqueurs

L'analyse des biomarqueurs permet d'évaluer l'environnement de dépôt et le type de roche mère des hydrocarbures présents dans la carotte. Les terpanes tricycliques sont des biomarqueurs résistants qui se déclinent en chaîne de carbone de longueur variable en fonction de l'environnement de dépôt. En particulier, le ratio *C21T/C23T*, ainsi que le ratio *C26T/C25T* varie en fonction de l'origine des roches mères. Des faibles valeurs de ces rapports sont caractéristiques de roches mères d'origine marine, des rapports plus forts sont plutôt associés à des roches mères d'origine lacustres.

<u>Chapitre III.</u> Surveillance satellitaire des émanations naturelles d'hydrocarbures liquides à la surface de la mer.



Sources: AAPG Bulletin, CGG, European Geoscience Union, European Space Agency, Florida State University, Marum, Roberts Scribbler, Sea Change, TDI Brooks, Woods Hole Oceanographic Institution

# Introduction à l'article publié dans la revue Remote Sensing of Environment

Ce chapitre se concentre sur les manifestations de présence d'hydrocarbures liquides à la surface de la mer, identifiées à partir de l'imagerie satellitaire dans le bassin du Bas-Congo. Celui-ci a fait l'objet d'une publication dans la revue *Remote Sensing of Environment*. Les objectifs de cette publication sont multiples:

- Identifier les zones naturellement émissives de pétrole à partir d'une surveillance satellitaire de 82 images SAR acquises entre 1994 et 2012.
- Quantifier le temps de résidence de ces hydrocarbures liquides à la surface de la mer :

L'acquisition préalable de 3 images successives sur une même zone avait montré que les nappes d'hydrocarbures se dissipent entre deux images successives espacées de 12 heures (Fig. III-A). Cette période est beaucoup plus courte que ce qui avait alors été publié jusque la. Cette étude vise à mieux contraindre les gammes de temps nécessaires à la dissipation du pétrole à la surface de l'eau.



Fig. III-A. a, b, c: Compilation d'extraits d'images radar acquises avec 12h d'intervalle présentant des nappes de pétrole. Le tableau présente les caractéristiques des trois images acquises et le nombre de nappes identifiées.

 Contraindre les conditions de vent propices à la détection des nappes d'hydrocarbures: La fenêtre de vent dans laquelle la détection des hydrocarbures est possible demeure encore peu connue et les références bibliographiques divergent (*Brekke and Solberg, (2005)*: 3 à 14 m.s<sup>-1</sup>; *Espedal et Wahl, (1999)*: 2,5 à 12 m.s<sup>-1</sup>; *Garcia-Pineda et al., (2009)*: 2,5 à 7 m.s<sup>-1</sup>).

### • Quantifier le volume d'hydrocarbures naturellement émis à travers le bassin du Bas-Congo.

Afin de mieux contraindre ces conditions et tenter de répondre à la question du temps de résidence et des conditions propices à la détection, nous avons programmé l'acquisition haute fréquence d'images radar dans le bassin du Bas-Congo, en complément aux 82 images SAR acquises entre 1994 et 2012. Un ensemble de 22 images radar a été acquis pendant une période de 10 jours. Les résultats des surveillances satellitaires sur le bassin du Bas-Congo ont fait l'objet de la publication d'un article dans la revue internationale "*Remote Sensing of Environment*", intitulé : "*Monitoring of natural oil seepage in the Lower Congo Basin using SAR observations*". Les réponses à ces questions sont incluses dans les conclusions de l'article.

Remote Sensing of Environment 191 (2017) 258-272



# Monitoring of natural oil seepage in the Lower Congo Basin using SAR observations

# Article soumis le 11/04/2016, accepté le 27/01/2017, publié le 14/03/2017 dans la revue Remote Sensing of Environement.

Romain Jatiault<sup>a, b</sup>\*, Damien Dhont<sup>a</sup>, Lies Loncke<sup>b</sup>, Dominique Dubucq<sup>a</sup>

a Total SA, Centre Scientifique et Technique Jean Feger (CSTJF), Avenue Larribau, 64018 Pau, France

b University of Perpignan Via Domitia, Centre de Formation et de Recherche sur les Environnements Méditerranéens (CEFREM), UMR 5110, 52 Avenue Paul Alduy, 66100 Perpignan, France

\*Corresponding author at University of Perpignan Via Domitia, Centre de Formation et de Recherche sur les Environnements Méditerranéens (CEFREM), UMR 5110, 52 Avenue Paul Alduy, 66100 Perpignan, France.

E-mail adresses : romain.jatiault@univ-perp.fr, romain.jatiault@total.com (R. Jatiault).



*100* 

### Résumé

Le radar à ouverture synthétique est une technique d'imagerie satellitaire qui permet la reconnaissance de zones régionale (plusieurs centaines de kilomètres de large) en temps réel. Le système SAR est adapté à la reconnaissance des zones de décharges naturelles d'hydrocarbures en mer du fait de la différence de rugosité en l'eau « libre » et les zones recouvertes d'huiles. Le système radar est indépendant de la luminosité, s'affranchit de la couverture nuageuse et permet des faibles périodes de revisite sur site. L'analyse sur le long terme de 82 images SAR acquises entre 1994 et 2012 a permis la reconnaissance de 1400 suintements naturels d'hydrocarbures associés à 102 zone de suintements récurrentes. Afin de contraindre le temps de résidence de l'huile à la surface de la mer, indispensable au calcul du volume d'hydrocarbures naturellement émis, nous avons complété le jeu de données par l'acquisition d'image SAR avec de faibles périodes de revisites sur une courte période. L'acquisition de 22 image sur 10 jours au niveau d'une zone définie à partir de l'analyse « long terme » permet une période de revisite de 12h. Malgré le fait que les conditions de détection étaient optimales (1.5 à 6.5 m.s<sup>-1</sup>) pour la détection, la surveillance sur 10 jours montre une relation entre le vent régional et le nombre de nappes détectées. Les deux études montrent que le mécanisme associé aux sorties d'hydrocarbures est un phénomène discontinu avec des taux de présence compris entre 5 et 80 %. La surveillance sur 10 jours montre que les fréquences d'activation/arrêt sont propres à chaque site avec des mécanismes pouvant être persistants à éphémères. L'intégration de données de mesure de courant sur site au niveau de la proche surface (10 m), de données de vent et des caractéristiques des nappes d'hydrocarbures a permis d'estimer le temps de résidence de l'huile qui n'est que de quelques heures avec une durée médiane de 3h15min avant la volatilisation. Ces estimations ont permis de calculer le volume régional d'hydrocarbures naturellement émis dans le bassin du Bas-Congo, estimé à 4381 m<sup>3</sup>/ans. Ce volume classe le bassin du Bas-Congo au troisième rang mondial concernant le volume d'hydrocarbures naturellement émis.

*Mots clés* : Radar à ouverture synthétique, Télédétection, Satellite, Bassin du Bas-Congo, Nappes d'hydrocarbures, Fuites naturelles, Surveillance spatiale, Dynamique de fuite, Pétrole, Volumes expulsés.

# **1. Introduction**

Natural discharges of hydrocarbon fluids occur in most of the world's petroleum basins (Kvenvolden and Cooper, 2003; National Research Council on Oil in the Sea, 2003; Kvenvolden and Rogers, 2005; Etiope, 2015). Because of its sensitivity to the centimetre wavelengths (e.g., McCandless and Jackson, 2003), Synthetic Aperture Radar (SAR) is a remotely operated tool widely used in ocean studies for the recognition of sea surface patterns. Satellites with an on-board SAR system are used to detect natural liquid hydrocarbon seepage at the sea surface (Johannessen et al., 2000; Espedal and Johannessen, 2000; MacDonald et al., 2002; Brekke and Solberg, 2005; Garcia-Pineda et al., 2009, Fingas and Brown, 2014) in complement to spaceborne optical data (MacDonald et al., 1993; Macdonald et al., 2002; Hu et al., 2009; Chen and Hu, 2014). The presence of oil flattens the sea surface and significantly reduces the amount of energy backscattered to the satellite (Fresnel specular reflection) compared to the surrounding free water. Sea surface covered by oil seepage appears as black streaks on SAR images (Johannessen et al., 2000; Espedal and Johannessen, 2000; Lawrence, 2002; Ivanov et al., 2007; Zatyagalova et al., Williams and 2007; Garcia-Pineda et al., 2009; Körber et al., 2014). Up to now, research on sea surface manifestations of thermogenic seeps has focused on a few case studies, including the Caspian Sea (Ivanov et al., 2007; Zatyagalova et al, 2007), the Black Sea (Körber et al., 2014) and the Gulf of Mexico (Garcia-Pineda et al., 2014, Macdonald et al., 2015). The SAR method also serves as a primary tool for the evaluation of released volumes of heavy hydrocarbon discharges (MacDonald et al., 1993; Mitchell et al., 2000; Garcia-Pineda et al., 2014), even if quantifications may have been potentially underestimated with this technique (Hu et al., 2009; Garcia-Pineda et al., 2010; Smith et al., 2014). Oil seeps systems are usually accompanied by gas escapes (Solomon et al., 2009; Hu et al., 2012) originating from the thermal cracking and the second methanogenesis from the anaerobic biodegradation (Head et al., 2003; Peters et al., 2007). For environmental purposes, quantifying natural hydrocarbon escapes is therefore compulsory to understand their implications on global carbon budget. Understanding the amount of expelled hydrocarbon at the regional scale along continental margins also presents great implications for petroleum systems evaluation. The sea surface residence time of oil slicks at the sea surface is an important input parameter for the quantifications of oil output but remains yet poorly documented due to low revisiting frequencies of SAR data. The Lower Congo Basin is considered as an active petroleum province where geophysical investigations of the seafloor have allowed the recognition of high-density fluid flow features (Gay et al., 2003; Gay et al., 2006a, b, c; Gay et al., 2007; Andresen et al., 2010; Andresen and Huuse, 2011; Anka et al., 2013) of probable thermogenic

origin (*Gay et al., 2002; Gay et al., 2006b; Andresen 2012; Anka et al., 2013*). Natural oil seepage slicks have been recognised at the sea surface at the regional scale in the Lower Congo Basin from observation using SAR images (*Williams and Lawrence 2002; Dhont et al., 2013; Deffontaines et al., 2014*) confirming that this area is a major active thermogenic fluid releasing domain and an excellent natural work site for studying regional fluid release dynamics and associated expelled hydrocarbon volumes.

The aim of this paper is to combine short-term and long-term SAR monitoring to compare the pace of thermogenic seeps distributed along the Lower Congo Basin and to quantify the volumes of expelled hydrocarbons. The study comprises an extensive archive comprising 82 SAR scenes acquired between 2002 and 2012 used to detect and map seepage slicks and to determine the location of recurrent oil seep sites. From these long-term observations, we assessed the activity of individual active seeps in order to quantify expelled oil volumes. To address the question of the seep lifespan, we set up a short-term monitoring with the acquisition of 22 SAR scenes every 12 hours during 10 days over a specific area recognised as a major active seeping province. The tasking of overlapping SAR scenes over an active seeping area with a half day revisiting period constitutes a first order approach to study the recurrence and synchronicity of fluid discharges at a regional scale. For the first time, this study allows us to compare simultaneously the activity of several active oil seeping sites, benefiting from a minimum of two SAR scenes each day. The comparison between the local wind fields derived from SAR data and the occurrence of oil slicks also helps to improve our knowledge of the relationships between slick detection and weather conditions. In addition, the assessment of short-term seepage pace is decisive to categorise the active, dormant and passive seep sites for research teams and exploratory cruises.

# 2. The Lower Congo Basin

# 2.1. Geological context

The Lower Congo Basin is located in offshore Angola, in the southern part of the Congo Delta (Fig. III-1A). The study area is located on a passive margin resulting from the opening of the South Atlantic domain initiated during the Early Cretaceous (*Duval et al., 1991; Cainelli and Mohriak, 1999; Browfield and Charpentier, 2006*). During the Neocomian to Barremian, the development of syn-rift lakes gave rise to the prolific mudstone source rocks of the **Bucomazi** formation (*Burwood, 1999*). During the late Aptian, the post-rift shallow environments allowed the development of thick hypersaline deposits overlaying a sag basin under conditions of regional thermal subsidence (*Marton*).

et al., 2004; Brun and Fort, 2004; Fort et al., 2004; Beglinger et al., 2012). During the Albian, sedimentation was characterised by carbonate ramp development (*Da Costa et al., 2000; Anka et al., 2009; Beglinger et al., 2012*). As thermal subsidence and progressive basin deepening continued, post-rift salt tectonics triggered by high sedimentation rates caused strong deformation of the overburden. Subsequent evolution of the margin was controlled by salt tectonics. The study area is sub-divided into three main provinces (Fig. III-1B): an internal extensional area where the salt layer has been extremely thinned, a mid-slope transitional province where post-salt sedimentary series have been translated towards the basin, and a compressive domain consisting of a wide area dominated by severe deformation associated with salt diapirism, followed by a basinward compressive toe with extensive salt napes (*Brice et al., 1982; Duval et al., 1991; Schoellkopf and Patterson, 2000; Marton et al., 2004; Brun and Fort, 2004; Anka et al., 2013*). The seaward part of the basin deformed by salt tectonics is delimited from the abyssal plain by a distal compressive salt front (*Anka et al., 2009*). Intra-saliferous basins are infilled with turbidites and display an alternation of mudstone, claystone, shale and sandstone.

### 2.2. Seafloor manifestation of fluid vents

Geophysical investigations in the Lower Congo Basin report fluid escape features occurring as focused depressions on the seafloor and sub-seafloor fluid migration chimneys (*Gay et al., 2003; Gay et al., 2007; Sahling et al., 2008; Anka et al., 2013*). A large variety of pockmarks, defined as seafloor expressions of focused fluid flows (*King and McLean, 1970*), have been described with diameters varying from 30 m (*Gay et al., 2007*) up to 3150 m (*Charlou et al., 2004; Ondreas et al., 2005; Gay et al., 2006c*). The Aptian salt withdrawal and associated gravitational deformation greatly influenced the location of thermogenic seeps by creating efficient migration pathways along salt flanks as demonstrated by several publications (e.g. *Gay et al., 2007; Andresen et al., 2010; Andresen and Huuse, 2011; Andresen, 2012*). *Wenau et al. (2014a, b)* described active escape features on the seafloor expelling gas bubble trains imaged from side scan sonar at the salt-induced deformation front. From their fauna inventory, *Jones et al. (2014)* showed abundant seafloor topographic reliefs, consisting of biodegraded oil which forms asphalt mounds with diameters ranging from 0.5 to 50 m in the compressive salt province.

### 2.3. Oceanographic context

Understanding water mass movements is necessary for seepage studies because the strength of underwater currents steers the trajectory of oil droplets in the water column, whilst sea surface currents and wind determine the shape and lifespan of the oil slicks. The Fig. III-1A displays a summary of oceanographic transport along the Angolan coast. Surface water circulation is prominently dominated by the southward Angolan Current (AC) (Moroshkin et al., 1970, Hardman-Mountfort et al., 2003), which results from the combination of different surface and subsurface currents, including the South Equatorial Under-Current (SEUC), Equatorial Under Current (EUC), the steady state surface Angolan Dome (AD) (Doi et al., 2007), and the subsurface Angolan Gyre (AG), which are respectively surface and subsurface permanent gyres whose depth influence reach 500 m (Peterson and Stramma, 1991; Schneider et al., 1996; Holmes et al., 1997; Stramma and England, 1999). The AC is bordered to the south by a frontal convergence area with the Benguela current (*Shannon*, 2001), namely the Angolan-Benguela Front Zone (ABFZ) (Lass et al., 2000; Boyer et al., 2000), roughly located along the Angolan-Namibian frontier. However, the coastal and surfacing component of the Benguela Coastal Current (BCC) bypasses the ABFZ, resulting in a current flowing towards the north along the Angolan coasts (Hopkins et al., 2013). The Congo River outflow also inflects water circulation in the northern area. Seasonal variations are characterised by two warm periods from February to April and from September to November (Hardman-Mountford et al., 2003), alternating with two cold periods characterised by strong upwellings. Intermediate water circulations are controlled by the extension of the SICC to the south (Southern Intermediate Countercurrent) for water depths comprised between 500 and 1200 m (Stramma and England, 1999; Stramma and Scott, 1999). The main orientation of deepwater currents along the Angolan coast is controlled by the North Atlantic Deep Water known to occur at 2000 m depth (NADW; Stramma and England, 1999; Arhan et al., 2003) and flowing to the south at 2 cm.s<sup>-1</sup> (Lynn, 1971).



Fig. III-1. A: Location map of the study area (see the African map within the black frame in the top left corner) superimposed with an overview of main oceanic currents and geological settings. The orientation of colored arrows represents the directions of the hydrodynamic components of the basin. The characteristics of each current, including velocity, depth influence, temperature and salinity, appear in the legend when available. B: Geological cross-section of the Lower Congo Basin (a-b on Fig. III-1A) including pre-rift, syn-rift, transitional and post-rift series (modified from Guilbot et al., 2012). See location of the section from the black line in Fig. III-1A.

# 3. Dataset and methods

### 3.1. SAR acquisition parameters for oil slick detection

Synthetic Aperture Radar (SAR) is sensitive to centimetre-scale capillary waves induced by the local wind at the sea surface (Franceschetti et al., 2002; McCandless and Jackson, 2003). Oil surfactants smooth the sea surface and significantly reduce capillary waves, which triggers a contrast in roughness between oil-covered areas and free water. A minimum wind speed is required to trigger capillary waves and therefore to identify seepage slicks. The lower wind speed limit for seepage slick detection varies between case studies and authors, from 1.5 m.s<sup>-1</sup> (Skrunes, 2014, Fingas and Brown, 2014), 2-3 m.s<sup>-1</sup> (Espedal and Wahl, 1999; Johannessen et al., 2000; Girard-Arduin et al., 2005, Brekke and Sölberg, 2005) to 3.5 m.s<sup>-1</sup> (Garcia-Pineda et al., 2009). In case of strong winds, natural oil slicks are also affected by capillary waves, which prevent the detection of oil at the sea surface. Seepage slicks from natural discharges are considered to be detectable up to 6-7 m.s<sup>-1</sup> (Bern et al., 1992; Espedal and Wahl, 1999). Some authors consider that thicker slicks can be identified for higher wind speeds (Alpers and Espedal, 2004; Brekke and Sölberg, 2005; Körber et al., 2014). In addition to the sea surface currents, it is assumed that 3% of the wind speed accounts for the oil slick drift velocity (Bern, 1992; Espedal and Wahl, 1999; Kim et al., 2014). Previous studies demonstrated that short wavelengths of the X- (2.5 to 3.75 cm), C- (3.75 to 7.5 cm) and Ku-bands (1.6 to 2.5 cm) are more efficient in detecting oil slicks at the sea surface (Gade et al., 1998; Espedal and Wahl, 1999; Espedal and Johannessen, 2000; Johannessen et al., 2000; Alpers and Espedal, 2004; Brekke and Sölberg, 2005; Girard-Arduin et al., 2005; Skrunes, 2014). According to Bragg's reflection theory, the backscattered signal decreases with increasing incidence angles between 20° to 70° (Alpers and Espedal, 2004). Ideal incidence angles for slick detection range from 20° to 45° (Girard-Arduin et al., 2005; Brekke and Sölberg, 2005; Garcia-Pineda et al., 2010). Vertical SAR polarisation (VV) is the most efficient mode to detect oil slicks at the sea surface (Brekke and Solberg, 2005).

### 3.2. SAR dataset

### 3.2.1. Long-term acquisitions

Satellite SAR sensors are deployed on polar orbiting platforms, which enables worldwide observations with a rapid repeat rate. The SAR operational mode allows day and night imagery, regardless of cloud

cover, which is one of the main advantages compared to passive optical imagery. In order to find oil seep sites, we gathered a collection of 82 SAR images from different satellite sensors (Fig. III-2A). Archive data acquired from 1994 to 2012 were used to detect recurrent oil slicks and afterward to identify the sea surface location of natural oil seepage.

The dataset provided by the European Space Agency (ESA) is composed of ASAR data (Advanced Synthetic Aperture Radar) acquired in Image Mode Precision (IMP) by the European Remote Sensing satellites (ERS 1 and 2) between 1994 and 2001 and Wide Swath Mode (WSM) Envisat scenes acquired between 2002 and 2012, both operating in C-Band (Table III-1). We complemented this dataset with RADARSAT, TerraSAR-X and Cosmo-SkyMed data. The map of SAR coverage density varies between 40 and 70 scenes (Fig. III-2A). SAR scenes were converted from N1 raw format to 8-bit geoTiff format, displayed in greyscale for visual interpretation with GIS software (**ArcInfo, ESRI**). Scenes were kept speckled to preserve whole details. We applied linear stretching to counterbalance signal loss with increasing incidence angle from the orbital path.

Table III-1:	<b>SAR</b>	data	used	for	oil	slick	mapping	during	both	long-term	and	short-term
monitoring.												

		Pivol	Amount of SAR data			
Satellite/ Sensor	Band/ Wavelength	Spacing (m)	Long-term monitoring (1994-2012)	Short-term monitoring (12-22/10/2012)		
<b>Envisat</b> /WSM	C (5.8 cm)	75	46	0		
<b>ERS/IMP</b>	C (5.8 cm)	12.5	17	0		
Cosmo-SkyMed	X (3.1 cm)	3-15	13	15		
TerraSAR – X	X (3.1 cm)	20	2	4		
RADARSAT-2	C (5.3 cm)	25-50	4	3		

### 3.2.2. Short-term monitoring

In order to investigate the seepage recurrence, synchronicity and lifespan on sea surface, we performed a short-term monitoring based on the tasking of SAR images during a restricted period of 10 days. We focused this monitoring on the area recognised for the largest amount of expelled oil, located 135 km from the Angolan coast to the southwest of the mouth of the Congo River (Fig. III-2B). Tasking of 22 satellite images during 10 days provided at least one image every 12 hours (Table III-2). The dataset consists of a combination of X-band (TerraSAR and Cosmo-SkyMed) and C-band (RADARSAT) data. The radar density coverage constructed from the stack of multi-temporal images varies spatially, including a central area of maximum coverage density imaged by a series of at least 20 images out of the 22 tasked.

Scene number	Date (jj/mm/aaaa)	Time (hh:mm)	Sensor	Scene number	Date (dd/mm/aaaa)	Time (hh:mm)	Sensor
1	12/10/2012	05:40	Cosmo-SkyMed	12	18/10/2012	05:22	Cosmo-SkyMed
2	13/10/2012	04:58	RADARSAT - 2	13	18/10/2012	16:47	Cosmo-SkyMed
3	13/10/2012	16:53	Cosmo-SkyMed	14	18/10/2012	17:37	TerraSAR - X
4	13/10/2012	17:28	TerraSAR - X	15	19/10/2012	05:40	Cosmo-SkyMed
5	15/10/2012	05:06	TerraSAR - X	16	19/10/2012	16:47	Cosmo-SkyMed
6	15/10/2012	05:40	Cosmo-SkyMed	17	20/10/2012	04:54	RADARSAT - 2
7	15/10/2012	16:41	Cosmo-SkyMed	18	20/10/2012	16:35	Cosmo-SkyMed
8	16/10/2012	05:34	Cosmo-SkyMed	19	21/10/2012	04:58	TerraSAR - X
9	16/10/2012	17:42	RADARSAT - 2	20	21/10/2012	05:28	Cosmo-SkyMed
10	17/10/2012	05:34	Cosmo-SkyMed	21	21/10/2012	16:53	Cosmo-SkyMed
11	17/10/2012	06:53	Cosmo-SkyMed	22	22/10/2012	06:53	Cosmo-SkyMed

Table III-2: Listing and characteristics of SAR scenes acquired during short-term monitoring

### 3.3. Wind and current assessments

In order to observe the wind effect on slick detection, we compared the regional wind field with the number of slicks detected and their size with the local wind field extracted at the location of the oil slicks. Real-time wind field measurements are not available over the study area, hence we used the regional wind field provided by the European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF). The wind field is calculated every 6 hours with a spatial resolution of the grid of 1/8° (~14 km). The forecasted wind field has been averaged over 24 hours for better comparison with the number of slicks detected in each image. In order to observe small-scale variations of the wind field, we assessed the local wind from SAR scene derivation with the scatterometer technique. Spatial resolution is 1150 m with a maximum speed uncertainty of 2 m.s<sup>-1</sup> and 15° in direction (for details see *Johannessen et al., 2000 and Zecchetto, 2015*). The wind dataset is composed of discrete data including forecasts and SAR-derived wind fields which represents a certain limit for the understanding of the wind effect on slick dissipation between two SAR acquisitions.

The current velocity is measured from ADCP (Acoustic Doppler Current Velocity) tools that use particle displacement to quantify current speed (*Rowe and Yound 1979; Gordon and RDI, 1996*). The data were collected during 6 months of mooring between January 2009 and July 2009 at a depth of 10 m below the sea surface. The current velocity was not available during short-term monitoring, but the integration of predating mooring data represents a good proxy to approach the current velocity distribution.



Fig. III-2: A. Map of coverage density of Synthetic Aperture Radar scenes from 1994 to 2012. B. Coverage density of Synthetic Aperture Radar tasked during the short-term monitoring. The maximum coverage density of SAR scenes tasked during short-term monitoring occurs within the red polygon outline and covers 6736 km<sup>2</sup> with a water depth ranging from 1000 to 2750 metres.

Look-alike type	Origin	SAR features	Dismissal method	References
Low Wind Areas	Insufficient wind speed to trigger capillary waves	Extensive dark patches	Masking of the affected region	Espedal and Wahl, (1999)
Bioturbations	Surface covered area smoothes the sea surface	Threadlike extensive and scattered films	Masking of the affected region or SAR scene dismissal	Gade et al. (1998) Espedal and Johannessen, (2000)
Boat spill	Ship hold cleaning	Straight slick caused by moving source, shining point at boat location	Slick mapping with appropriate "spill" rank attribution	Espedal and Wahl, (1999)
Platform/ Pipeline spills	Accidental/operational production pollution	Petroleum infrastructure data integration (IHS) and shining platform	Slick mapping with appropriate "spill" rank attribution	Trivero and Biamino, (2010)
Rain cells	Local opposite winds at the edge of rain cells cause roughness wipeouts	High roughness values in the internal cell area compared to free water and rounded features	Masking of the affected region	Espedal and Johannessen, (2000)
Solitons or Internal waves	Decrease backscattered energy associated with wave-related slopes	Multiple parallel trends interspersed by greater backscattered values	Visual dismissal	Jackson et al., (2013)

# Table III-3: Overview of look-alike features detected on SAR scenes and dismissal features

# 3.4. Identification of natural leakages at the sea surface

Sea surface smoothing may be induced by a wide collection of look-alike seep features. The Table III-3 sums up look-alikes found during SAR scene interpretation. Petroleum infrastructure database integration (IHS) helps to discard leakage originating from pipes and/or petroleum platforms. In addition, boats or platforms appear as shiny diffracting points on SAR data, which make a distinctive feature compared to natural slicks. Spills from anthropogenic activities represent about 15% of the total surfacing oil in this study. Rain cells and solitons were occasional, in contrast to bioturbations which forced us to dismiss about 20% of SAR scene collection. Regions of SAR scenes containing low wind areas, rain cells or bioturbations were removed from the data collection to preserve the SAR coverage density which is used to quantify the seepage activity. The shape of natural oil slicks is induced by the strength and orientation of the wind and surface currents (Espedal and Wahl, 1999). Wind and surface currents induce short-term variations of sea surface motion. The sinuosity of black patterns is a first-order criterion to detect oil content slicks (Fig. III-3A - D). Sharp radiometric contrast between oil-covered areas and the surrounding free water correspond to the sideward detectable edge of the slicks and allowed us to identify the extent of individual seepage slicks (see examples in Fig. III-3A and B). Computer-based automatic picking (Brekke and Solberg, 2005; Garcia-Pineda et al., 2009) certainly provides a quick way to delineate dark features but is still not able to distinguish natural seepage from anthropogenic pollutions or look-alikes (Suresh et al., 2013). Garcia-Pineda et al. (2009) showed that the classification using neuronal networks between dark areas and free water is equivalent to manual picking. In our case, visual interpretation is more powerful, as the input of the photo-interpreter allows a confidence rank attribution which prevents the over-interpretation of dark features. Therefore, we based our interpretation on manual picking instead of computer-based automatic detection. We compiled on a map the outlines of each high-confidence slick identified on each SAR image (Fig. III-3E). Once mapped, diverging black streaks evidence active seeping areas of thermogenic fluids (Kornacki et al., 1994; MacDonald et al., 1996; de Beukelear et al., 2003; Zatyagalova et al., 2007; Garcia-Pineda et al., 2010; Garcia-Pineda et al., 2014; Körber et al., 2014). The centre of each diverging structure corresponds to the probable impact area of the fresher oil droplets at the sea surface. The Oil Slick Origin (OSO, Garcia-Pineda et al., 2010; Körber et al, 2014) is visually drawn for each seepage slick from the location of the proximal detectable edge of the slick to the seeping area (see white dots in Fig. III-3E). Diverging slicks allowed us to sort seepage slicks and associated OSOs between recurrent seep sites.

We associated nearby and recurrent double-pattern slicks as being associated with two different seep sites (Fig. III-3).



Fig. III-3: A. Extract from SAR WSM scene dated 26/03/2012. Grey speckled background represents backscattered energy from sea surface free water. Black streaks depict the location of seepage slicks. B. Same SAR image extract complemented with manual picking. C and D. ASAR WSM SAR sub-scenes respectively dated 25/02/2012 and 07/12/2002 superimposed with manual picking of oil slicks. The three different SAR extracts overlap at a common spatial location. Black arrows show the flow direction of surface currents during SAR scene acquisition. E. Compilation map of oil slick outlines mapped from the entire dataset, including slicks displayed in A., B., C. and D. at two major seep sites. All scenes are provided by the European Spatial Agency (ESA).

From the location of each OSO, we computed the kernel density with the ArcGIS toolbox in order to better display areas of active seepage. We also calculated the geometric mean centres (*Garcia-Pineda et al., 2010*) for each diverging structure, corresponding to mean values of each OSO location. The spatial dispersion of the OSOs generated by a single seep and detected in multiple SAR images is

related to the horizontal deflection of the oil plume through the water column. We drew the minimum size circles encompassing each single OSO expelled from individual seep sites to evaluate the offset range values generated by underwater deflection (*Garcia-Pineda et al., 2010*) by using the minimum bounding geometry tool of the ArcGIS toolbox (Fig. III-3E). The radius serves as a proxy to quantify the horizontal deflection of oil droplets in the water column when rising towards the sea surface. We also computed the ratio between the number of oil slicks detected and the SAR scene coverage density, namely the occurrence rate, which gives an indication of the frequency and release activity of each seep. Compared to SAR data coverage, seep sites with high occurrence percentage frequently expel oil slicks, conversely to the low occurrence percentage that corresponds to weaker seeping sites with few slicks detected during the monitoring interval. We assessed the average oil volume at the sea surface from the method developed by *MacDonald et al. (2015)*, who gridded their area and considered the total surfacing volume divided by the SAR coverage density for each cell.

# 4. Oil seep analysis and results

# 4.1. Long-term observations

We mapped a total of 1600 oil slicks interpreted from the analysis of the 82 SAR data over 18 years. The integration of the IHS international exploration & production database and the recognition of diffracting points associated with the boat or platform location allowed us to remove about 200 slicks associated with anthropogenic activities. The remaining 1400 seepage slicks are displayed in Fig. III-4A. Among them, 1240, i.e. 90%, of the slicks are recurrent, forming diverging patterns on the compilation map. The length of the slicks varies from a few hundred metres to 45 km. We recognised 102 active seep sites whose geometric mean centres are displayed in coloured dots in Fig. III-4B. The water depth of the seeping province ranges roughly from 1100 to 2600 m at a distance of 130 to 200 km from the Angolan coastline. Active seep sites are distributed all along the southern part of the Congo Basin over an area of 21,000 km<sup>2</sup>. The seeping province is well delimited from the basinward edge of the translated province and mainly included in the compressive province associated with salt diapirs (Fig. III-2 and Fig. III-4B) which suggest that the flux of fluid differs between seep sites.



Fig. III-4: A. (previous page) Compilation map of oil slick outlines in red polygons superimposed with Oil Slick Origins in white dots (see details in text). B. Kernel density computed from the density of seepage slicks. Coloured dots show the location of geometric mean centres of OSOs. The dashed black lines indicate the boundaries of each province related to the salt tectonic presented in Fig. III-1B.

### 4.2. Short-term monitoring

### 4.2.1. General observations

We identified a total of 231 high-confidence oil seepage slicks from the interpretation of the 22 tasked scenes. The locations of recurrent seep sites are consistent between the two monitorings. Recurrent slicks during short-term monitoring are associated with 53 seep sites identified from long-term monitoring (coloured dots in Fig. III-5- see location in Fig. III-2). A total of 102 oil seep sites were mapped from long-term monitoring, suggesting that about 50% of seeping sites were passive during short-term monitoring (black stars in Fig. III-5).

The area of highest radar coverage, defined as the area imaged by a minimum of 20 images out of the 22 tasked scenes, encompasses the 51 seeping sites observed during long-term monitoring (inside the red frame in Fig. III-5).

In this area, 130 slicks with lengths varying from 1000 to 16,000 metres are associated with 33 geometric mean centres or active sites (Fig. III-5). The spatial spreading of OSOs retrieved from the computation of minimum bounding circles for each seep sites provides the estimation of the deflection offset in the water column. The spatial dispersion of surfacing slicks areas varies between 80 to 1020 m, which remains low compared to the water depth of the seeping province (from 1100 to 2600 m). As shown by the Fig. III-1, the regional hydrodynamics involves multiple oceanic components with various speed and depth influences. The horizontal deflection of oil droplets in the water column is directly influenced by this hydrodynamic complexity. The linear law between the water depth and the horizontal deflection established in the Gulf of Mexico (*Garcia-Pineda et al., 2010*) does not apply for the Lower Congo Basin. As a matter of fact, the greatest OSO dispersion values account for shallower areas in this study where the AC meets the BCC's influence, probably resulting in greater current variability, whereas the deepest seep areas are associated with restricted OSO spatial spreading.



Fig. III-5: Compilation map of oil slick outlines (black polylines) mapped from SAR scenes tasked during short-term monitoring and focused on the maximum coverage density area (see location in Fig. III-2A). Coloured dots represent geometric mean centres of OSOs expelled from individual seep sites. Size and colours correspond to the occurrence percentages. Inactive seepage site locations during short-term monitoring are displayed as black stars. The salt tectonic boundary is displayed as a black dashed line. Background continuous lines are 100 m isobaths.

# 4.2.2. Correlation with the wind field

The study of the seepage recurrence requires good knowledge on the wind speed to ensure the consistency of the detection. As a first approach, we used the wind speed field forecasted at the regional scale (ECMWF) to confirm that weather conditions were suitable all along the 10-day acquisition period (Fig. III-6). The reported values of suitable wind speed for the detection of oil slicks (*Espedal and Wahl, 1999; Alpers and Espedal, 2004; Girard-Arduin et al., 2005; Brekke and Sölberg, 2005; Garcia-Pineda et al., 2009; Fingas and Brown, 2014*) confirm that the weather conditions were suitable during the short term monitoring (from 3.7 to 6.5 m.s<sup>-1</sup>; Fig. III-6) for the recognition of oil slicks on SAR data.



Fig. III-6: Superimposed graphs of modelled regional wind speed (ECMWF) displayed in black line and the number of slicks in the high-density SAR coverage area.

The two curves displaying the wind speed and the number of slicks show an anti-correlation, where higher wind speeds correspond to fewer detected slicks and vice versa. The curve displaying the number of detected slicks through time reveals three peaks characterised by an increase of the amount of detected slicks (scenes 3 to 4, scenes 9 to 11, scenes 17 to 21 - see Table III-2). These periods are interspersed by stages of low detection of slicks on SAR scenes especially at the following scenes: 5 to 8, and 12 to 16. These stages correspond to periods of regional wind speed intensification.

Even though the modelled wind provides a regional assessment of weather conditions, the applications related to local wind quantification remains questionable. Therefore, in order to quantify more accurately the ideal weather conditions for slicks in the study area, we integrated the local wind measurement extracted from SAR scenes from the scatterometer technique at the location of seepage slicks (Fig. III-7A, B). Local wind values vary between 1.5 and 6.5 m.s<sup>-1</sup> at the slicks locations (Fig. III-7C). This observed detectability agrees with lower and upper reported values in literature.

The information related to the population density of slicks length shows that most of the slicks (137 over 231) were detected with length ranging from 1000 to 4000 metres. The population density progressively decreases with the increase of the slick length. Slicks longer than 8000 m were occasional and exclusively associated with local winds between 2 to 4 m.s<sup>-1</sup>, meaning that no elongated slicks were detected with wind speeds above 4 m.s<sup>-1</sup> during the 10 days of monitoring (Fig. III-7C).



Fig. III-7: A. Extract from the SAR scene dated 21 October 2012, 16:53 (scene 21). Black streaks show the location of oil slicks at the sea surface. B. Local wind values are retrieved from SAR scene derivation at the locations of OSOs displayed as white dots. C. Plot of the length of individual slicks and the local wind speed value at the location of OSOs. The colour of the dots ranging from red to blue respectively represents high to low point density. D. Histogram of the distribution of local wind values at the location of recurrent oil seeping areas revealed from long-term monitoring and measured during dormant stages in short-term monitoring. The vertical black dashed lines correspond to the probable ideal boundaries for seepage slicks detection.

We then plotted the number of dormant seep sites on the SAR derived winds (Fig. III-7D). Considering that ideal wind values range from 1.5 to  $6.5 \text{ m.s}^{-1}$  in the study area, dormant seep phases clearly occur during period of ideal wind conditions. Only a restricted portion of dormant seep sites (~5%) occur outside the ideal detection boundary conditions (Fig. III-7D). This shows that the disappearance of slicks at recurrent seeps sites is associated with a short-term intermittence.

### 4.2.3. Macro-seepage sites

We defined macro-seepage sites as prolific leaking spots with occurrence rates above 50%. Within the area of SAR maximum coverage density, the acquisition of SAR data simultaneously at the nearby major seep sites allowed us to study the seepage pace for major seep sites during short-term monitoring. Seep sites A and B are distinct seepage sites, as the identification of recurrent

double-pattern slicks allowed us to distinguish slicks expelled from one site to the other (Fig. III-7A). The two sites are only 2250 m apart; this proximity constitutes a first-order benefit to compare the pace of two different seeps, independently of weather conditions (Fig. III-8A, B). Most of the time, sites A and B were both active, as seepage slicks were identified at both sites for 13 scenes out of 20 (Fig. III-8C).

We also identified asynchronous active phases from the recognition of isolated seepage slicks on 4 images at macro-seep A, while macro-seep B was dormant (pinpointed with black arrows in Fig. III-8). Based on previous works showing that oil slicks are best detected for wind speeds less than 6-7 m.s<sup>-1</sup> (*Bern et al., 1992; Espedal and Wahl, 1999*), the maximum wind value of 6.5 m.s<sup>-1</sup> at these specific sites during short-term monitoring cannot be considered as the factor controlling the absence of seepage (Fig. III-8D). In addition, the fact that oil slicks are observed for higher wind speeds during the monitoring period implies that weather conditions were suitable for slick detection. To summarise, all the conditions were satisfied during the three common and asynchronous cessation events for an optimal detection of oil slicks.

Furthermore, based on the fact that the disappearance of the seepage slicks is observed between two consecutive SAR acquisitions implies that oil dispersion is effective in less than 12 hours. The reappearance of oil slicks on the following image also indicates that cessation of oil release can occur under restricted time scales.

### 4.2.4. Transience and persistence at micro-seepage sites

A micro-seepage is defined here as a seeping spot with an occurrence rate below 50%. A large amount of micro-seepage sites ( $\sim$ 1/3) are only associated to a single active event that occurred during the acquisition of SAR scene n°21 (see yellow dots in Fig. III-5). Isolated slick detection occurred during a period of regional increase in the amount of detected oil, while roughly 60% of seeping sites were active. Wind values varied between 1.2 and 6.1 m.s<sup>-1</sup> at the OSO location, which is slightly below observed average weather conditions (Fig. III-7). Apart from lower occurrence rates, oil slicks expelled from micro seepage sites are revealed by shorter and narrower slicks, showing that the amount of oil released is weaker (Fig. III-7A).



Fig. III-8: A, B. Compilation of oil slick footprints and associated OSOs revealed from short-term monitoring for macro-seep sites A and B. Colour scale refers to subsequent acquisition dates and is applied for both seepage slicks and OSOs. Blue circles are the deflection offset computed from individual OSO locations. C. Red and blue graphs display the length of individual seepage slicks for seep site A and B respectively. D. Graph of the local wind values derived from SAR scenes. Non-imaged areas were masked with grey squares. Black arrows pinpoint SAR scenes where seepage slicks were only visible from one of the two sites A and B.
Micro-seep E identified from 3 recurrent and diverging slicks appears as a new seepage feature on the compilation map that we confidently ranked as natural slicks (Fig. III-5). Prior to short-term monitoring, the area was passive, as the SAR data coverage reaches 40 overlapping scenes between 1994 and 2012 (Fig. III-2A), but none revealed the presence of seepage slicks at this location. The slicks are characterised by typical curvilinear shapes that have similar trends to the neighbouring slicks on the images, which comforts our presumptions on the natural origin of expelled slicks. This example corresponds to the minimum period of seepage activity observed during the short term monitoring, revealing that oil release can be ephemeral and temporally constrained to a few days.

# 5. Discussion

## 5.1. Wind requirements for seepage slick detection

The weather requirements for slick detection have been reported by different authors to be 3 to 10 m.s<sup>-1</sup> (*Espedal and Wahl*, *1999; Alpers and Espedal*, *2004; Girard-Arduin et al.*, *2005; Brekke and Sölberg*, *2005*), 3.5 to 7 m.s<sup>-1</sup> (*Garcia-Pineda et al.*, *2009*) and 1.5 to 10 m.s<sup>-1</sup> (*Fingas and Brown*, *2014*). During the short-term monitoring, regional wind values ranged among the most restrictive conditions as reported by *Garcia-Pineda et al.* (*2009*). The results from seepage studies in the Lower Congo Basin show that weather requirements are constrained between 1.5 and 6.5 m.s<sup>-1</sup> (Fig. III-7C). Such differences are presumably associated with seepage slick characteristics such as the slick thickness or the oil type (API gravity) that largely varies between petroleum provinces. The wind is also known to affect seepage slicks by separating heavy and light components of oil slicks and spreading oil at the sea surface (*Alpers and Espedal*, *2004; Marmorino et al.*, *2008*). The SAR scene No. 21 records the greatest number of seepages, where two-thirds of imaged sites were active (Fig. III-6 and Fig. III-8). The SAR acquisition was predated by low weather conditions, with regional wind speed around 4 m.s<sup>-1</sup> during the 24 preceding hours (Fig. III-6). This suggests that ideal weather requirements for seepage slick detection might call for regional low wind conditions not only during, but also predating the SAR acquisition.

## 5.2. Seepage slick residence time

Seepage slick residence time was defined from the estimated age of the oil droplet at the distal edge of the slicks (*De Beukelear et al., 2003*). The restricted length of oil slicks, in addition to brief variations of slick orientation prevents seepage shapes from being fitted between subsequent scenes.

This suggests that oil slick dissipation is effective between the acquisitions of two subsequent SAR scenes, typically separated by 12 h.

The residence time is approached from the individual slicks length divided by the sea surface drift velocity (*Macdonald et al., 2015*). The velocity of the surface slick displacement is inferred to be induced by 100% of the surface currents in addition to 3% of the wind speed (*Kim et al., 2014*). The current measurements were not available during short-term monitoring and large scale oceanographic models are unsuitable to characterised local dynamics of the sea surface. We integrated mooring data to characterise the distribution of the surface/subsurface current velocity (Fig. III-9A).



Fig. III-9: A: Histogram of the distribution of current speed recorded from 6 months of mooring measurements 10 m below the sea surface. We considered an upper and a lower bound from the overall distribution of the current velocity. The wind rose to the right shows the distribution of current orientation and speed. B: Smooth kernel density of the distribution of the minimum residence time of the oldest oil droplet of individual slicks mapped during short-term monitoring. The residence time computation considers the local wind value at the location of OSOs, surface current velocity and slick length.

The mooring data were recorded from January 2009 to July 2009, i.e. three years before short-term monitoring. The integration of ADCP data allowed computing a statistical study of the residence time of oil slicks at the sea surface during the short-term monitoring using the near surface velocity of the current (10 m below the sea surface) and the local wind from derived SAR scenes. Surface velocity ranged between 0 and 81 cm.s<sup>-1</sup> during the 6 months of mooring. Among this range, 85% of measured velocity lies between 5 and 30 cm.s<sup>-1</sup> with a median velocity value of 17 cm.s<sup>-1</sup>. We made three estimations of residence time considering a lower bound for a conservative current velocity of 5 cm.s<sup>-1</sup>, an upper bound for an overstating current velocity of 30 cm.s<sup>-1</sup> and a best estimate for the median current velocity of 17 cm.s<sup>-1</sup> (Fig. III-9B).

The estimation of theoretical residence times shows that their distribution gathers around the median value for the upper, median and lower bound. The distribution progressively decreases from this median value. The median residence time value for the upper bound at 30 cm.s<sup>-1</sup> is 2h15min, 3h15min for the median value of 17 cm.s<sup>-1</sup> and 5 h 30min for the lower bound at 5 c m.s<sup>-1</sup>. The slick residence time for median estimates is mostly distributed between 1 to 7 hours.

The natural seepage residence time was inferred to be comprised between 8 and 24 h by *Mitchell et al.* (2000) and *MacDonald et al.* (2015) for the Gulf of Mexico. Seepage residence time in this study is lower than previously suggested, as best estimates suggest that median residence time is 3h15min. The residence times from this study are rather in agreement with *Marmorino et al.* (2008), who suggested that they concentrate below 5 hours. Restricted residence time have great implication on the hydrocarbon flux and therefore on quantifications of the regional oil output. The short lifetime of seepage slicks can be explained from the relative expelled amount that is probably lower in the Lower Congo Basin than in the Gulf of Mexico, but also by severe weathering conditions along warm Angolan coasts (*Hardman-Mountford et al., 2003*) that largely contribute to spill dispersion (*Leifer et al., 2012*).

However, these observations refer to short-term monitoring, where the length of the oil slicks varies between 1000 and 17,000 m (Fig. III-7), yet seepage slicks were mapped with greater lengths during long-term monitoring (Fig. III-3A and B). Observations of slicks greater than 30 km long remained unusual (less than 1% of slick collection) but suggest that slick residence time can occasionally be greater than values computed from short-term monitoring. Such exceptional observations of lengthened slicks could also be explained by a substantial increase in surface displacement velocity or predating by consistent low wind conditions before SAR acquisition.

#### 5.3. Evidence of leakage interruption

The non-detection of seepage slicks on SAR scenes can either be explained by unsuitable wind conditions or as an evidence of a consistent decrease of the expelled oil amount that prevents the detection of slicks by the SAR system. The comparison between the distributions of local wind values at recurrent seep sites between active and dormant stages remained concordant (Fig. III-7). The wind distribution at the location of recurrent site during dormant periods is mostly ranged in the ideal weather conditions (Fig. III-7D) which demonstrates the intermittence.

It was established in the Black Sea (*Greinert et al., 2006*) and Gulf of Mexico (*Garcia-Pineda et al., 2010*) that gas seepage rates from cold seeps may be highly variable over time. *Leifer et al., (2004)* and *Garcia-Pineda et al. (2016)* also demonstrated this variability for oil seepage in the Santa Barbara basin and the Gulf of Mexico, respectively.

Concordant observations performed from long-term and short-term monitoring suggesting that oil seepage is also discontinuous in the Lower Congo Basin are listed below:

- The great variability of occurrence rates values ranging from 5 to 80% shows that the amount of released oil significantly differs between seeping sites, suggesting recurrent interruption of oil release with varying frequencies between seep sites.
- Recurrent twin slicks were identified at the location of the two macro-seep sites A and B, which are separated by a distance of 2250 m. The identification of concordant shapes for neighbouring slicks on SAR data (Fig. III-3 and Fig. III-8) proves that they are expelled simultaneously from distinct sources (*MacDonald et al., 1993; Garcia-Pineda et al., 2010; Körber et al., 2014*). Therefore, the identification of a single seep suggests the leakage interruption of one of the two sites instead of unsuitable meteorological conditions (Fig. III-8).
- The seep site E (see location in Fig. III-5) was characterised by a restricted active period of few hours. The observations of recurrent slicks over a restricted period can be either explained as associated to ephemeral seep sites or to a consistent increase in the expelled oil amount.
- The seep triplets in the northernmost area (Fig. III-5) lie in the underwater investigation area studied by *Wenau et al. (2014)*. The detection of acoustic anomalies is commonly used to identify seepage bubble trains in the water column (*De Beukelear et al., 2003; Körber et al., 2014*). The area was considered as inactive, as the water column records did not reveal any typical acoustic anomaly at this location. This demonstrates that the three oil seeps were dormant during

the few days of underwater investigations and further supports the hypothesis of intermittent seepage activity.

The integration of SAR data characterised by hundreds km wide swath provides an interesting mean to monitor several oil seeps simultaneously. Mesoscale events, such as seismic events (*Zatyagalova et al., 2007*) or hydrostatic variation of pressure (*Boles, 2001; Glasby et Kasahara, 2001; Chanton et al., 2003; Rollet et al., 2006*) were demonstrated to be associated to a variation of the amount of expelled fluids. Conversely, our results regarding the regional seepage pace indicate that individual seep sites can have their own periodicity (see examples of seep sites A and B) with miscellaneous active and inactive stages.

## 5.4. Insights on seepage pace from short- and long-term monitorings

The short-term pace of seepage activity appears highly variable. The maximum duration of seepage activity was observed for Seep A, where slicks were detected on six consecutive scenes showing that they remained active during at least 3 days. In addition, inactive periods of macro-seep sites are restricted to daily periods (Fig. III-8), revealing that the seeping mechanism may be transient at a daily scale. The recurrent lack of seepage slick detection above macro-seepage sites suggests at least a great decrease of both the volume of expelled oil and the slick thickness preventing the slick detection from SAR scenes detectability threshold.

Among the 102 seep sites (Fig. III-4), 48 minor seep sites (occurrence rate lower than 30%) were passive during the short-term monitoring acquisitions (black stars in Fig. III-5), revealing that inactive stages can be longer than 10 days. Occurrence rates of macro seep sites are consistent between the short-term monitoring and long-term monitoring. This suggests that the relative macro-seep activity observed over the short-term period remain constant over decades.

In addition, non-recurrent slicks were observed from 140 seepage slicks (10%) during long-term monitoring (isolated white dots in Fig. III-4A). Assuming that the acquisition frequency of SAR scene acquisitions was low between 1994 and 2012 (4 to 5 scenes each year in average), non-recurrent slicks detected during the long-term monitoring are presumably associated with ephemeral expulsions sites, as demonstrated by the short term monitoring (seep site E). For scientific matter, the high variability of the expelled amount of oil suggests that the evaluation of the seepage activity during scientific exploration campaigns should be based on a consistent period of records.

## 5.5. Oil output quantification

From oceanographic investigations and SAR observations, the minimum detectable thickness for oil film can be estimated at 0.1  $\mu$ m (*Allen, 1970; Macdonald et al., 1993; Mitchell, 2000; Macdonald et al., 2002; Garcia-Pineda et al., 2009*). From the *Bonn agreements (2009)*, which established a relationship between the visual aspect of oil slicks and their thickness in the offshore domain, *Garcia-Pineda et al. (2013)* considered that the thickness of an oil slick is 1  $\mu$ m for 5% of the fresher slick surface and 0.1  $\mu$ m for the remaining 95% of the surface. Based on this assumption, a slick of 1 km<sup>2</sup> may therefore contain 145 l of oil. Considering this thickness, the sum of oil-covered surface within each grid cells gives a total average amount of 1625 litres at the sea surface (Fig. III-5). Considering a median residence time at the sea surface computed with the subsurface current (Fig. III-9) and the local wind velocity (Fig. III-7), we performed a volumetric computation of regional oil output for the 102 natural seeps along the Angolan coasts (Table III-4). The median estimate considered as the best estimate and computed using an average surface current velocity (Fig. III-9) indicates that ~500 litres are expelled each hour, which represents an annual amount of 4381 m<sup>3</sup> of oil naturally expelled in the Lower Congo Basin.

Table III-4: Estimation of the regional output of oil from the 102 natural seeps along the Lower Congo Basin, assessed from average surface oil and SAR data coverage.

Average surface oil volume (l)	Lower Bound	Median estimate	Upper bound
Considered subsurface current velocity (cm.s <sup>-1</sup> )	5	17	30
Median residence time	5h30min	3h15min	2h15min
Average output (l.h <sup>-1</sup> )	293.98	499.43	712.28
Annual amount (l.yr <sup>-1</sup> )	$2.57*10^{6}$	4.38*10 <sup>6</sup>	6.24*10 <sup>6</sup>
Annual amount (bbl.yr <sup>-1</sup> )	$1.62*10^4$	$2.75*10^4$	<b>3.92*10<sup>4</sup></b>

To give a comparison, *Macdonald et al. (2015)* assessed the annual output across the entire Gulf of Mexico as between 25,300 m<sup>3</sup> and 94,800 m<sup>3</sup> per year. *Hornafius et al. (1999)* estimated oil seepage along the Santa Barbara basins around 5840 m<sup>3</sup>. For the southwestern Caspian Sea, *Zatyagalova et al. (2007)* evaluated a minimum natural seepage rate of 1700 m<sup>3</sup>. Estimations performed by *Körber et al. (2014)* suggests that about 360 m<sup>3</sup> are expelled for the eastern Black Sea. The most accurate estimation presented in this paper therefore rank the Lower Congo Basin as the third biggest oil-supplying area in the world. The computation of expelled volumes based on the gridded method developed by *Macdonald et al. (2015)* is detached from the dimensions of study areas. The order of magnitude of the surface oil volume are comparable between the Gulf of Mexico (<15 l/km<sup>2</sup>) and the Lower Congo Basin (<10 l/km<sup>2</sup>) where oil seeps systems are related to salt

tectonics in both cases. The seepage intensity per unit area shall be compared for miscellaneous geological contexts to understand bypass system efficiency. Thermogenic seep sites are also associated with a consistent methane flux (*Solomon et al., 2009; Hu et al., 2012*), benefiting from both the thermal cracking and the biodegradation (*Head et al., 2003; Peters and Moldowan, 2007*). Even if the gas quantification associated to oil escapes remain an open question, this amount is presumably considerable. The assessment of contemporary seepage volumes also provides calibration tips for the evaluation of fossil seep systems. Ongoing work integrating the SAR dataset together with subsurface geophysical imagery will help to associate sea surface evidences of oil leakage with seafloor venting features.

# 6. Conclusions

This study integrates a combination of long-term (82 images over 18 years) and short-term (22 images over 10 days) monitoring of SAR scenes to understand the seepage situation in the Lower Congo Basin. The compilation map of recurrent seepage slicks forms diverging oil slick patterns from the central origin area, which allowed the recognition of 102 recurrent oil seeping sites. The seeping area is constrained to the compressive and translated salt-related structural *domains*, where salt diapirs create efficient oil migration pathways to the sea surface. It was demonstrated that the occurrence rates strongly varies between seeping sites, ranging from 5 to 80%. The correlation of SAR observations with wind speeds showed that *slick detection is possible* for wind values ranging from 1.5 to 6.5 m.s<sup>-1</sup>. Local winds at dormant sites remain within ideal weather conditions demonstrating the intermittent activity and the high variability of seepage flow rates over short periods. This allowed the identification of macro-seep sites of high occurrence rates and micro-seepage sites releasing hydrocarbons sparsely or ephemerally towards the sea surface. Merely half of the seeping sites revealed from 18-year long-term monitoring were active during 10-day short-term monitoring, suggesting that the remaining half remained dormant. Short-term monitoring shows that the slick residence time is low, as the seepage signal is lost between two consecutive SAR scenes separated by 12 h. Sea surface speed displacement estimated from the integration of local winds and subsurface current measurements, coupled with slick lengths allowed us to provide for the first time a statistical study and a quantitative approach to assess *the surface slick* residence time. This distribution concentrates around a median value of 3h15min. The best estimates of the volumetric outflow give an annual volume of  $4381 \text{ m}^3$  of oil naturally expelled in the Lower Congo Basin.

# 7. Unpublished additional informations

# 7.1. Controlling factors for seepage disruption

#### 7.1.1. Long-term monitoring

Many authors consider that the hydrostatic variation associated with tidal phenomena is the triggering mecanism responsible for the expulsion of fluids stored at the sedimentary subsurface (*Boles, 2001; Glasby et Kasahara, 2001; Chanton et al., 2003; Rollet et al., 2006; Baltzer et al., 2014*). The tides results from the combination of the gravitational attraction effect of the Moon (~ 2/3) and the Sun (1/3), that attracts the water bodies to the zephyr and nadir from its position. The tidal phenomenon is amplified when the moon, the Earth and the Sun align. This creates the cycles of neap and spring tides at each lunar cycle, every 28 days. Thanks to the availability of tide data measured from petroleum platforms over a period of 10 years (2002 - 2012), we were able to retrieve the acquisition time of satellite images with the water height and its position compared against the diurnal tidal cycles. We draw the area of each indexed slicks as a function of the height of water at the moment of the SAR scene acquisition (Fig. III-10).



Fig. III-10: Temporal replacement of the tidal height at the time of acquisition for each of the satellite images. The area of detected oil slicks detected is displayed as a function of the time of the tide for the period between 1994 and 2012. The time "0" corresponds to the time when the tide is the lowest. Due to a lack of knowledge concerning the ascension and

# spreading periods, the time of acquisition were not corrected from the transit and spreading periods.

Our observations suggest that:

- The number of detected slicks is greater at low tide than at high tide. We identified 473 slicks at low tide and 185 slicks at high tide.
- The average area of slicks is greater at low tide than at high tide, 1.67 km<sup>2</sup> at low tide and 0.26 km<sup>2</sup> at high tide.

The comparison of tide gauge levels at the time of acquisition of radar images shows that there is a relation between the visible oil volume at the sea surface and the tidal height (Fig. III-10). However, the strict correlation between seepage and tide requires a temporal replacement of the seepage initiation taking into account the necessary periods to (i) rise across the water column and (ii) spread at the sea surface. The lack of knowledge concerning (i) the ascension velocity of oil droplets and (ii) the sea surface dynamic prevent this temporal replacement. This issue puts an end of the computation of the correlation of oil seepage initiation from the seafloor and tidal cycles.

#### 7.1.2. Short-term monitoring

In order to confirm the tide control on seepage emission, we tasked the acquisition of SAR scenes (i) on a common area, (ii) during a restricted period of time and (iii) with a low period of revisit between radar scenes. In order to confirm/invalidate the tide control, the period was chosen between 12/10/2012 and 22/10/2012 which corresponds to a period of astral alignment between the moon, the Earth and the Sun. This period corresponds to maximum tidal amplitude between high tide and low tide (Fig. III-11a).

The amount of detected slicks was extracted from the high density coverage area (Fig. III-2) to avoid mis-interpretation related to under-covered areas and consist of 133 slicks over the 231 whole detected slick array. Within the high coverage density area, a total of 3 periods show a substantial increase in the number of slicks detected, interspersed by periods of low density detection (Fig. III-11b). During the short term monitoring, the tide amplitude is about 60 cm during neap tide and 160 cm during spring tide (Fig. III-11b). The three peaks respectively correspond to periods of ebb tide (1), high tide (2) and rising tide (3) (see grey dots). The amount of detected slicks is not especially greater during spring tide or neap tide (Fig. III-11b). The comparison between the amount of detected slicks and the tide height show **no specific correlation with diurnal periods** (Fig. III-11b).

This suggests that during the 10 days of monitoring, the amount of expelled oil was not controlled by the tide height neither by periods of "long range" tide.

The correlation with tide height observed during the long-term monitoring was not confirmed during the short-term monitoring. Internal mesoscale event, such as seismic events (*Zatyagalova et al., 2007*) can also trigger a sudden increase of the volume of oil released, yet the Lower Congo Basin is not considered as a specific high-activity seismic province. Additional in-situ investigations would be necessary to understand the mechanism responsible for seeps disruption/reactivation.



Fig. III-11: a. Replacement of the SAR monitoring period of 22 images acquired over 10 days superimposed with the tide curves (blue), one month before and after the monitoring period (17/09/2012 to 17/11/2012). b. Tide height compared to the amount of slicks detected during the 10 days of SAR acquisition within the "High coverage density area" (20 to 22 SAR scenes). The long-range evolution of the tide amplitude is displayed below.

# 7.2. Output quantification of oil

#### 7.2.1. An alternative method

The workflow followed to estimate the regional output of oil was primarily based on the output of each individual seep site, i.e. the ratio of the oil slick volumes divided by the sea surface displacement, which is extrapolated later over the entire study area. In order to obtain averaged surface drift values, we considered the longest slicks observed during short term monitoring (see details in Table III-5) expelled from the northernmost seep of the seep trilogy (see location in Fig. III-5) and under optimal weather conditions (20/10/2012: 4h54). It is assumed that spreading of the oil slick at the sea surface is controlled at 100% by the sea surface current and at 3% by the wind speed (*Espedal and Wahl, 1999; Kim et al., 2014*).

#### Table III-5: Description of the specific slick used to quantify the oil output

Date of acquisition	Sea surface speed	Wind speed	Slick length	Area
20/10/2012: 4h54	$10 \text{ cm.s}^{-1}$	4.3 m.s <sup>-1</sup> (Fig. III-6)	16 800 m	2.97 km <sup>2</sup>
Considering a current	speed of 10 cm.s <sup>-1</sup>	(ECMWF database)	and a wind speed	of 4.3 $m.s^{-1}$

Considering a current speed of 10 cm.s<sup>-1</sup> (ECMWF database) and a wind speed of 4.3 m.s<sup>-1</sup> (Fig. III-6), the slick displacement is estimated to 0.229 m.s<sup>-1</sup>. Considering a slick length of 16 800 m, the age of the oldest oil droplets at the proximal slick extremity would be of 20h40. From oceanographic investigations and SAR observations, the minimum thickness for and oil film is estimated of 0.1  $\mu$ m (*Allen, 1970; Macdonald et al., 1993; Mitchell, 2000; Macdonald et al., 2002; Garcia-Pineda et al., 2009*).

The thickness of an oil slick is of 1  $\mu$ m for 5% of the fresher slick surface and 0.1  $\mu$ m for the remaining 95% surface (*Bonn agreements, 2009; Garcia-Pineda et al., 2013*). Based on this assumption, a slick of 1 km<sup>2</sup> may therefore contain 145 l of oil. The oil slick covers an area of 2.97 km<sup>2</sup> and thus comprises a minimum volume of oil of 430 l, which divided by the slick lifespan gives an output flow of 20.8 l.h<sup>-1</sup>. This value is in agreement with published results in the Eastern Black Sea (41 l.h<sup>-1</sup> for two active seeps; *Körber et al., 2014*) and also in the Gulf of Mexico (43 l.h<sup>-1</sup> for a major oil seep site; *Garcia-Pineda et al., 2014*).

Considering the occurrence rate distribution of the whole of the 102 seeps sites detected with the SAR system (Fig. III-12), the global amount of expelled liquid hydrocarbon is estimated of 524 l.h<sup>-1</sup>, meaning **4.6\*10<sup>6</sup> l.yr<sup>-1</sup>** or **29,000 bbl** per year. The main limitation of these estimations is related the lack of continuous records of sea surface currents and wind speeds at the location of active vents. Combined with SAR observations, continuous information of the sea surface displacement would have

be decisive to perform a better quantification of the active seeps outflows. The method of the quantification output developed by *Macdonald et al. (2015)* and published in the paper provided comparable estimations (~ $4.4 \times 10^6$ l/y) than the method used in this section, more or less 4%.



Fig. III-12: Distribution of occurrence percentage (ratio between the amount of slicks detected among SAR scenes and the amount of data available) split by bins of 5% for each recurrent oil seep sites. Ordinate represents the number of natural seep sites within each bin. Occurrence rates of active seeping areas vary from 3% to 78% and are rather concentrated below 35% with a maximum at 5-10%

#### 7.2.2. Limitations of the oil output quantification with the SAR system

Oil volumes calculated from SAR data could be at least 100 times lower than those based on temperature and salinity flow (*Smith et al., 2014*). A great amount of expelled hydrocarbons might be dissolved in the water column or not detected on the SAR images due to the meter-scale spatial resolution. In addition, the minimum slicks thickness for detection with SAR data, reported of 0.1 µm (*Allen, 1970; Macdonald et al., 1993; Mitchell, 2000; Macdonald et al., 2002; Garcia-Pineda et al., 2009*) suggest that thinner slicks are not detected.

## 7.3. Associated gas escapes

#### 7.3.1. Tentative quantification of gas escapes

Oil dysmigration in the sedimentary column triggers an additional biogenic gas production due to the action of sulphate-reducing bacteria under anaerobic conditions. The volume produced directly

depends on the biodegradation degree (Head et al., 2003; Peters et al., 2005; Peters et al., 2007). The recognition of a large amount metre-scale asphalt mounds, on the seafloor on the Lower Congo Basin (Jones et al., 2014), composed of highly-biodegraded oils confirms that biodegradation occurs in the area. This involves a supplementary volume of gaseous hydrocarbon supply towards the hydro/atmosphere in the Lower Congo Basin. Based on the biodegradation scale of Peters et al. (2007), for a moderate to heavy biodegradation degree of 5 on a scale of 10 levels, a volume of 1 250 m<sup>3</sup> of biogenic gas is produced below the seafloor for each cubic meter of residual oil. Considering a minimum of 4.6\*10<sup>6</sup> l.yr<sup>-1</sup> of oil expelled each year towards the sea surface in the Lower Congo Basin, the biogenic gas production within sediments would be roughly estimated to 5.75\*10<sup>9</sup> l.yr<sup>-1</sup> or about 3850 tons of CH<sub>4</sub> considering a methane density of 0.6709 kg.m<sup>-3</sup> at the atmospheric pressure. This rough estimation probably corresponds to a minimum volume assuming that (i) probably a large volume does not reach the surface and (ii) the SAR system detectability limit scale prevent the recognition of restricted-sized slicks. However, the portion that reaches the sea surface is probably much lower assuming that at least 80% of methane is oxidised through the water column (Solomon et al., 2009). The reactions associated with the oil degradation at the sea surface remains under-documented but the hypothesis of a production of green-house gas, such as methane related with the biodegradation or aerosol (DeGouw et al., 2011), shall not be dismissed.

#### 7.3.2. Seepage potential reassessment

The radiative forcing of methane molecules is greater than CO<sub>2</sub>, the quantification of these expulsions is compulsory to understand their impact on the atmosphere in a global warming climatic context. The Lower Congo Basin has been ranked with a moderate seepage potential by *Wilson et al. (1973)* lately used for worldwide estimations (*Kvenvolden and Cooper, 2003; National Research Council, 2003*). Despite minimalistic, our appraisal of oil expelled volumes might be integrated for a reassessment of the minimum seepage potential of the West African Province. Our estimation suggests that the combination of oil and gas expulsions represents 7 680 tons of hydrocarbon released each year in the Lower Congo Basin. This is at least **3000 times greater than the previous estimates** proposed by *Wilson et al. (1973)*, such amount representing an increase of the volume of worldwide natural hydrocarbon release comprised between **1.3%** and **3.8%**.

The Global Warming Potential (GWP - *Doll and Baranski, 2011*), provides an estimation of the relative impact of a greenhouse gas compared to  $CO_2$  but is a function of the lifetime of the gas in the atmosphere. The most recent evaluation of the GWP for methane is 25 (considering 100 years lifetime - found in Greenhouse Gas Protocol), suggesting that if the total of hydrocarbons reach the surface and

evaporates (which yet remains unlikely), 192 000 t eqCO<sub>2</sub> (tons equivalent CO<sub>2</sub> - *Doll and Baranski,* 2011) are released each year towards the atmosphere. To reach the  $35.7*10^9$  tons of CO<sub>2</sub> entering annually the atmosphere from anthropogenic activities (*Le Quéré et al., 2015*), nowadays seepage activity of the Lower Congo Basin must have remained active at least during **186 000** years.

## 7.4. Significance of natural seeps compared against man-made spills

The scientific community largely agree that natural seeps of hydrocarbons (light and heavy) have a significant impact on the hydrosphere and atmosphere. The total amount of natural crude oil seepage is estimated of **600 000** tons per year (*Wilson et al., 1973; Kvenvolden and Cooper, 2003; National Research Council, 2003*). As a tip of comparison, this is an equivalent amount of crude oil that was released from the PEMEX blow-out in 1981 (*Kvenvolden and Cooper, 2003*).



Fig. III-13: Spatial extend of the oil slicks associated to the Deep Water Horizon blow-out (modified from Chen and Denison, 2011)

More recently, the Deep Water Horizon (DWH) blow-out released a volume of 735 000 m<sup>3</sup> of oil, corresponding to 558 000 metric tons (*Chen and Denison, 2011*). For now, DWH is considered as one of the most catastrophic spill events over mankind history. The period of spill occurred between the 24/04/2010 and the 03/08/2010. This suggests that each day, an amount of 7270 m<sup>3</sup> each day spilled in the marine environment (Fig. III-13). The annual amount of natural oil expelled from cold seeps systems in the Lower Congo Basin is estimated of 4 400 m<sup>3</sup>. Considering the present day flow, this suggest that a period of **167 years** are necessary for Angolan cold seeps to reach the amount of oil expelled from DWH.

<u>Chapitre IV.</u> Le comportement dynamique du panache d'hydrocarbures dans la colonne d'eau



Sources: AAPG Bulletin, CGG, European Geoscience Union, European Space Agency, Florida State University, Marum, Roberts Scribbler, Sea Change, TDI Brooks, Woods Hole Oceanographic Institution

# Introduction à l'article soumis dans la revue Deep Sea Research Part I

Les formes en « zig-zig » des nappes d'hydrocarbure, de même que les « structures en fleur » sur les cartes de compilation témoignent d'une forte variabilité des courants et des vents de surface (voir article publié dans *Remote Sensing of Environment ; Chapitre III*). Les courants rapportés dans la littérature semblent indiquer une déflection unidirectionnelle à travers la colonne d'eau vers le sud (*Moroshkin et al., 1970; Lynn, 1971; Peterson and Stramma, 1991; Stramma and England, 1999; Stramma and Scott, 1999; Arhan et al., 2003; Hardman-Mountford et al., 2003).* La variabilité du positionnement des OSO (Oil Slicks Origins) associés aux « structures en fleur » mises en évidence dans le Chapitre III, suggère que les trajets des hydrocarbures liquides expulsés vers la surface sont plus que complexes.

La compréhension des chemins de migrations du panache de fluide à travers la colonne est primordiale pour lier les évidences de surface mer et leur origine sur le fond de mer. Premièrement, ces études permettent de mieux contraindre les zones d'apparition des gouttelettes d'huile dans le cas d'un scénario accidentels et donc de pouvoir répondre rapidement et efficacement aux urgences menaçant notre environnement *(Spaulding, 1988; McCay, 2004; Price et al., 2004; Chen et al., 2015; Korotenko et al., 2016*). Ensuite, les études des zones de suintements naturels sont utilisées par les compagnies pétrolières pour identifier des zones de production actives d'hydrocarbures. L'identification de nappes naturelles fournit une évidence directe de la maturation des roches mères. Enfin, la localisation de la source d'émission d'hydrocarbures naturels liquides peut permettre de mieux guider l'exploration scientifique de ces objets.

Dans le Golfe du Mexique, les hydrocarbures sont défléchis en fonction de la profondeur d'eau, d'après la loi linéaire (*Garcia-Pineda et al., 2010*):

#### X=1.2346 Z + 796.86

*X* correspond à la déflection horizontal et *Z* à la profondeur d'eau.

Cependant, cette loi a été établie dans un environnement confiné ou les conditions hydrographiques sont favorables à une déflection linéaire. L'application de cette loi demeure contestable pour de faibles profondeurs d'eau. Pour la grande majorité des zones de suintements étudiés, la valeur de déflection horizontale demeure bien inférieure à la profondeur d'eau (cercles bleus sur la Fig. IV-A). De manière plus surprenante, les zones les moins profondes présentent des valeurs de déflections plus grandes (cercles rouges sur la Fig. IV-A).



Fig. IV-A : Zones d'impact à la surface de la mer. Les cercles bleus correspondent à des zones d'impact dont le rayon est inférieur à la profondeur d'eau et les cercles rouges à des zones d'impacts de rayons supérieures à la profondeur d'eau. En haut à droite : Courbe de dispersion spatiale maximum des OSO en fonction de la profondeur d'eau dans le bassin du Bas-Congo.

Il apparait donc primordial de quantifier la déflection horizontale du panache de fluide à travers la colonne afin de savoir si il y a un moyen de relier les nappes d'hydrocarbures visibles à la surface de la mer avec les structures en fond de mer. Ce chapitre revêt plusieurs objectifs :

- Contraindre les gammes de déflection latérales du panache d'hydrocarbures à travers la colonne d'eau.
- Savoir si les zones d'apparition moyennes des hydrocarbures à la surface de l'eau peuvent être utilisées pour faire le lien avec les structures en fond de mer
- Contraindre les vitesses d'ascension du panache de fluides dans la colonne d'eau.

Les résultats de l'étude du comportement du panache d'hydrocarbures lors de son ascension sur l'ensemble de la colonne d'eau à fait l'objet de la soumission d'un article à la revue *Deep Sea Research Part-I*, intitulé " *Dynamic behavior of natural oil droplets through the water column in deep-water environments : The case of the Lower Congo Basin"*.

Dynamic behavior of natural oil droplets through the water column in deep-water environments: the case of the Lower Congo Basin

#### Article soumis à la revue Deep Sea Research Part I, le 03/08/2017.

**Romain Jatiault** <sup>a, b</sup>\*, Damien Dhont <sup>a</sup>, Lies Loncke <sup>b</sup>, Xavier Durrieu de Madron <sup>b</sup>, Dominique Dubucq <sup>a</sup>, Claire Channelliere <sup>c</sup>, François Bourrin <sup>b</sup>

a Total SA, Centre Scientifique et Technique Jean Feger (CSTJF), Avenue Larribau, 64018 Pau, France.

<sup>b</sup> University of Perpignan Via Domitia, Centre de Formation et de Recherche sur les Environnements Méditerranéens (CEFREM), UMR 5110, 52 Avenue Paul Alduy, 66100 Perpignan, France.

c Total SA, Tour Coupole, 2 place Jean Miller, La Défense 6, 92400 Courbevoie, France.

\*Corresponding author. University of Perpignan Via Domitia, Centre de Formation et de Recherche sur les Environnements Méditerranéens (CEFREM), UMR 5110, 52 Avenue Paul Alduy, 66100 Perpignan, France. Tel.: +334 68 66 20 98

E-mail adresses : romain.jatiault@gmail.com, romain.jatiault@univ-perp.fr (R. Jatiault)



#### Résumé

Une grande quantité de sites de déversements naturels d'hydrocarbures liquides a été identifiée dans les eaux profondes du bassin du Bas-Congo à partir de l'analyse d'un ensemble d'images spatiale utilisant le radar à ouverture synthétique. L'intégration des données de courantométrie a été utilisée pour relier les manifestations spatio-temporelles de la présence d'hydrocarbures à la surface de la mer avec les géophysiques associées à la présence d'un flux de fluide actif sur le fond marin. Les mesures de profileur acoustique de courant Doppler acquis à travers sur l'ensemble de la colonne d'eau constituent un moyen efficace d'évaluer la déviation latérale du panache lors de la remontée des fluides. Grâce à l'élaboration d'un modèle de propagation eulérien qui considère une gamme de vitesses probables d'ascension, nous avons modélisé la trajectoire de migration de l'huile à travers la colonne d'eau à partir de deux méthodes complémentaires. La première méthode consiste en une rétro-simulation de la trajectoire des gouttelettes d'huile à partir de la position de la zone d'impact en surface mer observés simultanément aux mesures de courant. La deuxième méthode compare la dispersion spatio-temporelle des zones d'impacts de l'huile à la surface pendant les 21 années de surveillance satellitaire et les déviations modélisées au cours de la période de mesure courantométriques. Les zones d'impact des gouttelettes d'huile à la surface de la mer se concentrent au sein de cercles de 2,5 km de rayon autour du point de sortie du fond marin. Les deux méthodes fournissent une gamme de vitesses de montée des gouttelettes d'huile dans la colonne d'eau estimée entre 3 et 8 cm.s<sup>-1</sup>. Les faibles valeurs de déflexion valident les liaisons sub-verticales entre la surface d'impact moyenne des nappes d'huile à la surface de la mer et les perturbations géophysiques sur le fond de mer, telle que les pockmarks ou monticules identifiés comme les points de sorties des fluides hydrocarbonés.

*Mots clés :* Sorties naturelles d'hydrocarbures, Nappes de pétrole, Bassin du Bas-Congo, Déflection latérale, Pockmarks, Domaine profond, Vitesse d'ascension.

# **1. Introduction**

Natural seeps of petroleum occur in most of the continental margins (*Wilson et al., 1973; Levy and Ehrhardt, 1981; MacLean et al., 1981; Becker and Mannen, 1988; Kvenvolden and Cooper, 2003; Zatyagalova et al., 2007; Jauer and Budkevisch, 2010; Körber et al., 2014; Suresh, 2015; Jatiault et al., 2017*).

For environmental purposes, understanding the dynamic behavior of the oil plume is crucial for oil spill emergency response (*Spaulding, 1988; Reed et al., 1999; Price et al., 2006; Chen et al., 2007; MacFayden et al., 2011; Leifer et al., 2012; Fingas and Brown, 2014; Macdonald et al., 2015).* Defining the migration pathway of the oil helps to target probable areas affected by environmental damage due to anthropogenic spills (*Chen et al., 2015; Korotenko, 2016*). For scientific expeditions and exploration campaigns, understanding the migration pathways of the oil plume is of prime importance to link sea surface natural oil slicks to their origin on the seafloor (*Crooke et al., 2014*). The targeting and inventorying of seafloor areas accommodated by deep-sea communities is facilitated by identifying seepage areas (*MacDonald et al., 1996; Garcia-Pineda et al., 2010; Lessard-Pillon et al., 2010; Jones et al., 2014*). In petroleum exploration, the identification of seafloor seeps is used as a first-order tool to identify active petroleum systems and confirms hydrocarbon thermal maturation (e.g. *Abrams, 2005*). Combined with geophysical sub-seafloor datasets, locating active seafloor thermogenic seeps provides significant evidence for understanding the hydrocarbon plumbing system (*Serié et al., 2016*).

The fate of oil droplets either sinking to the seafloor or rising through the water column depends on the buoyancy of the expelled hydrocarbons. Pockmarks, which are local depressions on the seafloor associated with contemporary focused fluid flow (e.g. *King and McLean, 1970; Hovland and Judd, 1988*), are widely recognized as the seafloor outlet of expelled fluids. Heavy hydrocarbons can be stored as asphalt deposits on the seafloor (*Valentine et al., 2010; Unterseh, 2013; Jones et al, 2014; Unterseh and Dan, 2014; Sahling et al., 2016*), while the lighter components rise through the water column (*de Beukelear et al., 2003; Körber et al., 2014; Garcia-Pineda et al., 2015*) until they reach the sea surface (e.g. *Macdonald et al., 2002; Greinert et al., 2006; Rollet et al., 2006; Smith et al., 2014*).

During the ascent through the water column, oceanic currents impact the deflection of the plume by advecting the oil droplets during their rise from the seafloor source to the surface (*Crooke et al., 2015*). The lateral deflection distance is controlled by the current strength and the

transit time of the oil droplets in the water column. The transit time is controlled by both the water depth and the ascension velocity. Estimating the ascension velocity is therefore compulsory for quantifying the range of the deflection (Table IV-1).

References	Hydrocarbon type	Min. value (cm.s <sup>-1</sup> )	Max. value (cm.s <sup>-1</sup> )	Type of study
<b>Rehder et al. (2002)</b>	Methane	26	27	Laboratory
Leifer and Patro (2002)	Methane	5	15	Laboratory
Greinert et al. (2006)	Methane	12	22	In-situ measurement (Black Sea)
DeMoustier et al. (2013)	Methane	17	23	In-situ measurement (Gulf of Mexico)
Leifer and Macdonald (2003)	Methane, oily bubbles	2	20	Laboratory
Crooke et al. (2015)	Oil and gas mixture	5	50	In-situ measurement (Gulf of Mexico)
Van Ganse and Lefloch (2013)	Oil and gas mixture	2	18	Laboratory
Körber et al. (2014)	Oil and gas mixture	13	15	In-situ measurements (Black Sea)

Table IV-1: Compilation of reported values of hydrocarbon ascension velocities through the water column.

The few case studies documenting the ascension velocity of oil droplets are exclusively based on laboratory experiments or measured in a few marine provinces (Gulf of Mexico and Black Sea). The reported ascension velocities range from 2 to 50 cm.s<sup>-1</sup>. Most studies focused on the vertical ascent of oil droplets in the water column (*MacDonald et al., 2002; Greinert et al., 2006; Crooke et al., 2015; Chen et al., 2015; Korotenko, 2016*) but seldom addressed the horizontal deflection associated with currents in natural seepage systems. In the Gulf of Mexico, the lateral deflection of oil droplets was estimated using a linear equation that is a function of the water depth (*Garcia-Pineda et al., 2010*).

According to the Navier-Stokes equations, the rising-bubble regime after release from the seafloor is controlled by an increasing ascension velocity preceding a stable-state ascension velocity. In deep water conditions, the acceleration interval typically restricted to the first few meters above the seafloor, is negligible compared to the water depth. For water columns deeper than 1000 m, the oil droplet fate can be approximated from the steady ascension velocity. *Clift et al. (1978)* and *Perry and Green (1984)* proposed a quantitative model based on characteristics such as bubble shape and diameter (*Korotenko, 2016*) to approximate the ascension velocity of hydrocarbon droplets. Bubble characteristics depend on the oil type and environmental conditions that are greatly variable between seep sites. The shape of the oil droplets can be thoroughly different from spherical, ellipsoidal

to "jellyfish" (*Van Ganse and Le Floch, 2013; Aprin et al., 2015*). In deep-sea environments, the interaction of hydrocarbon bubbles with hydrates drastically modifies the shape of the bubbles by shrinking their diameter (*Rehder et al., 2002; Leifer and Macdonald, 2003; Mcginnis et al., 2006*), thereby affecting the ascension velocity.

Quantifying the droplet size distribution is compulsory for predicting the dynamic behavior of the oil plumes and ultimately for predicting the location of the droplets when they impact the sea surface. This requires a good understanding of in-situ oil properties to estimate the bubble characteristics and the rising regime (*Clift et al., 1978*). The reliability of bubble prediction models without in-situ measurements (for instance video/photos in *DeMoustier et al., 2013*; geochemical coring in *Abrams, 2005*) remains questionable for natural seeps since the degree of biodegradation is greatly variable from one seep site to another. The bacterial degradation process modifies the oil properties (i.e. density and viscosity) during the dysmigration of petroleum through the sedimentary series (*Head et al., 2003; Larter et al., 2003; Larter et al., 2006; Jones et al., 2008*). Assuming that bacterial consortium first consumes light oil components, the oil properties then depend on residual oil components (e.g. *Head et al., 2003; Peters et al., 2007*).

This paper aims to link sea-surface oil manifestations to seafloor oil escape features by estimating the horizontal deflection of oil-coated bubbles. This approach combines current-velocity measurements from moorings, natural oil slick locations identified from satellite imagery and high-resolution bathymetric maps extracted from petroleum geophysical exploration data. In addition, our objective is to quantify the temporal variability of the deflection offset of the oil plume in the water column. Indeed, linear deflection equations still need to be validated in open-sea conditions that are usually associated with a greater hydrodynamic complexity. Understanding the migration pathway of oil in a challenging area will definitely contribute to understanding the probable deflection range in other provinces.

# 2. Regional settings

The study area is located in the Lower Congo Basin (LCB), in deep offshore Angola (Fig. IV-1) at water depths ranging from 1200 to 2700 m. The deep-water province of the LCB corresponds to one of the most prolific natural-seep oil-supplying areas in the world, where 4380 m<sup>3</sup> of oil is expelled each year towards the sea surface (*Jatiault et al., 2017*). In addition, extensive oil and gas exploration of the LCB in the past decades has provided a large volume of geophysical data, both at the seafloor

and in the water column. The LCB appears to be a key area to understanding the dynamic behavior of oil droplets through the water column.

The chrono-stratigraphic framework of the LCB resulted from the opening of the South Atlantic that originated in the Early Cretaceous (144 - 140 Ma); it is sub-divided into 3 major phases. The pre-salt (Neocomian to Barremian) syn-rift lacustrine infill resulted in the deposition of the oil-prone Bucomazi Fm (Burwood, 1999; Cole et al., 2000). The Aptian period marked a drastic change in water circulation and led to the deposition of the Loeme Salt, consisting of a thick (1000 m thick on average; Marton et al., 2000) evaporite layer. The post-salt supersequence was characterized by a progressive deepening of the basin due essentially to thermal subsidence (Séranne and Anka, 2005), leading to the deposition of the Iabe Fm (99 - 65 Ma), the second mature source rock (Cole et al., 2000; Schoelköpf and Patterson, 2000). In the early Oligocene, the development of the Congo River resulted in the progradation of a large deep sea fan (Fig. IV-1). The post-salt super-sequence is affected by a gravitational gliding over the Aptian salt decollement layer in relation with the overloading of the deep-sea fan (Séranne and Anka, 2005). The basin is subdivided into 3 main domains characteristic of salt tectonics: (1) an upslope extensional domain, (2) a translational area and a (3) downslope compressive province (Marton et al., 2000; Brun and Fort 2004; Fort et al., 2004; Guiraud et al., 2010). The oil seepage area spans across the compressive province that is affected by a strong sedimentary deformation, characterized by a complex salt diapirism, known to create efficient pathways for fluids migrating through sedimentary series (Andresen and Huuse, 2011; Andresen, 2012).

The main currents in the LCB reported in literature are shown on Fig. IV-1. The major surface current following the Angolan coast is the Angolan Current (AC), which transports equatorial waters from 0 to roughly 300 m below the sea surface (*Moroshkin et al., 1970; Hardman-Mountford et al., 2003*). The AC is steady, narrow and fast, flowing southwards at displacement velocities ranging from 20 to 50 cm.s<sup>-1</sup>, and with low salinities around 36.4 (*Moroshkin et al., 1970; Hardman-Mountford et al., 2003*). The northernmost branch of the Benguela Coastal Current (BCC) is reported to bypass the border with the AC at the Angolan Benguela Frontal Zone (ABFZ), bringing cold and low salinity waters along the Angolan coast (*Schneider et al., 1996; Hopkins et al., 2013*). The influence depth of the BCC is limited to the surface and subsurface layers. Intermediate water circulation (500 – 1000 m) is controlled by the southward-flowing Southern Intermediate Counter Current (SICC), transporting AntArctic Intermediate Water (AAIW) (*Stramma and England, 1999; Stramma and Scott, 1999; Shannon, 2001*). The deep-water circulation along the Angolan coast corresponds to the slow southward flow of the North Atlantic Deep Water (NADW) (*Lynn, 1971; Stramma and England, England, 1971; Stramma and England, England*, *1971; Stramma and England*, *1971;* 

*1999; Arhan et al., 2003*). This bottom boundary current could correspond to the eastern retroflection of the Deep Western Boundary Current (DWBC) (*Garzoli et al., 2015*).



Fig. IV-1: Location map of the study area and characteristics of the reported main currents (depth and current speed range). The radial variation of the average slope direction of the seafloor is associated with the alluvial cone of the Neogene Congo deep sea fan.

The LCB presents open-sea oceanic conditions characterized by a complex vertical succession of surface and deep currents (*Peterson and Stramma, 1991; Schneider et al., 1996; Holmes et al., 1997; Stramma and England, 1999; Shannon, 2001; Hardman-Mountford et al., 2003; Hopkins et al., 2013; Phillipson and Toumi, 2017*).

# 3. Data and methods

## 3.1. Data

#### 3.1.1. Mooring measurements

Currents were measured with RD instruments Acoustic Doppler Current Profilers (ADCP - *Rowe and Young, 1979; Gordon and RDI, 1996*) and Aanderaa Seaguard single-point Doppler Current Sensors (DCS) mounted on two different moorings (Table IV-2, see location on Fig. 1). The upper and subsurface layers were sampled with upward-looking 300 kHz and 75 KHz ADCPs, respectively. The deeper layers were sampled with single-point DCS positioned every 200-250 m down to the bottom. The observation period lasted 6 months (Jan. 16, 2009 - Jul. 26, 2009) for mooring 1, and 13 months (Sept. 22, 1997 - Oct. 27, 1998) for mooring 2. The data were corrected considering a magnetic declination of 5.4°E between the geographic and magnetic poles.

Mooring 1 was close to recurrent oil seep sites, which is a considerable advantage for understanding the plume dynamic behavior using simultaneous mooring records and satellite images (Fig. IV-2). However, measurements were restricted to a 6-month period, thus limiting the concomitant availability of satellite images and the assessment of the effect of the seasonal variability. Mooring 2 was located further south from the main oil seepage area (Fig. IV-2) and was therefore less adapted for simultaneous acquisition of satellite images and mooring data. However, the annual duration of mooring 2 was relevant for assessing the seasonal variability of the potential droplet deflection.

<b>Mooring Point</b>	Mooring 1	Mooring 2
<b>Recording interval (min)</b>	10	20
Start of recording	Jan. 16, 2009	Sept. 22, 1997
End of recording	Jul. 26, 2009	Oct. 27, 1998
Water depth (m)	1820	1385
Upper layer - 300 KHz	2 m depth cells from 10 to 78	4 m depth cells From 4 to 50
ADCP	mbsl	mbsl
Subsurface layer - 75 KHz ADCP	16 m depth cells from 78 to 446 mbsl	8 m depth cells from 50 to 193 mbsl
Deep layer - Single-point DCS	Every 250 m from 720 to 1720	Every 200 m from 380 - 1380

Table IV-2:	Characteristic o	f ADCP records	for mooring 1	and mooring 2.

The recording characteristics of both moorings helped estimate the probable deflection of oil droplets expelled at natural seep sites using two different methods. Mooring 1 data were used to link spot

observations of sea surface oil slicks and the probable seafloor origin. Mooring 2 data were used to compare the distribution of the horizontal deflection between measured and modeled values during the pluri-annual monitoring of natural oil seepage with satellite images.

#### 3.1.2. Remote sensing inventory of natural oil seep sites

The Synthetic Aperture Radar (SAR) system sends electromagnetic waves to the earth's surface and retrieves the backscattered signal (e.g., *McCandless and Jackson, 2004*). Based on Bragg's scattering, the technique provides an efficient means for measuring the wind-induced sea-surface roughness. The presence of oil slicks strongly affects the sea-surface roughness and significantly reduces the amount of backscattered energy to the satellite, accounting for the Fresnel specular reflection. Sea surface covered by oil seepage appears as low radiometric areas on SAR images (e.g., *Espedal and Wahl, 1999; Johannessen et al., 2000; Espedal and Johannessen, 2000; Williams and Lawrence, 2002; Zatyagalova et al., 2007; Ivanov et al., 2007; Garcia-Pineda et al., 2010; Körber et al., 2014; Jatiault et al., 2017*).

We based our analysis on a stack of overlapping SAR scenes acquired as X-band (wavelength from 2.5 to 3.75 cm) and C-band (wavelength from 3.75 to 7.5 cm) data, which are the most suitable wavelengths for detecting surface oil slicks, especially for the recognition of thinnest oil films (*Gade and Alpers, 1998; Leifer et al., 2012*). The entire SAR collection consisted of long-term monitoring of 156 scenes gathered at variable intervals over 21 years, tasked for the monitoring of petroleum activities in the area and coupled with free-access data (Table IV-3).

Satallita/ Sansan	Period of	Wayalangth	Pixel Spacing	Amount of
Satemite/ Sensor	imagery	wavelength	(m)	SAR data
<b>ERS/Image Mode Precision</b>	1994 - 2001	C (5.8 cm)	12.5	17
<b>Envisat /Wide Swath Mode</b>	2002 - 2012	C (5.8 cm)	75	46
RADARSAT-2	2005 - 2012	C (5.3 cm)	25-50	7
Cosmo-SkyMed	2009 - 2014	X (3.1 cm)	3-15	80
TerraSAR – X	2011	X (3.1 cm)	20	6

 Table IV-3: Inventory of SAR scenes collection characteristics

The SAR density coverage varied across the study area, but the oil-seeping province was imaged with a large stack of images consisting of 50 and 150 overlapping scenes (Fig. IV-2). The time interval of current mooring 1 measurements (Jan. 16, 2009 - Jul. 26, 2009) corresponds to a period without X and C-bands SAR data coverage.



Fig. IV-2: Compilation stack of SAR data with location of recurrent seep sites.

To get simultaneous acquisitions of SAR data and current measurements, we supplemented the dataset with L-band SAR scenes, also suitable for oil slick recognition even though the volume of detected oil might be underestimated (*Gade and Alpers, 1998*). The SAR coverage during ACDP records consisted only of 10 ALOS (Advanced Land Observation Satellite) scenes, among which one scene, dated June 30, 2009, that notified the presence of oil slicks.

We identified about 3000 seepage slicks that were reliably associated with a hundred of recurrent seep sites based on analysis of overlapping SAR scenes (Fig. IV-2; *Jatiault et al., 2017*). The seeping province was located about 150 km offshore Angola at water depths ranging from 1200 to 2700 m. The proximal edge of recurrent oil slicks (i.e. the location of the last oil droplet of an individual seep at the sea surface) determined the location of the Oil Slick Origins (OSO; *Garcia-Pineda et al., 2010*; Fig. IV-3). The spatial dispersion of OSO provided an efficient means for isolating the horizontal deflection of oil droplets produced during the transit period within the water column, compared against the sea surface displacement (winds and surface currents).



Fig. IV-3: a. Schematic representation of the methodology used to quantify the deflection of oil droplets in the water column. Oil Slick Origins (OSO) were drawn from the proximal detectable edge of seepage slicks on the compilation stack of SAR data. b. The distribution of the deflection value was assessed from the distance and orientation between the GMC (Geometric Mean Centre) and individual OSO. c. Representation of the vertical distribution of sensors ( $Z_i$ ) and the methodology used to define water column intervals ( $I_i$ ) based on the depth of sensors pairs (see details in text).

Based on the compilation map of individual OSO, we computed the centroid of OSO clusters, namely the GMC (Geometric Mean Centre; Fig. IV-3a, b). The GMC location provided the average location where oil impacts the sea surface and is considered the most probable location of the origin of the oil expelled from the seafloor (*Garcia-Pineda et al., 2010; Körber et al., 2014*).

# 3.2. Methods

## 3.2.1. Simultaneous acquisition of SAR and ACDP records

When SAR scenes and current measurements were concomitant, the modeling of the horizontal deflection of oil droplets through the water column was assessed by computing the backward trajectory of oil droplets using ADCP measurements during the transit period before SAR acquisition.

We used mooring 1 data, which was located 15 km from recurrent oil seep sites (Fig. IV-2). We considered the ascension velocities of oil droplets reported in literature (i.e., between 2 and 50 cm.s<sup>-1</sup>, see Table IV-1). Given the water depth at mooring 1 (1820 m), the range of ascension velocity implied a time window of 1 to 25 hours prior to the SAR scene. The backward migration pathway of oil droplets from the location of the OSO on SAR scene was computed from the iterative addition of the travelled horizontal distance through subsequent intervals across the water column. The depth intervals were defined between the median positions of two successive pairs of current measurements (Fig. IV-3c). The travelled horizontal distance for each depth interval took into account the transit time of the droplet in this interval, considering the intensity and direction of the current concomitantly measured at this level. Hence, we estimated the location of the potential seepage site on the seafloor for the different ascension velocities. The resulting modeled sites were superimposed to the detailed seafloor features using a high-resolution bathymetric map (12.5 m lateral resolution).

#### 3.2.2. Statistical computation of the horizontal deflection

To complement the deflection assessed from simultaneous implementation of SAR and ADCP data, we performed a statistical analysis of the observed deflection during the long-term acquisition of SAR scenes. Subsurface water column measurements were unavailable during the SAR scene monitoring (1994 to 2014) and the only available current measurements were restricted to surface measurements, which are inappropriate for quantifying the water column deflection. The inventory of the location of recurrent seep sites (a hundred of sites concentrated around OSO clusters; Fig. IV-2) was used to quantify the underwater deflection.

The method consisted in measuring the distance and orientation of the spatial spreading of OSO from individual GMC. It provided a complementary technique for estimating the horizontal deflection in the water column when current measurements were unavailable (Fig. IV-4). We gathered the horizontal deflection assessed from each individual recurrent seep site to obtain a unique OSO population.

Finally, the theoretical OSOs were estimated at each mooring site considering a range of ascension velocities and the temporal variability of currents in the water column. An ensemble of possible forward droplet deflections was computed for every current-measurement time-step (every 10 minutes during 6 months for mooring 1, and every 20 minutes during 13 months for mooring 2). In those models, all seafloor origins were centered on the mooring locations and we calculated the theoretical lateral deflection of oil droplets towards the sea surface, taking into consideration a transit period depending on the ascension velocity. The spatial spreading of the modeled OSO ensemble was compared against the observed deflection distribution (Fig. IV-4). The understanding of the basin

hydrodynamics independently from seasonal variations is meaningful in this study because SAR scenes were acquired independently throughout the year. Although mooring point 2 was located further from the main seeping province (Fig. IV-2), it benefited from a full year of records compared to mooring 1.



Fig. IV-4: Method used to assess the in-situ underwater deflection by integrating the seepage slicks mapping, recurrent OSO around a common GMC. The modeling of the deflection used current measurements at moorings 1 and 2 for different oil droplet ascension velocities.

# 4. Results

# 4.1. Current distribution during the monitoring period

The analysis of current and CTD measurements shows that water masses and associated currents were layered across the water column in the study area (Fig. IV-5a). The first 10 m are characterized by relatively fresh warm waters, probably corresponding to the Congo plume (Fig. IV-5b). The subsurface layer (between 10 and 130 m in Fig. IV-5c) is warmer (16 - 24 °C), saltier (35.5 psu) and gather similar characteristics to those of the Angolan Current described by *Hardman-Mountford et al. (2003)*. The subsurface layer waters flowed mostly along-slope, towards the southwest, at velocities of 0 to 35 cm.s<sup>-1</sup>. From 130 m to roughly 385 m, the flow was predominantly along-slope, oriented to the northwest (Fig. IV-5c). The Benguela Counter Current intrusion along the Angolan coast probably corresponds to this intermediate flow, even though the reported influence is restricted to shallow waters (*Schneider et al., 1996; Hopkins et al., 2013*).



Fig. IV-5: a. Left: Annual mean along-slope (left) and across-slope (right) components of the current recorded at mooring 2 (see location in Fig. IV-1). We considered the local slope orientation declination of  $125^{\circ}$  N. b.  $\Theta$ -S diagram from CTD (conductivity, temperature, depth) profiles collected in January 2009. Potential temperature corresponds to the temperature corrected for the effect of pressure. c. Distribution of the mean current orientations and strengths of the main hydrographical units as shown in Fig. IV-5a. 1: surface layer (7-130 m), 2: subsurface layer (130 - 385 m), 3: intermediate layer (385 - 1185 m).

The deep (385 - 1185 m) and bottom (1185 - 1600 m) currents were also oriented along-slope, with the mean flow towards the southeast (interval 3 and 4 in Fig. IV-5c) with peak velocities around 20 cm.s<sup>-1</sup>. These layers probably correspond to the Antarctic Intermediate Water (AAIW) and North Atlantic Deep Water (NADW), transported by the Southern Intermediate Counter Current (SICC). The temperature and the salinity values (Fig. IV-5b) demonstrated that the seawater density gradient was greater than 5 mg.l<sup>-1</sup> between the bottom waters (<27.5 g.l<sup>-1</sup>) and the near-surface waters (>22.7 g.l<sup>-1</sup>). The water density strongly decreased from 100m upwards in relation with a consistent salinity contrast between the Angolan Current and the Congo River plume.

## 4.2. Evidence of active hydrocarbon seepage

From Jan. 16, 2009 to Jul. 26, 2009 when the currents were being recorded (mooring 1), an SAR scene was gathered on June 30, 2009. It showed the presence of seven areas characterized by local decreases in the radiometric values and moderate reflectivity contrasts between oily covered areas and free water. They consist of continuous threadlike features from 5 to 20 km in length, that are interpreted as sea-surface natural slicks considering their proximity with recurrent seep sites already identified from long-term SAR monitoring (1994 - 2014). Two slicks close to (~15 km) the mooring 1 site (Fig. IV-6a) form consistent black patches with orientations of 290°N and 330°N for seep sites 1 and 2, respectively. These orientations are inline with near-surface currents flowing towards the west (268°N) at a speed of 20 cm.s<sup>-1</sup> during the SAR acquisition. During the long-term monitoring period, 41 individual seepage slicks interpreted from 102 overlapping SAR scenes were linked to seep site 1 (Fig. IV-6b). The compilation map showed that seepage slicks diverged from a central area corresponding to the probable surface area. The high number of recurrent slicks detected ranked the seep site as a high seepage activity area with a high occurrence rate (ratio between the amount of detected slicks and SAR coverage density) of 40%. Conversely, seep site 2 appeared as a low-activity area as only the scene dated June 30, 2009, differed from the existing 102 scenes, showing a seepage slick (Fig. IV-6a, b).



Fig. IV-6: a. Extract of the ALOS SAR scene acquired on June 30, 2009 zoomed-in on the location of mooring 1 and closest oil slicks (scene provided by the Japan Aerospace Exploration Agency). Two oil slicks are outlined in black polylines for the display. OSOs are spotted from the proximal edge of recurrent oil slicks deduced from the slicks compilation map. b. Compilation map of seepage slicks identified from the analysis of the 103 overlapping SAR scenes. The color-scale refers to the year of observation. The black box in the right top corner displays the slicks compilation map focused on the probable surfaced area.

# 4.3. Computation of the horizontal deflection of oil droplets

The deflection of oil droplets during their transit time through the water column depends on their ascension velocity (Table IV-4).

Table IV-4: Inventory of modeled deflection values expressed in distance and orientation for a range of probable ascension velocities, considering a water depth of 1820 m (depth of mooring 1). The orientation is provided for a backward deflection from the slicks observed from the sea surface towards the seafloor emission point. It also presents the deflection orientation for forward modeling from a seafloor pockmark towards the sea-surface slick.

Ascension	Transit period	Modeled distance	Backward	Forward deflection
velocity (cm.s <sup>-1</sup> )	(hh:mm)	of deflection (m)	deflection angle (°)	angle (°)
2	25:15	1255	224	44
2,5	20:15	1247	218	38
3	16:50	654	171	351
3,5	14:25	593	169	349
4	12:35	488	168	348
4,5	11:15	394	175	355
5	10:05	409	174	354
6	8:25	399	177	357
7	7:15	373	168	348
8	6:20	379	196	16
9	5:35	182	176	356
10	5:00	250	157	337
15	3:20	169	209	29
50	1:00	127	211	31

The calculated transit period ranged from 1h to 25h depending on the ascension velocity (Table IV-4). During the 24h preceding the SAR scene acquisition, currents were constant over time (Fig. IV-7). Vertical shear layers appeared between depths of 1200 and 700 m, due to current reversal (Fig. IV-7). Assuming that the current configuration was probably similar between the way-in moment and the way-out moment in incremental intervals, this suggests that the approximation of a constant deflection during the transit time within intervals (>3h30) is fairly satisfactory.



Period of possible current effect on the oil droplet deflection



The backward deflections and the locations of the potential seepage sites on the seafloor with the different ascension velocities for the June 30, 2009 ALOS SAR scene are shown in Fig. 8. The seafloor origin is located southwards of the OSO location when ascension velocities are greater than 3 cm s<sup>-1</sup>; the location is southwesterly for lower ascension velocities (<3 cm.s<sup>-1</sup>). The deflection distance increased with decreasing ascension velocity (Table IV-4), between 150 m for the highest values (50 cm s<sup>-1</sup>) and 1255 m for the lowest one (2 cm.s<sup>-1</sup>; Fig. IV-8; Table IV-4).


- $\bigstar$  Modelled deflection depending on the oil droplets rising speed
- Oil Slick Origin detected the Jun. 30, 2009

*Fig. IV-8: Top view of the total backward deflection values related to the acquisition of the ALOS SAR scene dated June 30, 2009. The deflection value is computed by integrating current measurements at Mooring 1 for a range of ascension velocities between 2 and* 50 cm.s<sup>-1</sup>.

#### 4.4. Connecting sea-surface slicks with seafloor features

The modeled backward deflections showed that the probable seafloor origin is located southwardly of the surface slicks location (Fig. IV-8). In this direction, the proximal edge of both slicks (seep sites 1 and 2) are in the vicinity of the vertical projection of seafloor depressions (Fig. IV-9).



Fig. IV-9: a, b. Bathymetric and slope maps on the proximal edge of oil slicks at the Seep sites 1 and 2, respectively (see locations in Fig. 6). Steep slopes that appear in dark correspond to seafloor disturbances associated with natural oil seeps on the seafloor. Black continuous lines are 50m isobaths. The oil slicks detected at the sea surface on the June 30, 2009 are superimposed with the OSO and the modeled deflections for a range of probable ascension velocities (colored stars).

The water depth at seep site 1 is roughly 2100 m. The large ovoid-shaped seafloor positive relief is associated with an underlying salt diapir (outlined in pink dashed lines). The active fluid-venting seafloor structure was visible from the identification of topographic disturbances consisting of seven individual sub-circular depressions, looking like typical pockmarks, i.e. seafloor structures that are related to fluids supply (Fig. IV-6a). The edge of the proximal pockmark was close to the location of the modeled seafloor origin for ascension velocities ranging from 3 to 7 cm s<sup>-1</sup> (Fig. IV-9a).

At seep site 2, where the water depth is 1940 m, the seafloor disturbance is characterized by a large depression (800 m in diameter) strewn with micro-depressions (Fig. IV-6c). The main depression flanks were close to the location of the modeled seafloor origin for ascension velocities ranging from 3 to 4 cm.s<sup>-1</sup> (Fig. IV-9b).

The best spatial correspondence between modeled seafloor origin and location of seafloor depressions accounts for an ascension velocity of 3 cm.s<sup>-1</sup> for both seep sites 1 and 2. The Fig. IV-10a illustrates the modeled migration pathway of oil droplets through the water column, between the seafloor origin (red star) and the OSO surface, considering an ascension velocity of 3 cm.s<sup>-1</sup>. The modeled deflection showed strong variations in the direction of droplet deflection through the water column, with a total travelled distance of 1200 m (Fig. IV-10b). The orientation of the near-surface deflection was in agreement with the surface alignment of the slicks.



160

Fig. IV-10: a. Modeled migration pathway of the oil droplets (June 30, 2009) in the water column using Mooring 1 records for an ascent velocity of 3 cm.s<sup>-1</sup>. The location of the modeled seafloor origin is shown by the red star and the OSO by a cross in a white circle. b. Top view of oil plume location across the water column.

#### 4.5. Statistical approach of the horizontal deflection

To complement the assessment of the deflection from simultaneous acquisition of SAR scenes and mooring data, we inspected the distribution of roughly 3000 deflection distances between OSO and their GMC from SAR acquired over 21 years (Fig. 11). The OSO were deflected radially with distance of 0 to 2500 m from the GMC. Most deflection distances occurred between 500 to 1000 m, with a peak around 750 m.



Fig. IV-11: a. Horizontal deflection observed from the individual location of OSO and GMC locations for roughly 3000 individual slicks over 21 years. Continuous lines are isodensity markers. b. Histogram of the distribution of the distances between OSO and their GMC.

The theoretical dispersion of OSO was assessed from the repetitive calculation of the deflection distance using the current measurements of the two mooring sites and with different ascension velocities. The number of deflection scenarii was defined from the mooring sampling interval (10 min for mooring 1 and 20 min for mooring 2) and the period of records (6 months for mooring 1 and 1 year for mooring 2). Assembling theoretical OSO provided an additional approach for quantifying the probable deflection depending on the ascension velocities (see appendices; Fig. IV-A.1 and Fig IV-A.2). The ascent modeling was reproduced for each time step in the recording periods, resulting in the computation of 27 300 theoretical OSO for mooring 1 and 28 800 OSO for mooring 2. The distribution of OSO deflection distances is displayed in Fig. 12a for ADCP 1 and Fig. 12b for

ADCP 2, for the range of ascension velocities reported in literature by comparison with the measured deflection distribution.

The deflection associated with velocities from 50 to 10 cm.s<sup>-1</sup> produced restricted deflections (mostly lower than 100 m) and the spatial distribution clearly differed from the measured deflections for both mooring 1 or 2 (for more details see appendices; Fig. IV-A.1 and Fig IV-A.2). The measured and computed deflection distributions were quite similar for ascension velocities ranging 6 to 9 cm.s<sup>-1</sup> (see additional data), and were almost alike for ascension velocities of 8 cm.s<sup>-1</sup> (Fig. IV-12). Slower ascension velocity values (2 - 5 cm.s<sup>-1</sup>) produce deflections that largely exceeded measured values. The scatter plot of the theoretical OSO locations was characterized by a strong preferential orientation of the droplet deflections along the 140 °N- 320 °N direction for Mooring 1, and 120 °N - 300 °N for Mooring 2 (i.e. along the continental slope; Fig. IV-12c, d). The average modeled deflection (modeled GMC in Fig. IV-12c, d) located around 350 m to the northwest for Mooring 1 and was almost sub-vertical (<150 m) from the theoretical seafloor origin (mooring locations) of expelled oils.

## 5. Discussion

The aim of this paper is to: (1) quantify the range and temporal variability of the deflection offset of oil droplets rising through the water column in the Lower Congo Basin, (2) link sea-surface oil manifestations with seafloor features, (3) suggest a range of probable rising velocities and (4) evaluate the deflection offset compared against the water column thickness.

The following discussion aims to establish:

- The accuracy of the model and probable limiting factors.
- The possible variability of the oil plume behavior when rising across the water column.
- A comparison with predicted ascent models.
- A comparison with results published to understand if deflection values can be compared between study areas.



Fig. IV-12: a, b. Distribution of deflection distances using mooring 1 and 2 respectively, computed using the kernel density for reported ascension velocities in dashed lines. The distribution of measured deflection is displayed as a thick continuous black line. c. Computation of the theoretical location of OSO at the sea surface during the monitoring period (Jan. 16, to Jul. 26, 2009) with 10 minute intervals for an ascension velocity of 8 cm.s<sup>-1</sup>. d. Computation of the theoretical location of OSO at the sea surface during the monitoring period (Sep 22, 1997 to Oct 27, 1998) with 20-minute intervals for an ascension velocity of 8 cm.s<sup>-1</sup>.

#### 5.1 Accuracy of the model

The calculation based on in-situ mooring measurements and statistical methods developed in this study showed that the best correlation between surface slicks and seafloor fluid-related erosive features (i.e. Pockmarks) account for an ascension velocity of 3 cm.s<sup>-1</sup> to 8 cm.s<sup>-1</sup>. Although the two methods provided slightly distinctive results, the range exposed in this paper corresponds to the lowest values reported in literature (from 2 to 50 cm.s<sup>-1</sup>; *Macdonald et al., 2002; Crooke et al., 2015*). The sub-circular depressions observed in the vicinity of the vertical projection of surface area of recurrent oil slicks are interpreted as pockmarks, which are the seafloor expression of active or recent fluid flow (*King and McLean, 1970*). The backward deflection closes with the pockmark edge but obviously remains under-estimated as the centers of the seafloor erosive features are not reached with the modeled deflection (Fig. IV-13).

We consider that several parameters might induce differences between measured and modeled deflections, thereby limiting the accuracy of the modeling technique that combines concomitant ADCP and SAR acquisitions:

- Even if the mooring 1 location is only 15 km from recurrent seep site locations, the underwater current might be slightly different between the seepage and mooring locations.
- The OSO corresponds to the proximal detectable edge of the slicks (*Garcia-Pineda et al., 2010*), which is subjected to great variability in slick thickness. The proximal edge location depends on the SAR detectability threshold of the slick thickness (0.1 μm; *MacDonald et al., 1993; National Research Council, 2003*) and therefore may be slightly different from the in-situ location.
- The amount of detected oil is significantly underestimated with L-band acquisition compared to X and C bands (*Gade and Alpers, 1998*). Therefore, although ALOS scenes have a relatively good pixel spatial resolution (12.5 m), the difference between the surface area and the proximal detectable edge is probably increased using L-band satellite images.

• The water depth is greater at seepage sites 1 (2100 m) and 2 (1940 m) compared to the location of the mooring location. The observed deflection is expected to be greater than the modeled deflection; this may partially explain why the modeled deflection fails to match the erosive seafloor depressions that are considered as the seafloor origin of expelled fluids.



Fig. IV-13: Synthetic representation of the probable migration pathway of the oil plume between a sea-surface slick and a cluster of seafloor pockmarks, considering an ascension velocity of 3 cm.s<sup>-1</sup> at seep site 2. Cold colors refer to deep intervals; warm colors refer to shallow intervals. Circles with crosses pinpoint the locations in depth of the main inflection of the oil plume pathway.

The SAR acquisition deficiency from the C and X band satellite constellation inhibits the spontaneous quantification of the deflection. To improve the accuracy of the method, the integration of a larger

SAR dataset (Ku -bands for instance) during mooring records would be decisive for quantifying the deflection and therefore the estimate of the ascension velocity through the water column.

#### 5.2. Variability of the ascension velocity through the water column

The bubble ascension velocity was reported to decrease through the water column in the Black Sea (Greinert et al., 2006). Within the Gas Hydrate Stability Zone (GHSZ), the hydrate bubble coating is known to delay the dissolution of light methane, prohibiting the interactions between ocean water and methane (Rehder et al., 2002; McGinnis et al., 2006). The minimum depth of GHSZ in the water column depends on the sea-surface temperature and the thermal gradient but is roughly limited to water depths greater than 430 m (Kvenvolden and Barnard, 1983; Dholabhai et al., 1991; Rehder et al., 2002; McGinnis et al., 2006; Sloan and Koh, 2008). The rapid gas components dissolution above the GHSZ leads to a relative increase in the oil/gas ratio, resulting in a decrease of buoyant forces and ascension velocity through the water column. For seep sites characterized by an oil and gas mixture, 80 to 99% of methane dissolves in the water column while rising to the sea surface (Solomon et al., 2009). Even if the effect of a hydrate bubble coating on the ascension velocity remains poorly documented, the methane preservation in stable hydrate conditions presumably steers the ascent regime. In addition, the plume consistency produces an ensemble of buoyancy forces that decreases the transit time to the sea surface in the case of high fluid flow (Leifer et al., 2006). Methane dissolution would therefore produce a dual effect on the ascension velocity by increasing the oil/gas ratio and diminishing the buoyant forces. In addition, the seawater density gradient of the LCB  $(\Delta = 5g.l^{-1})$  is high compared to other seeping regions (*Greinert et al., 2006*) and the associated water layering appears to significantly contribute to the hydrographical dynamics of the LCB (Fig. IV-5b). The strong decrease in the seawater density of the upper layer probably also contributes to the decrease in the density contrast between hydrocarbon bubbles and seawater. Experimental studies demonstrated that a consistent portion of crude oil remains potentially stored between layered water mass units (Adalsteinsson et al., 2011; Camassa et al., 2013; Landeau et al., 2014; Mirajkar et al., 2015). Hydrocarbon stratification is possible in the LCB above the GHSZ, and may be expected below the shallow and buoyant Congo River Plume waters.

In this study, we approximated the ascension velocity as constant through the water column. However, a decrease in the bubble velocity model, or hydrocarbon stratification in the water column, would relatively enhance the impact of subsurface currents compared to bottom currents, by increasing the residence time of the oil droplet in the subsurface. Since the subsurface dynamics flowed north-westward during the acquisition of ALOS SAR scene (Fig. IV-10), the modeled deflection would best fit between the observed location of seafloor pockmarks and sea surface OSO considering a slower bubble velocity in the subsurface water layer. However, the connection between surface slicks and seafloor pockmarks suggests that the delay associated with a decrease in the ascension velocity cannot be considered as a prevailing contributor to the underwater deflection.

#### 5.3. Comparison with predicted ascent models

The model established by *Clift et al., (1978)* considered a range of probable ascension velocities up to 50 cm.s<sup>-1</sup> for expelled rising hydrocarbon bubbles of ellipsoidal shape. This study shows that probable ascension velocities of natural oil bubbles range between 3 and 8 cm.s<sup>-1</sup> in the LCB. Following the model of *Clift et al. (1978)*, only bubbles with diameters lower than 2 mm following an ellipsoidal regime rise with velocities of 3 to 8 cm.s<sup>-1</sup>. Conversely, only larger methane bubbles (>2.4 mm) are presumed to reach the sea surface (Solomon et al., 2009). The characteristics of oil naturally released from the seafloor are largely modified under the action of bacteria (Head et al., 2003; Larter et al., 2003; Larter et al., 2006; Jones et al., 2008). Natural oils are presumed to be more viscous and heavier than oil found in reservoirs. Therefore, the ascension velocity of natural oil is presumed to be slower than anthropogenic spills and therefore produces larger deflection cut-off values (Fig. IV-12). Natural oil bubbles probably follow a different regime than the classical "ellipsoidal" regime due to severe biodegradation that modifies the oil type and therefore could result in radical changes of the ascension velocity. In-situ acquisitions of photos/videos (unpublished data in Total database) show that oils are expelled rather as threadlike oil streaks instead of regular bubbles. The presumed difference in the bubble regime is probably associated with the degree of hydrocarbon biodegradation in the sedimentary series (Wenger and Isaksen 2002; Head et al., 2003; Larter 2003; Larter et al., 2003; Peters et al., 2007; Jones et al., 2008).

#### 5.4. Horizontal deflection compared to the water depth

The published linear equations quantifying the deflection cut-off (maximum observed deflection range) as a function of the water depth and probably apply to consistent and coherent currents through the water column (*Garcia-Pineda et al., 2010*).

It is inferred that oil slicks can be horizontally displaced from the origin on the seafloor by a distance up to 5 times the water depth (*Garcia-Pineda et al., 2010*). In the LCB, the deflection cut-off remains below the value of the water depth for most (95 %) of recurrent seepage sites (deflection range to water depth ratio of less than 1). The deflection cut-off outreaches the water depth only for shallow seepage sites (water depth of 1200 m). The hydrodynamic conditions of the LCB are characterized by multiple current components (Fig. IV-1) and the averaged current distribution shows opposite current directions between water masses (Fig. IV-5 and 7). The reverse currents relatively decrease the vertical deflection distance between the location of the OSO and its vertical projection on the seafloor (Fig. IV-10), which explains why the total value of the horizontal deflection remains low compared to the water depth.

The deflections modeled with slow ascension velocities (2 and 2.5) were consistently different from the deflections computed for 3 to 50 cm. s<sup>-1</sup>. The spot intensification of the current speed observed at 969 m, 18 h before the SAR acquisitions (Fig. IV-7) could explain the difference in orientation for modeled deflections by an induced strong south-west deflection for backward propagation models at lower ascension velocity. The transit period can be strongly different (3h50 - 25h) depending on the water depth (1100 - 2700 m) and ascension velocity (3 - 8 cm.s<sup>-1</sup>). Therefore, it is highly probable that the underwater deflection between shallow (1100 m) and deeper seep sites (2700 m) during simultaneous active stages will be consistently different.

Mooring 1 is 430 m deeper than mooring 2, yet the stack of the theoretical OSO location along the monitoring period shows that modeled OSO spans a larger distance for the shallower mooring 2 (Fig. IV-12c and d). Proximal areas from the shelf are probably affected by more consistent current variability between the BCC (*Hopkins et al., 2013*) and the AC (*Hardman-Mountford et al., 2003*), but also can be affected by a "Venturi effect" that increases the velocity of water masses towards the shelf. The enhancement of the current velocity in shallower areas of the LCB (*Santos et al., 2012; Kopte et al., 2017*) is probably responsible for the greater deflection values observed during long-term monitoring (*Jatiault et al., 2017*).

The average location of OSO (modeled GMC; white star in Fig. IV-12c, d) is horizontally displaced by 350 m from for the vertical projection of the seafloor origin for mooring 1 while it roughly corresponds to the sub-vertical projection of the seafloor origin for mooring 2. Considering that the recording period of Mooring 1 is restricted to 6 months, the average deflection observed at this site is presumably associated with seasonal variations in the current distribution (*Hardman-Mountford et al., 2003; Kopte et al., 2017*). This suggests that the sub-vertical link between the GMC location and the seafloor origin is only valid considering a SAR dataset acquired homogeneously throughout the year. The measured deflection distribution is associated with a slighter prominent orientation of the deflection along the slope axis (Fig. IV-11a) in agreement with modeled deflections (Fig. IV-12a, b).

This suggests that the main current distributions prevail on droplet deflection compared to the water depth in open sea-conditions. The comparison between measured current velocity at a local scale and regional scale models (HYCOM, SAT-OCEAN) could help clarify the velocity range and thereby improve our understanding of migration pathways of oil droplets in the water column.

## 6. Conclusions

In this paper, we estimated a range of probable ascension velocities of oil droplets in the water column in the case of natural oil seepage systems. For the first time, this study provides a predictive model of the deflection of natural oil droplets rising through the water column for natural seeps. The following conclusions were established from the integration of SAR slicks inventory, mooring measurements and bathymetric data:

- The bi-decadal SAR monitoring of seepage manifestations shows that the OSO locations are limited to a maximum deflection of 2500 m of diameter from the seafloor origin.
- The modeling of the hydrocarbon plume migration pathway show that **most of the lateral deflection occurs in the subsurface layer** where the current velocity intensifies and the oil droplet ascension velocity decrease.
- The integration of ADCP measurements successfully address the seafloor location of seeping oil that rise and spread at the sea surface by reconstructing the vertical migration of oil droplets, considered for a range of probable ascension velocities in the water column. The modeled deflection of the oil plume best fits between sea surface OSO and seafloor pockmarks considering an **ascension velocity of 3 cm.s<sup>-1</sup> to 8 cm.s<sup>-1</sup>**.
- The average location of the impact point of oil at the sea surface corresponds to the sub-vertical projection of seepage manifestations on the seafloor, but this can be subjected to seasonal variations.
- Shallower seepage sites are affected by a greater average deflection value which therefore confirms that linear deflection equations between the deflection value and the water depth are not applicable for complex hydrographical provinces such as open sea conditions.
- For most of recurrent seep sites, the horizontal deflection of oil droplets remains below the value of the water depth. The reverse currents associated with a vertical hydrographical layering in the LCB decreases the horizontal deflection values of the oil plume.

## <u>Appendices</u>







Fig. IV-A.1: Computation of the theoretical location of OSO at the sea surface during the period of mooring ADCP 1 (Jan. 16, to Jul. 26, 2009) with 10 minutes interval for a range of reported rising speeds. The location of the ADCP corresponds to the location of the modeled origin of the expelled oil plume. Bottom right: Measured deflection distribution.

170







Fig. IV-A.2: Computation of the theoretical location of OSO at the sea surface during the period of mooring ADCP 2 (Sept. 22, 1997 to Oct. 27, 1998) with 20 minutes interval for a range of reported rising speeds. The location of the ADCP corresponds to the location of the modeled origin of the expelled oil plume. Bottom right: Measured deflection distribution.

<u>Chapitre V.</u> Caractérisation géophysique et morphologique d'un site d'émanation d'hydrocarbures lourds



Sources: AAPG Bulletin, CGG, European Geoscience Union, European Space Agency, Florida State University, Marum, Roberts Scribbler, Sea Change, TDI Brooks, Woods Hole Oceanographic Institution

## Introduction à l'article accepté avec corrections à la revue Marine and Petroleum Geology

L'analyse d'un jeu de données satellitaires permet à présent d'avoir une représentation régionale de la situation des sorties actives d'hydrocarbures lourds dans le bassin du Bas-Congo (**Chapitre III**). L'intégration des données de courantométrie à ensuite permis de comprendre les conditions hydrodynamiques présentes dans le basin Angolais et de relier les signatures de présence d'huile à la surface de la mer avec certains objets visibles en fond de mer (**Chapitre IV**). Les signatures géophysiques associées aux zones de déversements d'hydrocarbures thermogéniques demeurent peu étudiées et encore mal décrites car très peu de sites ont été explorés par des mesures acoustiques. En particulier, aucune étude ne présente l'organisation en 3D de zones d'émanations d'hydrocarbures lourds au niveau de la subsurface. La caractérisation géophysique des sites d'émanation d'hydrocarbures lourds est associée à plusieurs questionnements scientifiques que nous tenterons de résoudre :

- Quels sont les contextes de mise en place des émanations d'hydrocarbures lourds ?
- Existe-t-il des signatures géophysiques et/ou des caractères morphologiques spécifiques aux zones d'émanation d'hydrocarbures lourds ?
- Ces émanations sont-elles, au même titre que le Golfe du Mexique ou le bassin de Santa Barbara, associées à des topographies positives en fond de mer ?

Pour caractériser ces sites d'émanation d'hydrocarbures lourds, nous avons choisi d'adopter une stratégie en deux temps, en procédant premièrement à une analyse locale d'un site d'émanation avec un maximum de détail, pour aller vers une caractérisation plus régionale. Dans ce **Chapitre V**, nous effectuons la revue détaillée des signatures géophysiques au niveau d'un site en particulier qui bénéficie d'un jeu de données fond de mer et de subsurface important. La zone dispose notamment un bloc de sismique 3D ainsi que un jeu de données haute résolution du fond de mer et de la subsurface. La caractérisation et la validation régionale des attributs identifiés et les hypothèses émises lors de ce **Chapitre V** seront effectués au cours du chapitre suivant (**Chapitre VI**).

L'étude a été réalisée grâce à la mise à disposition de données sismiques par Total et à l'interprétation sur station avec le logiciel Sismage. Les résultats de cette étude à fait l'objet d'une publication acceptée avec correction par la revue *Marine and Petroleum Geology*, intitulée "*Geophysical characterisation of an active thermogenic oil seep in the Lower Congo Basin*".

## Geophysical characterisation of an active thermogenic oil seep in the Lower Congo Basin

# Article soumis le 29/05/2017, accepté avec corrections le 09/08/2017 par la revue Marine and Petroleum Geology.

Romain Jatiault<sup>a, b</sup>\*, Lies Loncke<sup>b</sup>, Damien Dhont<sup>a</sup>, Patrice Imbert<sup>a</sup>, Dominique Dubucq<sup>a</sup>

<sup>a</sup> Total SA, Centre Scientifique et Technique Jean Feger (CSTJF), Avenue Larribau, 64018 Pau, France

b University of Perpignan Via Domitia, Centre de Formation et de Recherche sur les Environnements Méditerranéens (CEFREM), UMR 5110, 52 Avenue Paul Alduy, 66100 Perpignan, France

\*Corresponding author. University of Perpignan Via Domitia, Centre de Formation et de Recherche sur les Environnements Méditerranéens (CEFREM), UMR 5110, 52 Avenue Paul Alduy, 66100 Perpignan, France. Tel.: +334 68 66 20 98

E-mail addresses: romain.jatiault@univ-perp.fr, romain.jatiault@gmail.com (R. Jatiault)

#### Abbreviations

AOM	Anaerobic Oxydation of Methane	NAA	Negative Amplitude Anomaly
AUV	Autonomous Underwater Vehicle	OSO	Oil Slick Origins
BGHSZ	Base of the Gas Hydrate Stability Zone	RMS	Root Mean Square
BSR	Bottom Simulating Reflection	SAR	Synthetic Aperture Radar
ERS	European Remote Sensing	SBP	Sub-Bottom Profiler
GMC	Geometric Mean Centre	SMI	Sulphate Methane Interface
HAB	High Amplitude Bodies	TOC	Total organic Carbon
HIL	High Impedance Layer	TWT	Two Way Time
IMP	Image Mode Precision	WSM	Wide Swath Mode
LCB	Lower Congo Basin		

#### Résumé

L'analyse d'images spatiales présentant des évidences de fuites naturelles d'huile à la surface de la mer couplées avec un ensemble de données d'imagerie du fond marin et de la subsurface permet d'identifier les caractéristiques géophysiques associées aux sites de déversement de fluides thermogéniques dans le bassin du Bas-Congo. Nous avons passé en revue les caractéristiques géophysiques et morpho-structurales d'un site d'expulsion actif de pétrole sur le fond marin. Les exutoires des fluides correspondent à des dépressions de forme complexe sur le fond marin, constituée d'un groupe de pockmarks hétérométriques à l'intérieur d'une zone de dépression principale et associés à des monticules métriques en périphérie. Les zones locales dépressionnaires sont associés à des anomalies d'amplitude sur le fond marin connectés à des cheminées verticales de fortes amplitude sismique, enracinés sur la BGHSZ ce qui suggère un flux de fluide focalisé vers le fond marin. Dans les zones périphériques, les monticules sont reliés par des failles peu profondes à des anomalies enfouies de forte amplitude sur les données de sondeur de sédiment. La présence de monticules métriques combinés à un approfondissement progressif des fortes amplitudes par rapport au fond marin suggère flux d'hydrocarbures modéré dans les périphériques. un zones La proximité des dépressions associées à un flux focalisé et des monticules bathymétriques montre que le flux d'hydrocarbures diminue rapidement latéralement. Le site de déversement de fluides thermogéniques est affecté par deux réflexions cohérentes et subparallèles avec une polarité sismique négative. Le premier est interprété comme la BGHSZ lié à la dysmigration de méthane, le second pourrait correspondre à la BGHSZ thermogénique produit par un mélange de gaz plus lourd.

*Mots clés* : Nappe d'hydrocarbures, Fuite d'hydrocarbures thermogéniques, Pockmarks, Asphaltes, Diapirs de sel, Bassin du Bas-Congo, Hydrates de gaz, Double BSR.

## **1. Introduction**

Seepages of heavy hydrocarbon are well distributed along most of the world's continental margins (*Wilson et al., 1973; Kvenvolden and Harbaugh, 1983; Kvenvolden and Cooper, 2003; National Research Council, 2003*). Natural hydrocarbon seeps are widely used by petroleum companies as an exploration tool as they provide evidence for an active petroleum system (*Abrams, 2005; Serié et al., 2016*). The evaluation of geohazards in the deep-sea environment also relies on the knowledge of the natural seep mechanism as active seepage enhances the risk of slope failure (*Acosta et al, 2005; Bünz et al., 2005; Judd and Hovland, 2009; Pattier et al., 2013;* 

*Gwiazda et al., 2016*). For environmental purposes, the recognition of hydrocarbon seeps helps to identify habitats for extreme environment ecosystems mostly consisting of abundant tubeworms and clams (*Ondreas et al., 2005; Judd and Hovland, 2009; Jones et al., 2014*).

Natural hydrocarbon escapes can originate either from biogenic-related processes under the action of bacteria at shallow depths or from thermocatalytic processes under the effect of heat and pressure triggered during the burial history of sediments (Floodgate and Judd, *1992*). The morphological expression of fluid seepages occur as seafloor mud volcanoes, mounds or pockmarks, defined as depressions associated with a contemporary focused fluid flow (King and MacLean, 1970; Hovland, 1981; Hovland and Judd, 1988; Judd and Hovland, 2009; Hovland et al, 2010; Andresen and Huuse, 2011; Andresen, 2012). The vertical migration of hydrocarbons through sedimentary series is typically expressed through the presence of clustering pipes or large-scale isolated chimneys corresponding to vertical acoustic disturbances on geophysical sections (Loncke et al., 2004; Gay et al., 2006a, b; Dupré et al., 2007; Moss and Cartwright, 2010, Løseth et al., 2011, Karstens and Berndt, 2015). However, geophysical subsurface imagery is unable to characterise the fluid type and discriminate thermogenic from biogenic seepage. Seafloor coring provides a precise means to evaluate the nature of hydrocarbons on the seafloor (Abrams, 2005) but requires the deployment of relatively heavy toolsets. The identification of recurrent oil seepage slicks provides an efficient way to demonstrate thermogenic migration and can therefore be used to locate active thermogenic seeps (Macdonald et al., 1993; de Beukaleaur et al., 2003; Garcia-Pineda et al., 2010; Körber et al., 2014; Serié et al., 2016; Jatiault et al., 2017).

In contrast with the well-documented gas systems, the detailed description of seafloor features associated with oil seep systems is restricted to a few case studies. *Keller et al. (2007)* and *Valentine et al. (2010)* showed the presence of asphalt volcanoes on the seafloor corresponding to positive topographic mounds induced by oil and tar deposition in the Santa Barbara basin. Large asphalt knolls develop in the Gulf of Mexico (*Macdonald et al., 2004; Sahling et al., 2016*). A large number of small-size (less than 1 m) seafloor mounds composed of hardened oily materials hosting an abundant fauna of greatly diversified species on the seafloor was evidenced in the Lower Congo Basin (*Unterseh, 2013; Jones et al., 2014*).

The extensive description of pockmarks shows that their geometry can be quite different ranging from circular to elliptical (*Hovland, 1981; Hovland et al., 1984; Hovland et al., 2010; Andresen and Huuse, 2011; Andresen, 2012*). The depression diameters range from less than 5 m (*Hovland et al., 2010*) up

to the kilometre-scale, as in the Regab pockmark in offshore Gabon (*Charlou et al., 2004; Ondreas et al., 2005; Gay et al., 2006c; Marcon et al., 2014*).

Pockmarks are sorted into two main categories (Type I and II; *Riboulot et al., 2011; 2016*). Type I corresponds to "classic" conical pockmarks associated with focused fluid flow. Type II corresponds to large irregular, flat-bottomed pockmarks (~250 m in diameter) associated with the dissociation or dissolution of underlying hydrate nodules under the condition of fluid expulsion cessation or environmental changes (*Sultan et al., 2010*).

Numerous studies have shown a great morphological variability of pockmarks, but so far no correlation has been made between the typology of fluid flow features on the seabed and the type of fluid expelled. The prediction of oil-supplying pockmark characteristics has strong implications for petroleum exploration decisions and on the selection of coring targets.

The hydrocarbon migration dominated by heavy compounds at or close to the seafloor may result in specific geophysical features. The aim of this paper is first to assess the geophysical characteristics of oil seeps both on the seafloor and in the subsurface to understand whether specific attributes can be associated with active oil seep sites and then to offer an integrated vision of one large thermogenic seep in the Lower Congo Basin.

Space-borne Synthetic Aperture Radar (SAR) is a suitable tool for the recognition of oil leakage at the sea surface (e.g. *Gade and Alpers, 1998; Espedal and Johannessen, 2000; Hood et al., 2002; MacDonald et al., 2002; Williams and Lawrence, 2002; Brekke and Solberg, 2005; Zatyagalova et al., 2007; Garcia-Pineda et al., 2010; Körber et al, 2014; Jatiault et al., 2017*). In the oceanic environment, integrated studies of SAR imagery, seismic datasets and geochemical analyses have demonstrated their efficiency to understand hydrocarbon plumbing systems (*Garcia-Pineda et al., 2016*). We focused our observation on a zone of the Lower Congo Basin where a large amount of expelled oil was recognised at the sea surface (*Williams and Lawrence, 2002; Jatiault et al., 2017*) and where an high resolution geophysical dataset is available.

We will approach the oil seeps on the seafloor by combining different resolution datasets of subsurface seismic imagery used for petroleum exploration together with space-borne SAR imagery. Our area of interest refers to an isolated oil seep site that was imaged from both 3D seismics and high resolution survey.

## 2. The Lower Congo Basin

#### 2.1. Geological setting and petroleum plays

The Lower Congo Basin (LCB) is located in the northernmost offshore part of the Angolan margin (Fig. V-1a). The LCB extends over 115,000 km<sup>2</sup> (*Da Costa et al., 2000*) and is delimited to the north by the Gabon basin, to the south by the Ambriz arch (*Davison, 1999; Moulin et al., 2005; Guiraud et al., 2010; Moulin et al., 2010*) and to the west by the salt front and the associated Angolan escarpment (Fig. V-1a; *Anka et al. 2009*). It results from the Gondwana break-up between the South American and African plates initiated in the Early Cretaceous (e.g. *Lehner and de Ruiter, 1977; Brice et al., 1982, Duval et al., 1991; Marton et al., 2000; Marton et al., 2004*) that led to the opening of the South Atlantic Ocean and subsequent development of the West African passive margin (Fig. V-1b). The tectonostratigraphic framework of the LCB can be subdivided into three major phases.

From the Neocomian to Early Barremian, a rifting phase and associated basin subsidence occurred (*Brice et al., 1982; McHargue, 1990; Fort et al., 2004*). Crustal extension led to the development of horsts and grabens forming elongated continental basins progressively filled by siliciclastic deposits (*Brownfield and Charpentier, 2006*). The syn-rift lacustrine infill and alluvial sedimentation led to deposition of the thick (400 to 2100 m, *Brice et al., 1982; Cole et al., 2000; Schoelkopf and Patterson, 2000*), organic-rich (5 to 20 % TOC) **Bucomazi Fm**., (Fig. V-1c; *Burwood, 1999; McHargue, 1990; Brownfield and Charpentier, 2006*) composed of type I/II kerogens, meaning high potential for oil and gas production (*Van Krevelen et al., 1984*).

The second phase occurred from the late Barremian to Aptian with the end of the crustal extension. The confined environment of the margin bordered by the Walvis Ridge to the South and the consecutive drop of the main sea level deposited a thick evaporite layer (Fig. V-1b) reaching up to 1000 m in the LCB and mostly composed of massive halite topped by anhydrite (*Brice et al., 1982; Teisserenc and Villemin, 1989; Uchupi, 1992; Karner et al., 1997; Da Costa et al., 2000; Marton et al., 2000; Anka et al., 2009; Andresen and Huuse, 2011*). The subsequent cooling and contraction of the lithosphere increased thermal subsidence and triggered the progressive deepening of the basin.

The third phase is associated with the post-rift super-sequence, which can be subdivided into two periods. The late Cretaceous to Early Oligocene is associated with the greenhouse period that came along with low-amplitude sea level variations (*Séranne and Anka, 2005*). During the Albian, progressive transgression led to the development of a 700 to 800 m thick carbonate ramp

(Pinda fm; *Cole et al., 2000; Da Costa et al., 2000; Beglinger, 2012*). During the Cenomanian, sedimentation was prominently dominated by siliciclastic terrigenous input and the progradation of the basinward wedge. From the late Cretaceous to early Oligocene, continuous subsidence in an open marine environment was associated with deepwater deposits. The mudstone/marine siliciclastic **Iabe Fm.** (Fig. V-1c) is a rich oil-prone source rock with an average of 10 % TOC (*Burwood, 1999; Cole, 2000*).

The maturity of the **Iabe Fm.** varies spatially but is locally reported oil mature from the mid-Tertiary (*Danforth, 1998; Brownfield and Charpentier, 2006*). Eroded materials from the continent fed the progradational front during the deepening of the basin.

From the Early Oligocene to the Present, the "Icehouse" transition has been associated with an amplification of sea level changes. A major regional unconformity marks the Éocène-Oligocene transition (*Anka et al., 2009*). Paleogene and Neogene deposits are composed of turbidites originating from the upslope channel erosion. The associated oil-prone (~4% TOC) Landana and Malembo formations are mostly immature due to an insufficient overburden thickness (*Cole et al., 2000*). Plio-Quaternary series are dominated by fine-grained deposits consisting of hemipelagites and siltstones (*Uenzelmann-Neben, 1998*).

The post-salt sedimentary overburden is highly deformed by salt tectonics where evaporites act as a decollement layer, translating sediments toward distal provinces. The basin can be subdivided into three main domains typical of salt tectonics (Fig. V-1b). The proximal extensional domain, dominated by rafts and grabens, is characterised by thinned evaporites in relation to a translation of the overburden towards the basin (Brice et al., 1982; MacHargue, 1990; Duval et al., 1991; Burwood, 1999; Schoellkopf and Patterson, 2000). The transitional/translated domain is characterised by isolated diapirs with alternating sequences of undeformed packages shifted distally. The distal compressive domain is characterised by intense folding and salt thickening. Gravity-driven translation of the Tertiary sedimentary cover led to a drastic compression towards the distal areas. Geophysical imaging reveals a widespread diversity of salt bodies occurring either as domes, shallow walls or nappes (for an overview of allochthonous salt types, see Warren, 2016). Basinward compression together with ongoing salt tectonics led to the formation of squeezed diapirs (Brun and Fort, 2004). In the southernmost area, salt tectonics is characterised by successive walls (Guiraud et al., 2010; Maia et al., 2016) mostly oriented NW-SE. Massive shallow nappes develop in the distal and compressive toe of the margin. The presence of allochthonous salt is identifiable on the seafloor from the distribution of bathymetric highs above domes. Ongoing salt tectonics concentrated the deposits of the post-rift super-sequence into minibasins. Confined sedimentation in the minibasins is characterised by the deposition of channel/levee systems and turbidite fans (*Oluboyo et al., 2014*). Salt tectonics increased from the Oligocene to the present (*Séranne and Anka, 2005; Anka et al., 2013*) in relation to an increase of terrigenous sedimentary input associated with the Congo River establishment.



Fig. V-1: a. Location map of the study area showing the main geological provinces of the LCB. The map integrates the seafloor seeps reported in the literature (compiled from Gay et al., 2003; Gay et al., 2006a; Gay et al., 2007; Andresen et al., 2011; Wenau et al., 2014a, b; Jones et al., 2014) and recurrent oil slicks at the sea surface (white stars, from Jatiault et al., 2017). Continuous black lines represent 1000 m isobaths (Gebco). b. Regional cross section across the LCB displaying the pre-rift, syn-rift and post-rift sequences (modified from Jatiault et al., 2017). c. Chronostratigraphic log and petroleum system plays (modified from Anka et al., 2013).

#### 2.2. Evidence of natural hydrocarbon seeps in the Lower Congo Basin

The LCB is affected by a large active fluid seepage system, as revealed by the intensive petroleum exploration during the last decade. In salt minibasins, the widespread occurrence of conical Type I pockmarks related to sediment pore dewatering and biogenic methane venting are distributed in association with the polygonal fault network (*Cartwright 2007; Andresen et al., 2011*; Fig. V-1 a). Aligned type I pockmarks spread along the maximal flexural syncline axis of the minibasins (No. 1 in Fig. V-1a; *Andresen et al., 2011*) or occur as sinuous trends marking the ancient pathways of the Congo River (No. 2; Gay et al., 2003). A biogenic origin is also suspected for the giant (~2000 m diameter) Regab pockmark, located in the deep abyssal plain at the water depth of 3150 m (No. 3; Gay et al., 2006a). The origin of the gas expelled at the salt front remains undetermined (No. 4; *Wenau et al., 2014 a,b*).

A thermogenic contribution is highly suspected for isolated pockmarks linked with Miocene turbidite channels (No. 2; *Gay et al., 2006 b*) and for clustered pockmarks linked with salt diapirs (No. 5; *Andresen, 2012*). The migration of thermogenic hydrocarbon is proven from the identification of a large number of seafloor asphalt mounds that spread on top of salt diapirs (n°6; *Jones et al., 2014*). Seafloor asphalt mounds may reach approximately 1 m in height and host an abundant biofauna. The analysis of spaceborne SAR imagery demonstrated the migration of oil from the identification of a large amount of recurrent oil slicks at the sea surface expelled from natural seeps (*Jatiault et al., 2017*). More than 100 recurrent oil seep sites spread along the compressive domain associated with salt diapirs for water depths between 1100 m to 2700 m (white stars in Fig. V-1a). About  $4.38*10^6$  litres of oil are expelled per year along the Angolan coast from natural seeps, ranking the area as one of the most prolific oil supplying areas from the natural seepage process.

## 3. Material and methods

#### 3.1 Sea surface mapping of natural oil slicks

The SAR system is sensitive to capillary waves induced by the local wind at the sea surface (e.g. *Franceschetti et al., 2002; McCandless and Jackson, 2003*). We used published mapping of natural seepage slicks at the sea surface in the LCB interpreted from 104 SAR scenes (*Jatiault et al., 2017*) that we complemented with 52 Cosmo-Skymed scenes delivered every 15 days during 2013 and 2014 together with Sentinel-1 data acquired between 2015 and 2016. The delineation of elongated seepage slicks is based on low radiometric values analysis measuring the roughness of

the sea surface that is strongly contrasted between oil-covered areas and the surrounding open water (Espedal and Johannessen, 2000; Johannessen et al., 2000; MacDonald et al., 2002; Alpers and Espedal, 2004; Brekke and Solberg, 2005; Garcia-Pineda et al., 2009; Fingas and Brown, 2014). Considering that the sea surface displacement induced by winds and surface currents is highly variable temporally, the stack on a map of oil slick outlines highlights diverging structures where the centre pinpoints the locations of active oil seeps (Kornacki et al., 1994; MacDonald et al., 1996; Beukelear et al., 2003; Zatyagalova et al., 2007; Garcia-Pineda et al., 2010; de Garcia-Pineda et al., 2014; Körber et al., 2014; Jatiault et al., 2017). The Oil Slick Origins (OSO, Garcia-Pineda et al., 2010; Körber et al, 2014) are visually drawn from the location of the proximal detectable edge of each oil slick (Fig. V-2). Once stacked, the compilation of OSO highlights point clusters whose spatial dispersion is produced by the horizontal deflection of the oil plume when rising through the water column. The minimum-size circles encompassing each single OSO expelled from individual seep sites helps to evaluate the offset range values generated by the underwater deflection (Garcia-Pineda et al., 2010; Fig. V-2). Assuming that the hydrodynamic conditions are not affected by a prominent current, the vertical projection of the OSO density coupled with the location of the OSO barycentre, namely the Geometric Mean Centre (GMC; Garcia-Pineda et al., 2010), at the sea surface provides an additional means to estimate the location of the active seep on the seafloor (Körber et al., 2014).



Fig. V-2: Schematic representation of the methodology used to identify recurrent seepage slicks with the stacking of overlapping SAR scenes. a, b. Synchronic stages for seep sites A and B. c. Isolated slick suggests a dormant stage of one of the two sites. Active stage is attributed to the proximal recurrent seep site. d. Illustration of a problematic case where the origin of expelled oil between seep site A and B remains undetermined. e. The observation

## of the deflection at a distant seep site (C) helps to understand the deflection during SAR acquisition and to associate isolated slicks with the appropriate seep site.

The residence time of oil slicks is restricted to a few hours at the sea surface (*Jatiault et al., 2017*), suggesting that nearby and similar slick patterns are likely associated with two distinct seep sites instead of a distal deflection of oil expelled from former active stages (Fig. V-2a, b). In the case of neighbouring twin patterns, each slick is confidently associated with its proximal recurrent oil seep site. Active stages may be different from one site to the other, therefore pairing an isolated slick can be hazardous (Fig. V-2c, d). The deflection assessed from neighbouring recurrent seep sites greatly helped to understand the regional underwater hydrodynamic conditions during SAR acquisition and therefore associate isolated slicks between neighbouring recurrent seep sites (Fig. V-2d, e). The OSO are mostly found within restricted-size circles of 2500 m radius. The average distance between individual OSO and the GMC is roughly 750 m. This shows that the spatial dispersion of individual OSO over time remains low compared to the water depth (1100 - 2700 m).

#### 3.2. Seafloor and sub-seafloor geophysical dataset

The geophysical dataset used in this study is composed of a 3D seismics cube, sub-bottom profiler (SBP) sections and high-resolution multibeam seafloor imagery acquired with an Autonomous Underwater Vehicle (AUV). The characteristics of the geophysical data of both seafloor and sub-seafloor imagery are displayed in table 1.

Table V-1:	<b>Characteristics</b>	of the	available	datasets	including	seafloor	and	sub-seafloor
imagery.								

Data type		Line spacing (m)	Maximum Penetration (ms TWT)	Dominant frequency	Horizontal Resolution (m)	Vertical Resolution (m)	Spatial coverage/ Total length of acquisition
Sub- seafloor	3D seismics	12.5 * 12.5	4500	~20 - 100 Hz	12.5	~4 m	3300 km <sup>2</sup>
	Sub-Bottom Profiler	175 * 1000	100	1.5 - 4.5 kHz	1.5	~ 10 cm	1515 km
Seafloor	AUV HR bathymetry	-	-	200 kHz	1.5	-	220 km <sup>2</sup>
	AUV Seafloor Reflectivity	175 * 1000	Several centimetres	120-410 kHz	3	-	220 km <sup>2</sup>

#### 3.2.1. 3D exploration seismics

The 3D seismics covers 3300 km<sup>2</sup> with a maximum acoustic penetration of 4500 ms TWT (Fig. V-3). The acquisition source consists of 2 sleeve airguns, 50 m apart with shot intervals of 18.75 m. The acquisition system consists of 10 parallel Thomson Marconi Sonar Sentry streamers separated by 100 m. Each streamer is composed of 396 individual receiver groups separated by 12.5 m (total length of 4950 m). The available dataset consists of the near-offset trace seismic cube. The seismic sections shown in this paper are displayed in amplitude. Positive amplitude values indicating strong increase of impedance at lithologic interfaces are displayed in warm colours. Negative impedance contrasts are displayed in dark colours. The seismic signature of a contrast of impedance were extracted using the chaotism seismic attribute (iso5) based on a semblance criterion across a window and computed with the Root Mean Square (RMS) seismic amplitude (*Andresen et al., 2011*).

#### 3.2.2. High-resolution geophysical survey

In addition to 3D seismics, we complemented our dataset with high-resolution SBP 2D lines (Edgetech DW-216 Chirp profiler system) acquired for site surveys and geo-hazards evaluation with an AUV; these define a regular grid with a line spacing of 1000 m in the slope direction and 175 m in the strike direction (Fig. V-3). The high-frequency data enable good vertical resolution (~10 cm) but with an acoustic wave penetration limited to the first 100 ms TWT below the seafloor. The picking of horizons on the SBP sections was performed using the amplitude attribute and were displayed in this study with the envelope filter that corresponds to the computation of the RMS amplitude of the signal. The envelope filter is only meaningful for display because the RMS amplitude decreases the seismic resolution.

In addition to the SBP sections, the AUV device acquires high-resolution (HR) bathymetry (EM2000 multibeam echo-sounder) and seafloor reflectivity (Edgetech Full Spectrum Chirp dual frequency DW-120/410 side scan sonar system) along the acquisition tracklines of the vehicle. The survey covers an area of 220 km<sup>2</sup> with a spatial resolution of 1.5 m. Seafloor imagery also provides seafloor backscattering that can be used as a proxy for seafloor hardness evaluations. The surveyed area (220 km<sup>2</sup>) remains larger than the investigated area in this study (Fig. V-3). In areas not surveyed by AUV, lower-resolution seafloor characteristics (bathymetry, seismic amplitude) were taken from the tracking of the seafloor reflection on the 3D seismics using Sismage

software (*Guillon and Keskes, 2004*). Overlying the gradient with the seabed isochron enhances the imagery of seafloor features.

The architecture of the salt-related deformation is assessed from the interpretation of the 3D seismics because the line spacing between SBP sections is insufficient to ensure reliable correlation between faults picked on adjacent lines.



Fig. V-3: Inventory of the available geophysical dataset. The greyscale background corresponds to the slope map of the first reflection on the seafloor extracted from the 3D seismics cube. Black continuous polylines are 50 m isobaths. The SBP tracklines are displayed in continuous black lines, the blue polygon delimits the AUV survey. The locations of recurrent oil seep sites published by Jatiault et al. (2017) are indicated by red dashed circles. The study area corresponds to the black box.

#### 3.3 Criteria for choosing the study area

A large number of recurrent oil seep sites reported by *Jatiault et al. (2017)* are imaged by the 3D seismics cube (81 out of the 102) but only 7 high-confidence oil seep sites (out of the 81) are imaged with the HR survey. We studied a specific seep site along the widespread seeping province benefiting from a unique collection of subsurface data composed of 3D seismics and metric scale SBP data (Fig. V-3). Due to current variability, the accuracy of the vertical projection of the GMC to the seafloor to identify the seafloor oil origin increases with the number of detected slicks. The computation of the GMC was based on the integration of a large collection of slicks identified from a high SAR coverage density (136 overlapping SAR scenes). This paper will focus on this specific oil seep site to perform a local and detailed study of the seafloor/sub-seafloor features associated with thermogenic seep sites in the LCB.

### 4. Analysis and results

#### 4.1 Evidence of natural oil seepage

Sea surface manifestations of oil leakages were temporally observed between 1999 and 2016 but most seepage slicks were identified after 2010 due to an increase in SAR data acquisition (Table V-2).

A total of 44 slicks were identified as diverging from the oil seeping zone investigated in this study based on the analysis of the 136 overlapping scenes. The slick geometry occurred as curvilinear, straight or zigzagging shapes (Fig. V-4) that were radially deflected from the central surfacing area. The slick width remained constant on successive SAR scenes along the slick shape from the proximal OSO towards the distal edge. The length of seepage slicks ranged from 2 to 18 km and the surface area of individual seepage slicks ranged from 0.12 to 3.2 km<sup>2</sup> with an average value of 0.7 km<sup>2</sup> (Table V-2). Distinct twin slicks were frequently identified (20 slicks out of the 44 mapped) and interpreted as expelled from two distinct oil seep sites, 1250 m apart (see white stars in Fig. V-4). For seep A and B respectively, the occurrence rate ratios compared to the SAR scene coverage were 11% (16/136) and 21% (28/136) and the OSO gathered within circles of radii of 1200 and 1500 m (Fig. V-5a). The maximum OSO density occurred at the location of the GMC of seep B and remained high within a radius roughly 750 m from the GMC of seep A and B (red to green in Fig. V-5a) and rapidly decreased further. The maximum observed horizontal deflection value from GMC to individual OSO was 1750 m.



Fig. V-4: a. Compilation map of seepage slicks identified from the analysis of the 136 overlapping SAR scenes. The colour scale refers to the year of slicks related to the SAR acquisition period. White and black dots are the OSO locations for seep sites A and B respectively. The slick outlines identified at the sea surface are superimposed with 50 m seafloor isobaths. Recurrent oil seep sites are encircled with red dashed circles. b. Extract of Envisat IMP scene dated 12/02/1999. c. Extract of Cosmo-Skymed SAR scene dated 22/11/2010. d. Extract of Cosmo-Skymed SAR scene dated 10/01/2011. White stars correspond to the GMC locations.

Date (dd/mm/yyyy)	Sensor	Seep	Area (km <sup>2</sup> )	Distance from OSO to GMC (m)	Date (dd/mm/yyyy)	Sensor	Seep	Area (km <sup>2</sup> )	Distance from OSO to GMC (m)
12/02/1999	ERS/IMP	А	0.34	1420	27/03/2012	Cosmo-SkyMed	А	0.26	570
12/02/1999	ERS/IMP	В	0.4	1270	06/04/2012	Envisat/WSM	А	2.35	1200
07/12/2002	Envisat/WSM	А	2.4	910	06/04/2012	Envisat/WSM	В	3.17	950
14/01/2003	Envisat/WSM	В	0.7	570	13/10/2012	TerraSAR-X	В	0.22	450
06/03/2003	Envisat/WSM	В	0.6	410	17/10/2012	Cosmo-SkyMed	В	0.21	450
14/03/2003	Radarsat	В	0.89	610	21/10/2012	TerraSAR-X	В	0.25	610
28/03/2003	ERS/IMP	А	0.68	510	21/10/2012	Cosmo-SkyMed	В	0.69	190
25/11/2003	Envisat/WSM	В	0.22	420	27/05/2013	Cosmo-SkyMed	В	2.83	190
19/02/2005	Envisat/WSM	В	0.24	780	16/07/2013	Cosmo-SkyMed	В	0.52	1050
22/02/2005	Envisat/WSM	А	0.56	1000	23/12/2013	Cosmo-SkyMed	Α	0.27	940
22/02/2005	Envisat/WSM	В	0.41	700	23/12/2013	Cosmo-SkyMed	В	0.21	360
22/11/2010	Cosmo-SkyMed	А	0.29	820	19/02/2014	Cosmo-SkyMed	В	0.55	430
22/11/2010	Cosmo-SkyMed	В	0.2	1430	20/05/2014	Cosmo-SkyMed	В	1.07	320
10/01/2011	Cosmo-SkyMed	А	0.24	700	28/07/2014	Cosmo-SkyMed	В	0.61	940
10/01/2011	Cosmo-SkyMed	В	0.22	1190	16/09/2014	Cosmo-SkyMed	В	2.76	580
26/01/2012	Envisat/WSM	А	0.57	910	11/11/2015	Sentinel-1a	А	0.18	390
06/02/2012	Envisat/WSM	А	1.49	1050	11/11/2015	Sentinel-1a	В	0.14	510
06/02/2012	Envisat/WSM	В	0.96	910	05/12/2015	Sentinel-1a	А	0.27	620
14/02/2012	Envisat/WSM	В	0.32	510	05/12/2015	Sentinel-1a	В	0.12	30
15/03/2012	Envisat/WSM	В	0.13	590	15/04/2016	Sentinel-1a	А	0.23	600
18/03/2012	Envisat/WSM	В	0.74	1760	08/07/2016	Sentinel-1a	А	1.04	900
26/03/2012	Envisat/WSM	А	0.41	470	08/07/2016	Sentinel-1a	В	0.68	440

Table V-2: Seepage slicks overview identified on spaceborne SAR scenes and released from the oil seep areas investigated in this study.



Fig. V-5: a. Location of individual OSO and bounding circles of the deflection offset. White stars show the location of the GMC for seep A and seep B. Individual OSO locations are superimposed with the density map of OSO. Deep red to greenish colours refer to high OSO density. b. Bathymetric map composed of 3D seismics first arrivals and available high-resolution bathymetry where available, superimposed with slope map. c. Bathymetric map superimposed with OSO isocontours. Concentric circles show the increase in density of OSO. d. Bathymetric map superimposed with SBP tracklines. Pink dotted line corresponds to the underlying salt diapir extension.

**190** 

#### 4.2. Geophysical features of the seafloor oil seep site

#### 4.2.1. General description of the seeping zone

Several distinctive structures with varied geometries are identifiable on the seafloor map below the oil surfacing area (Fig. V-5b, c). An extensive fluid seepage system develops along curvilinear trends in minibasins as demonstrated by the large occurrence of Type I seafloor pockmarks (Fig. V-3 and Fig. V-5). The vertical projection of the GMC of seeps A and B corresponds to a more complex morphology surrounded by a large number of hummocky-like topographic features. This paper focuses on the southern seep B because even if both sites A and B are imaged with 3D seismics, only site B is imaged from both 3D seismics and HR survey (blue line in Fig. V-5d). The area is located at the rim of an underlying salt diapir (pink dotted line in Fig. V-5d) whose spatial extent is about 12.7 km<sup>2</sup>. The travel time between the diapir and the seafloor varies between 550 and 230 ms TWT, which corresponds to a distance from 195 to 465 mbsf (metres below seafloor) assuming a propagation velocity of 1700 m.s<sup>-1</sup> (estimated propagation velocity at the sub-seafloor). Oil seepages are diverging from the shallowest diapir area ( $\sim 230$  ms TWT bsf), i.e. where the sedimentary overburden is thinnest (Fig. V-6). Deformation related to salt tectonics results in the development of a normal fault network at the crest of the diapir. The overburden series, mostly composed of Pliocene/Quaternary siltstones, are affected by strong positive amplitude reflections (Fig. V-6). Two consistent reflections associated with a negative polarity appear and are especially enhanced at the crest of the salt diapir.

#### 4.2.2. Sea bottom analysis of the seeping zone

The seeping zone located at the vertical projection of the GMC of seep B consists of a large  $(0.17 \text{ km}^2)$  disturbed area (1200 m long and 300 m wide) forming a peapod-like feature on the seafloor. This zone is characterised by a complex association of heterometric depressions (Fig. V-7a) that mimics the eastern edge of the underlying salt diapir.

The main seeping zone is split into five compartmented areas (Fig. V-7a), each being characterised by individual irregular pockmarks and delimited by unaffected cross-cutting ridges. The entire depression complex is composed of 38 individual depressions, either isolated or merged, with diameters ranging from 25 to 100 m and depths ranging from 1 to 12 metres.

The first arrivals extracted from the 3D seismics show that the seafloor high positive amplitudes are coherent with seafloor depressions (Fig. V-7b). High amplitude anomalies are gathered within internal

"sub-areas" 1 and 2, moderate amplitude anomalies occur in sub-areas 4 and 5 and also in sub-area 1, while sub-area 3 is associated with a low seafloor amplitude anomaly even though the area contains a large pockmark.



Fig. V-6: a. Seismic reflection section extracted from the 3D seismics (data courtesy of Total) showing a seabed and sub-seabed feature that SAR images indicate as currently leaking oil. Warm colours show high-amplitude positive reflections (strong impedance increase downwards) whereas black horizons highlight negative impedance contrasts (see location in Fig. 3). b. Interpretative line drawing.

Individual meter-scale unit anomalies on the seafloor reflectivity correspond to the bottom of individual depressions identified on the HR bathymetry (for instance, see sub-area 3). In addition, the seafloor reflectivity shows restricted-size anomalies (10 - 15 m) at the edge of the depression complex that corresponds to slight seafloor disturbances barely detectable on HR bathymetry (Fig. V-7d, f)

The high amplitude patches extracted from 3D seismics are coherent with high-density reflectivity anomalies visible on backscatter data for sub areas 1, 2, 4 and 5. Conversely, the high backscatter value within the large conical depression in sub-area 3 (Fig. V-7c) is not associated with any seafloor amplitude anomaly.

A large number of sub-circular mounds, up to 20 m in diameter and less than 1 m high, induce rough patches that disturb the seafloor topography at the peripheral areas of the peapod-like depression complex (Fig. V-7 d, g). Mounds spatially expanded from the flank edge of the depression complex with distances up to 900 m from the proximal depression for the most distant. Seafloor mounds mostly gather into two main regions (Fig. V-7 d, g) located in the internal zone by comparison with the diapir location (see location in Fig. V-5c). The northern and southern areas are characterised by 120 and 180 individual mounds covering seafloor areas of approximately 0.2 and 0.5 km<sup>2</sup>, respectively. Outside these two areas, mound density significantly decreases with isolated and disseminated mounds. In the northern area, the mounds form a cluster over a restricted area (Fig. V-7d) that is associated with a slight increase of the seafloor amplitude (Fig. V-7e). In the southern area, the seafloor is characterised by a low-amplitude area (Fig. V-7h) and seafloor mounds gather along NE-SW seafloor scars. For most of the visible mounds with HR bathymetry, a slight increase affects the seafloor reflectivity (Fig. V-7f, i), either occurring as sub-rounded or elongated anomalies and are restricted to the central and summit area of individual mounds.

The depression and mounded areas are characterised by 2 different acoustic responses on 3D seismics with a domain in depression characterised by strong positive amplitude anomalies and a mounded area only detectable on the backscatter but indiscernible from the 3D seismic amplitudes (Fig. V-7e, h).

# 4.3. Echo-characterisation of the seeping zone on the sub-bottom profiler data

In the SBP sections, high amplitude reflections affect the Quaternary series a few tens of ms below the seafloor (Fig. V-8a) and are associated with an underlying acoustic wave attenuation. The geophysical signature is similar to the High Impedance Layer (HIL) described and interpreted by *Hill et al. (2010)* as related to authigenic carbonate concretions. The lateral extension of the HIL reaches 2200 m across the SBP section and covers some 5.5 km<sup>2</sup> with a burial that varies from 0 to 100 ms TWT bsf.

The geophysical signature of the HIL is concordant throughout the affected area, but the organisation compared to stratigraphic boundaries differs between the mounded areas (internal part), the rugged depression (central part) area and the peripheral area (external part). Except in the internal part, where the acoustic response of the presence of HIL induces a slight disturbance of the horizon continuity, the 3D seismics are almost insensitive to the presence of the HIL (see green dashed lines in Fig. V-8b). The HIL affects both the depression complex and the seafloor mound areas visible with the high-resolution data (Fig. V-8a, c).


Fig. V-7: a. (previous page) Seafloor isochrons and gradient map from the high-resolution bathymetry on the pockmark complex, superimposed with 1 m isobaths. b. Amplitudes of the first arrivals at the seafloor extracted from the 3D seismics. c. Seafloor reflectivity map. d. Zoom on the bathymetry of the northern area affected by rough seafloor (see location in Fig. V-5d). e. Amplitudes of the first arrivals at the seafloor extracted from the 3D seismics superimposed with 1 m isobaths. f. Seafloor reflectivity map largely zoomed to show the seafloor reflectivity enhancement at the mound location. The map is superimposed with 0.25 m isobaths. g. Seafloor map of the southern area affected by rough seafloor superimposed with 1 m isobaths. h. Amplitudes of the first arrivals at the seafloor extracted from the 3D seismics. i. Seafloor reflectivity map. Between high and low values, the bathymetry range is 20 m for (a) and (d) and 60 m for (g). See locations of the three boxes in Fig. V-5d.

The internal area is marked by an abrupt increase of the HIL burial at the edge of the affected series (above the green dashed line in Fig. V-8a, c). The HIL remains buried 20 to 40 ms TWT below seafloor mounds (Fig. V-8c, d and e). The enhancement of the acoustic response associated with the presence of HIL along linear slabs suggests an internal structure and possible alignments with stratigraphic boundaries (Fig. V-8c). Shallow faults link the vertical displacement of buried HIL slabs with seafloor mounds, which shows that the internal structure is affected by recent deformation.

In the central area, the depth of the HIL is highly variable, cross-cutting shallow reflections where it steeply rises towards the seafloor. A continuous zone characterised by low HIL burial mimics the salt diapir rim (Fig. V-8e). The area where the HIL reaches the seafloor corresponds to high amplitudes, high seafloor reflectivity (Fig. V-7b, c) and local seafloor depressions (Fig. V-8e) as evidenced by the section displayed in Fig. V-8a, which is in close proximity to pockmark No. 1 and crosses pockmarks Nos. 2 and 3. Seafloor HIL areas are associated with an internal disorganisation and were coupled with rapid acoustic wave attenuation (see for instance Nos. 1 and 2 in Fig. V-8a). Pockmark 3 corresponds to a deeper (35 m) depression in sub-area 3 where the HIL is buried under about 20 m of unaffected Quaternary siltstones (Fig. V-8a).

In the external area, the HIL is buried under a relatively great thickness of unaffected sediment that progressively increases outwards (Fig. V-8e). The upper HIL boundary is characterised by a dominant cross-cutting reflection, but the internal structure is organised as thinned reflections slabbed along stratigraphic series that were pinched at the sideward HIL termination.



Fig. V-8: a. SBP section (2D lines) displayed in envelope attribute through the HIL and interpretative line drawing. b. Seismic section of the shallow subsurface extracted from the 3D seismics, the layout was adjusted to fit with the SBP section in Fig. 8a and superimposed with the top of the HIL. c. SBP section displayed in envelope attribute and interpretative line drawing through the area affected by seafloor mounds. The interpretation section shows the association between sub-bottom HIL, seafloor mounds and shallow/deep faults. d. Map of the top of the HIL picked from the 175 m separated SBP tracklines, the map is complemented with interpretative 3D picking between 2D sections considering seafloor reflective patches, fault trends or structural elements and 1m

isocontours. e. Map of the burial of the HIL computed from the distance between the first arrivals on 3D seismics and the top of the HIL.

# 4.4. Negative Amplitude Anomalies on exploration seismics

A strong Negative Amplitude Anomaly (NAA) characterised by a negative trace polarity compared to the sea bottom reflection affects the seeping zone (Fig. V-9a, b). NAA1 (12.5 km<sup>2</sup>; Fig. V-9c) mimics the shape of the diapir under the seeping zone and extends eastwards in relation to a deeper salt ridge that forms an anticline of the Neogene to Mid-Pliocene series in the minibasin. The horizon surface gently crosscuts stratigraphic boundaries, except below the depression complex, where NAA1 is locally deflected upwards. The distance of NAA1 from the seafloor is roughly 200 m shallower (~295 ms TWT) above the diapir over a distance of 6000 m from the minibasin.

The area is also characterised by a deeper, moderate but consistent NAA2, with an extent of roughly 1.1 km<sup>2</sup> over two separate areas affected by seafloor local depressions (Fig. V-9d). NAA2 is almost parallel to NAA1 from a distance of about 20 ms TWT and is also deflected upward below the locations of local depressions (Fig. V-9e). The crest of the diapir is also affected by an additional (third) negative reflection that is inconsistent on successive parallel sections (black dashed line in Fig. V-9a, b).



Fig. V-9: a. Exploration seismic section of the subsurface bypass system above the salt diapir showing the seafloor pockmark complex and the two negative amplitude reflections NAA1 and NAA2 (see location in Fig 9c). b. Interpretative line drawing. c. Map of the extent of NAA1. Salt burial is displayed in greyscale. Black dashed lines are 5 m isobaths. d. Picking of the extent of NAA2 (see location in Fig. V-9c). The colour scale refers to the burial between the seafloor and the negative polarity reflection. e. Map of NAA1 to NAA2 isochron.

### 4.5. High amplitude extraction from exploration seismics

The interval from the HIL to the salt diapir is affected by High Amplitude Bodies (HAB) below the seeping zone (Fig. V-10a). The high amplitudes occur as two distinctive features vertically delimited by NAA1 (Fig. V-10a). The first is expressed by consistent and massive HAB in close proximity to the salt diapir (Fig. V-10b), covering an area of 2.8 km<sup>2</sup>. The second one consists of a vertical succession of local and focused amplitude anomalies corresponding to pipe-like features rooted on the massive HAB (Fig. V-10c). NAA1 delimits the massive HAB at the top and acts as a transition horizon to the pipe-like features layer (Fig. V-10a). The seismic pipes consist of a vertical succession of high amplitude anomalies stacked through roughly 50 to 100 ms (maximum of 85 m of sediments) with diameters ranging from 65 to 220 m. The geophysical expression of vertical pipes corresponds to the disorganised HIL on the SBP data, located at the bottom of the pockmark (Fig. V-8a). We identified 16 individual pipes in the vicinity of the oil seep site with variable amplitude anomalies. Eight are strong anomalies, 3 moderate and 5 lower (Fig. V-10c).

#### 4.6. Fault network below the seeping zone

The deformation is exclusively characterised by normal faults typical of salt tectonics. With respect to the diapir, one family is clearly radial (green in Fig. V-11) while the others are concentric (blue, orange and red). The seeping zone is located at the junction of concentric and radial fault networks. The distribution of radial faults is homogeneous around the crest of the diapir (Fig. V-11a), mostly rooted on relatively deep series in the minibasins of the Miocene to Pliocene and merge distally with the shallower polygonal fault network (e.g. *Stewart, 2006; Carruthers et al., 2013*). The other concentric fault families composed of conjugate and converging faults (in red and blue) are mostly directly rooted on the diapir, resulting in the development of a local mini-graben along the salt rim. The successive southward-dipping parallel faults affect the central crest of the diapir (in orange in Fig. V-11).

A multi-scale recognition of the fault network was carried out using a combination of 2D and 3D seismics (Fig. V-11b). Shallows faults on SBP sections correspond in some cases to deeper faults visible on the 3D exploration seismics (Fig. V-8a, b, c). The seafloor scars show that most of the concentric faults are still active (Fig. V-7 and Fig. V-8). In the depression area, the seafloor fault tips mostly correspond to the unaffected and smoothed seafloor ridges that compartmentalise the pockmark complex. Three of the ridges correspond to visible major fault footprints on the seafloor and the remaining one corresponds to the lateral prolongation of a radial fault.



Fig. V-10: a. Seismic section below the pockmark complex (see location in white dashed line in Fig. 10b, c). The map is superimposed with NAA1 and HIL horizons in black lines. b. Map of the RMS amplitude stack on the interval between seafloor + 100 ms and 200 ms TWT corresponding to the layers below NAA1. c. Map of the RMS amplitude stack between the HIL and NAA1. The RMS amplitudes are superimposed with seafloor 5 m interval contour lines.



Fig. V-11: a. Inventory of shallow faults picked from 3D seismics. The faults are sorted between four main families of normal faults composed of gravity collapse (orange), synthetic concentric faults (red), antithetic concentric (blue) and radial (green). b. Seafloor faults picked from the combined analysis of seafloor imagery, SBP sections and 3D seismics. The map is superimposed with HIL burial, location of seafloor pockmark and asphalt mound areas.

# 5. Interpretation, discussion and implications

## 5.1. Linking sea surface and seafloor observations

The hydrodynamic conditions of the LCB are affected by multiple hydrographical components and potentially opposite deflections across the water column (*Peterson and Stramma, 1991; Schneider et al., 1996; Holmes et al., 1997; Stramma and England, 1999; Shannon, 2001; Hardman-Mountford et al., 2003; Hopkins et al., 2013*). According to Fig. V-5a, OSO dispersion remains low (<1500 m around the emission point) suggesting that the deflection of OSO is highly variable in direction but obviously restricted to low horizontal distances. Low deflections are presumably due to the effect of opposite current components at different water depths as suggested by the literature. Conversely, high deflections (1750 m) are presumably associated with a unidirectional deflection across the water column. The uncertainty associated with the location of the origin of the oil on the seafloor compared to the average location of the OSO depends on the amount of detected slicks. For a large number of the 28 slicks for seep B, we consider that the sub-vertical projection of the GMC

provides a satisfactory approximation of the origin of the oil on the seafloor (Fig. V-5) with a degree of uncertainty between 100 and 200 m. The vertical projection of the GMC to the seafloor of seep site A corresponds to the lateral extension of the seeping zone and presents similar characteristics on the 3D seismics (HAB below the NAA1 linked to vertical pipes and seafloor irregular depression).

# 5.2. Lateral evolution of seepage intensity: Focused vs distributed

### 5.2.1. Geophysical evidence for focused fluid flow

The combination of the 3D seismics and the high-resolution survey data is meaningful to correlate seafloor characteristics (Fig. V-12a, b and c), key horizons depths in the subsurface (HIL; Fig. V-12d) and at deeper series (NAA1, NAA2, HAB; Fig. V-12e, f, g, h).

The recognition of negative polarity reflections cross-cutting stratigraphic series under the condition of abundant hydrocarbon migration is largely recognised as being associated with the Base of the Gas Hydrates Stability Zone (BGHSZ). Different studies already reported a hydrate-related BSR (Bottom Simulating Reflection) in the LCB (Lucazeau et al., 2004; Gay et al., 2006b; Andresen et al., 2011; Andresen, 2012; Nyamapfumba and McMechan, 2012; Wenau et al., 2014a, b) where leakages form a gas accumulation that feeds the BSR above. The presence of a high-reflectivity zone (HRZ; Andresen et al., 2011) below NAA1 in minibasins suggests that the gas is trapped beneath the impermeable BSR (Fig. V-6). We converted the time recorded between the seafloor and NAA1 to estimate the geothermal gradient above the diapir using a speculative linear propagation velocity. The geothermal gradient is estimated from the distance between the seafloor to the BSR assuming that the temperature is constant at the seafloor (4 °C) and as a function of the depth (P-T) at the BSR level. In order to compute a straight comparison of the geothermal gradient in sediments, the water depth above the diapir equals the water depth in the minibasin at the selected area (1685 m; Fig. V-9c). Considering a propagation velocity of 1500 to 1700 m.s<sup>-1</sup> in the shallow sediments, we estimate that the BSR depth is comprised between 1915 to 1945 m in the minibasin (red star in Fig. V-9b, c) and between 1760 to 1770 m above the diapir. Coupled with the seafloor depth (1685 m), we estimate that the temperature increases by 143 to 162 °C.km<sup>-1</sup> above the salt diapir and 50 to 57 °C.km<sup>-1</sup> in the minibasin (green star in Fig. V-9c), which is in the reported range of the area (Serié et al., 2016) and therefore confirms that the actual BGHSZ is a good candidate to explain NAA1. The BGHSZ primarily depends on Pressure-Temperature conditions, the gas type (Sloan, 1990; Sloan, 2003), and the gas flow and to a lesser extent on water salinity. In addition, hydrates can only develop where water is saturated on dissolved  $CH_4$ . The thermal conductivity of evaporites (~6.5 W/m.K) is greater

than the surrounding siltstones and shales (1.5 - 2.5 W/m.K - Serié et al., 2016) and the heat is more efficiently conducted from deeper series across evaporites producing a shallow thermal anomaly. The difference in burial of NAA1 is due to the proximity of the diapir, which reduces the hydrate stability domain by increasing the NaCl concentration (Sloan 2003; Qi et al., 2012; Chong et al., 2015) and creating a positive thermal anomaly (Lucazeau et al., 2004). The persistence of NAA1 suggests that a considerable amount of gas migrates laterally along the BGHSZ from the minibasin towards a concentration area due to the thermodynamic anomaly coupled with strong deformation/faulting above the diapir (Fig. V-6). The local and sub-circular upward deflection of the BGHSZ has already been proven as a thermal anomaly created by the fluid ascent pathways and evidence of an active and focused fluid flow (Gay et al., 2006 b). The concentration area also corresponds to the location of NAA2 that is deflected upward below the local depression area (Fig. V-12f). Local upward deflections of the BSR are connected with vertical high amplitude pipes on the 3D seismics that are interpreted as deep feeder conduits for migrating oil and gas through the sedimentary pile. This suggests that the hydrocarbon flow is focused and consistent above the BGHSZ (Fig. V-12g), even if massive HAB prevent the recognition of vertical conduits below (Fig. V-12h). The vertical pipes visible on exploration seismics are characterised by consistent and disorganised HIL on the SBP that reaches the seafloor (Fig. V-12d) and coincides with the locations of high amplitudes and backscatter anomalies on the seafloor.

The location of the depression complex is fairly well oriented along the salt diapir, suggesting a subvertical migration of fluids through the bypass system (Fig. V-12i). The depression complex locates at the intersection of most families of faults (conjugate concentric and radial faults; Fig. V-11a). The recent activity of concentric faults triggers the formation of a mini-graben along the minimal strain axis that structurally controls the migration pathways of fluids, which demonstrates the relationship between the location and the morphology of the seeping area with recent reactivation. The connection with deeper faults suggests that structural trends are used by the migrating material from deeper series (Fig. V-8). In the shallow subsurface, the lithostatic pressure is not sufficient to confine fluid migration along faults, which explains why the seafloor fault tips are laterally displaced from the seafloor depressions (Fig. V-7a). Hydrocarbons probably follow the structural trends towards an upper lithostatic pressure limit, before migrating vertically through the sedimentary pile (*Løseth et al., 2011; Ho et al., 2016; Maia et al., 2016*).



High Impedance Layer burial - HR



RMS stack : HIL - NAA 1 **3D** Exploration siemics



**Reflectivity map - HR** 



NAA 1 burial -**3D Exploration seismics** 



RMS stack : NAA1 to Top Salt **3D Exploration seismics** 



Seafloor amplitude -**3D Exploration seismics** 



NAA 2 iso -**3D Exploration seismics** 



Salt burial + Fault network HR + Exploration seismics



Fig. V-12: Overview of key horizons picked from the combination of the HR survey and 3D seismics. The maps are superimposed with 1 m isocontour a. Seafloor slope map. b. Reflectivity map. c. Seafloor amplitude map. d. Map of the HIL burial. e. Isochron map of NAA1. f. Isochron map of NAA2. g. Stack of the RMS amplitude from the HIL to NAA1. h. Stack of the RMS amplitude from NAA2 to the top salt. i. Salt burial superimposed with fault network picking.

*204* 

A large number (38) of local depressions in the main depression area (Fig. V-12a) are associated with reflectivity anomalies on the HR bathymetry (Fig. V-12b) and local seafloor amplitude anomalies in the exploration seismics (Fig. V-12c). Seafloor depressions are typical features of a focused hydrocarbon flow (*Hovland and Judd, 1988, Paul and Ussler, 2006, Roberts et al., 2006; Ho et al., 2012*). The combination of seafloor pockmarks within the depression area, coupled with seafloor backscatter anomalies, seafloor amplitude anomalies, vertical pipes and upward deflection of the BSR, provides strong evidence of active or recent focused fluid flows through multiple conduit outlets. The oil slicks visible at the sea surface are commonly expelled as oily-coated bubbles with an important volume of lighter gas to rise towards the sea surface (*Körber et al., 2014*). The fluid migration mechanism seems to be erosive in the depression complex, probably due to gas liquefaction, the focused seep sites therefore constitute the probable release area of oil slicks visible at the sea surface. Accordingly, the locations of the GMC for seep A and B correspond to seafloor depressions that are interpreted as focused and prolific seep sites.

#### 5.2.2. Geophysical evidence of a peripheral dispersed fluid flow

Several geophysical observations show that the fluid flow strongly decreases away from the main conduits described before. The combination of NAA1 and the HIL suggests that fluids migrate outside of the main fluid conduit in association with intense salt-related faulting (Fig. V-12d, e and i). In the internal area, the mound formation mechanism is a constructive/non-erosive mechanism (Fig. V-7). The absence of erosive seafloor features (i.e. pockmarks) associated with gas erosion/ fluidization, coupled with buried HIL (Fig. V-12d) demonstrates that the portion of gas is sufficiently low to be entirely consumed with the anaerobic oxidation of methane reaction  $(AOM: CH_4 + SO_4^{2-} \rightarrow HCO_3^- + HS^- + H_2O; \text{ e.g. Hovland et al., 1987; Hovland and Irwin, 1992})$ or by hydrate nodule formation (Hovland and Svenssen, 2006). The seafloor reflectivity anomalies associated with the presence of m-scale seafloor mounds (Fig. V-12a) show that constituent materials differ from the surrounding siltstones. Recent studies investigated similar mounds with ROV dives in the same area (Unterseh, 2013; Jones et al., 2014) and showed that the mound fields host abundant methanogenic communities. They composed of hardened extruded asphalts are (Unterseh, 2013) resulting from the severe biodegradation of heavy hydrocarbons under the action of bacteria in the shallow subsurface (Head et al., 2003; Larter et al., 2003; Larter et al., 2006; Peters et al., 2007). Therefore, we interpret the mound fields as composed of restricted-size asphalt mounds. Two hypotheses are proposed to explain the presence and distribution of seafloor asphalt mounds in the study area. The first proposes that migrating oil may reach the seafloor and remains stored at the

sediment/water interface as a result of severe biodegradation. The second involves a lateral transportation of the asphalt material by bottom currents following a vigorous release that results in a distant deposition on the seafloor. The asphalt drop-off hypothesis on the seafloor is possible but restricted to a few tens of metres from the outbreaking area (*Jones et al., 2014*). Most of the seafloor asphalt mounds in this study are distant by at least 500 m from the closest pockmarks and sometimes up to 900 m (Fig. V-12a). In addition, the bottom current dominantly flows south in the area (*Geldof et al., 2014*), while asphalt mounds mostly affect the western area of the depression complex. The seafloor scarps associated with the salt-related fault network (Fig. V-12 a, i). The widespread combination of seafloor mounds, shallow faults and vertical offsets of stratigraphic series on top of the HIL suggests that asphalt mounds are directly emplaced above migration pathways, suggesting that faults guide oil from the HIL to the seafloor (Fig. V-8c).

Bacterial consortia consume light components in priority, the remaining oil components therefore inform on the degree of biodegradation (*Head et al., 2003; Larter et al., 2003; Larter et al., 2006; Peters et al., 2007*). The presence of heavy oils on the seafloor, such as tar or asphalt mounds (*Keller et al., 2007; Valentine et al., 2010*), indicate that biodegradation is severe and that locally, oil dysmigration is a relatively slow process. The combination of buried HIL, NAA1 and asphalt mounds in the internal area suggests that the hydrocarbon migrates towards the sea surface but that the migration process is slower than along the main conduits, evidencing a low-flow/dispersed migration area.

# 5.3. Significance of positive geophysical anomalies

### 5.3.1. Signification of the conformable HIL

The AOM that develops in relation with near-seafloor methane ascent and seawater sulphate takes place at the sulphate methane interface (SMI) and results in the development of authigenic carbonates (e.g. *Heggland, 2002; Judd and Hovland, 2009; Petersen et al., 2010; Andresen et al., 2011; Ho et al., 2012*). The hydrocarbon flow controls both the proximity of the SMI with the seafloor and the size of carbonate concretions (*Paull and Ussler, 2008*). In the case of moderate flow, carbonates precipitate as restricted-size concretions with a consistent distance from the seafloor. The SMI typically varies in depth between less than a metre and a few tens of metres, although exceptional values of several hundred metres have been reported (*Borowski et al., 1999; Ivanov et al., 1989; Dikens, 2001; Arning et al., 2015*). Carbonate concretions, being more competent than the

surrounding fine-grained siltstones, can be interpreted as the main component of the conformable HIL (No. 1 in Fig. V-13) and were reported in the LCB with sizes ranging from cm to dcm (*Pierre and Fouquet 2007; Feng et al., 2010; Hass et al., 2010; Thomas et al., 2011*). The variability of the acoustic response on the 3D seismics between buried HIL observed at peripheral areas and disorganised HIL observed at the summit of vertical high amplitude pipes suggests a lateral variation of the size of the objects. Considering that buried HIL are indiscernible with 3D seismics, the size and thickness of carbonate concretions are probably smaller than the 3D seismics resolution scale (Table V-1). The strong acoustic response coupled with the underlying acoustic attenuation show that the dimensions of the HIL components likely correspond to the cm scale SBP resolution (Table. 1). The association of shallow faults, asphalt mounds and HIL suggests that the asphalt material transits through the HIL (*Hill et al., 2010*). We propose that conformable HIL are composed of a mix of asphalt material and restricted-size carbonate concretions, where carbonate slabs act as a temporary reservoir/cap rock system for asphalt materials (Fig. V-8).

#### 5.3.2. Vertical high amplitude pipes

High amplitudes stacked below pockmarks (No. 2 in Fig. V-13) are usually interpreted in the literature as authigenic carbonate concretions that form at or close to the seafloor at focused seep sites (Léon et al., 2006; Römer et al., 2014). In this case, the observed high amplitude pipes may correspond to a succession of carbonate formed at successive vertical crusts paleo seafloors. Moreover, the discontinuity of vertical pipes may record long-term transience periods. The diameter of seismic pipes (100 - 220 m) is widely above the maximum of reported decimetric-scale ground-truth carbonate chimneys (De Boever et al., 2006; Nyman et al., 2006) and likely corresponds to a great density of carbonate chimney clusters towards focused fluid conduits. The identification of negative reflections suggests that methane hydrates are present in the shallow subsurface. The geophysical signature of near-seafloor hydrates remains under-documented but it appears as consistent and disorganised high amplitude anomalies in the Northern Congo Delta (Zülhsdorff and *Spiess*, 2005). The presence of vein-filling hydrates presumably enhances the impedance contrasts in the fine-grained shallow sediments and could be an alternative explanation for the observed high amplitude vertical pipes (Riboulot et al., 2016).

On the SBP, the disorganised HIL that outcrops on the seafloor could be the expression of cementation of the pipe conduits either by hydrates in the shallow subsurface or by authigenic carbonate. The recognition of vertical pipes certifies that the flow is high and if we consider that the high amplitude pipes are only composed of authigenic carbonates, the base of visible carbonate pipes informs on the initiation timing of the hydrocarbon migration (*Ho et al., 2012*). This rough estimation would need in-situ validation because hydrate cementation could lead to a misinterpretation of the pipe content. Here, visible vertical pipes are rooted on the BGHSZ (Fig. V-10), which is located in the Late Pliocene seismic interval. Assuming that HAB below NAA1 prevent the recognition of vertical pipes, the Late Pliocene therefore corresponds to the minimum probable period of thermogenic hydrocarbon seepage activity.



# Fig. V-13: Diagram of the synthesis of the geophysical and geological attributes associated with the studied thermogenic seeps, based on the analysis of SBP sections and 3D seismics.

#### 5.3.3. Massive high-amplitude bodies: A contribution of anhydrite dissolution?

The massive HAB below NAA1 (No. 3 in Fig. V-13) can be explained as a temporary storage of hydrocarbon fluid below the BGHSZ (Sloan, 2003). The BGHSZ acts as an impermeable layer for migrating fluids while the structural trap is induced by the salt-related thermal anomaly (*Calvès et al.*, 2008; Serié et al., 2016). However, the presence of gas is associated with negative polarity reflections in contrast with the high amplitude anomalies observed close to the diapir (Fig. V-10b). The Aptian evaporites were reported to be composed of halite and potash salt topped by anhydrite in the study area (Teisserenc and Villemin, 1989; Brownfield and Charpentier 2006; Anka et al., 2009). The sulphate reduction associated with anhydrite dissolution is known to be effective in the presence of hydrocarbons (McKelvey, 1986; Fontboté 1994; Seawald 2003). The anhydrite dissolution  $(CaSO_4 + CH_4 \rightarrow CaCO_3 + H_2S + H_2O)$  produces a cap rock partly composed of calcite and hydrogen sulphur (MacKelvey, 1986). This reaction takes place at great temperature (100 to 180 °C) by thermochemical sulphate reduction (Warren, 2000; Machel 2001; Seewald, 2003; Cai et al., 2004; Fu et al., 2016), but also at lower temperature (0 to 80 °C) under bacterial sulphate reduction (Machel, 2001; Stafford, 2008). Anhydrite is known to be commonly present within the salt diapir cap rock together with calcite (Posey et al., 1987; Sassen et al., 1994; Jackson and Lewis, 2012; Warren, 2016), as reported along Gabonese (Teisserenc and Villemin, 1989) and Angolan basins (Brownfield and Charpentier, 2006; Gindre-Chanu et al., 2015). We propose that anhydrite dissolution in the condition of abundant hydrocarbon migration could explain the high amplitudes observed close to the salt diapirs in offshore Angola. Carbonate concretions require a consistent period of hydrocarbon supply. The storage of hydrocarbons below the BGHSZ probably helps to satisfy the necessary time-related conditions.

# 5.4. Significance and implications of the double Negative Amplitude Anomaly

Multiple observations of stacked BSR were already reported in the Black Sea with 6 individual reflectors (*Popescu et al., 2007*), offshore Papua New Guinea (*Huuse et al., 2014*), along the Japanese coasts (*Foucher et al., 2002*), in the North Sea (*Posewang and Mienert, 1999; Andreassen et al., 2000*), offshore USA (*Bangs et al., 2005*), offshore Canada (*Cullen et al., 2008*) and in the Antarctic area (*Gelleti and Busetti, 2011*).

The observation of multiple BSR remains occasional and still controversial and three main hypotheses are considered to explain the second BSR. The first refers to the transition between opal A and opal C/T that creates a cross-stratal reflection (*Davies and Cartwright, 2002; Lee et al., 2003; Cartwright et al., 2003; Berndt et al., 2004*), but conversely to our case study, the amplitude contrast is supposed to be positive (Fig. V-9c). In addition, the Quaternary series are only characterised by fine-grained/silica-poor siltstones.

The environmental variations associated with sea level fluctuations are also considered to explain double BSR development under the conditions of a marine transgression (*Bangs et al., 2005*). The increase of the hydrostatic pressure results in a downward displacement of the BGHSZ, where the upper BSR marks the relict of the location of the BGHSZ. However, sea level fluctuations would result in a regional variation of the stability conditions of gas hydrate and therefore in a regional displacement of the vertical location of the BSR.

Environmental condition variations can also be associated with a local uplift controlled by structural trends that relatively modifies the depth of the BSR. In this case, NAA2 marks the former gas front below the BGHSZ (*Macmahon et al., 2014*). Ongoing salt tectonics probably results in hydrate dissociation over time by progressively heating the overburden (*Lucazeau et al., 2004; Serié et al., 2016*). Yet the paleo-location of the BSR is unlikely to produce a seismic reflection below the actual BGHSZ under the condition of heating from the substratum. The rising velocity of salt diapirs roughly equals the sedimentation rate in the minibasins, i.e. about 270 m since the Pliocene (0.1 mm.yr<sup>-1</sup>; in agreement with *Berger et al., 1998*). By comparison with the potential hydrostatic pressure variability that is estimated at 7 mm.yr<sup>-1</sup> (120 m since the last glacial maximum, 18 kyr ago; *Lobo and Ridente, 2013*), the salt tectonics is two orders of magnitude lower than the potential pressure increase associated with a marine transgression.

Finally, the composition of expelled fluids modifies the thermodynamic conditions of the gas hydrate stability. Compared to traditional structure I, hydrate structures II and H are stable at greater depth and potentially host heavier hydrocarbons (*Sloan, 1990; Sloan, 2003*). In the case of thermogenic seeps, multi-phased fluid composition could therefore result in multiple BSR, as suggested by several studies (*Andreassen et al., 2000; Macmahon et al., 2014; Pecher et al., 2014; Li et al., 2015*). The addition of 1% of propane increases the stability of hydrates at 2000 mbsl by 2 °C (*Pecher et al., 2014*).

This case study refers to two stacked NAA, where the extent of the deeper NAA is restricted to the active seeping area (No. 4 in Fig. V-13). The thermogenic migration was demonstrated in this area from the identification of recurrent oil slicks at the sea surface and the location of NAA2 corresponds

to the thermogenic seeping zone (Fig. V-9 c, d). In addition, both NAA are deflected upwards, which suggests an active fluid flow from both NAA (No. 5 in Fig. V-13).

*Sloan (1990)* provides different curves of hydrate stability depending on the gas composition and P-T conditions. The geothermal gradient is estimated from 3 different propagation velocities above the diapir (Table V-3):

(1) A minimalistic velocity model using  $1500 \text{ m.s}^{-1}$  in the shallow subsurface; (2) A probable velocity model of  $1700 \text{ m.s}^{-1}$  assuming that the propagation velocity of acoustic waves is enhanced at the crest of the diapir due to an outcrop of slightly older and compacted sediments together with the presence of hydrate/carbonate related high amplitudes (HIL and HAB); and (3) An upper threshold fixed at 2000 m.s<sup>-1</sup>.

In the Kwanza basin, the geothermal gradient associated with salt diapir burial similar to this case study (~250 ms TWT bsf) was reported from 140 to 200 °C.km<sup>-1</sup> (*Serié et al., 2016*). The range is likely in agreement with the probable and minimalistic propagation velocity (Vp<sub>1</sub> and Vp<sub>2</sub> in Table V-3).

The gas composition of the depth of NAA2 (blue stars in Fig. V-9b) is estimated from the projection on the P-T diagram of the geothermal gradient assessed from NAA1 inferred to be composed of 100% methane hydrates (red star in Fig. V-9b).

Table V-3: Estimation of the geothermal gradient computed using the time recorded between the seafloor and the BSR using 3 different propagation velocities.

	Minibasi	n	Above diapir			
	NAA1		NAA1		NAA2	
Prop.	305 ms TWT bsf		100 ms TWT bsf		133 ms TWT bsf	
velocity	Geothermal	Estimated	Estimated	Geothermal	Estimated	
$(m.s^{-1})$	gradient (°C.km <sup>-1</sup> )	Depth (m)	Depth (m)	Gradient (°C.km <sup>-1</sup> )	Depth (m)	
$Vp_1 = 1500$	56.9	1915	1760	162	1785	
$Vp_2 = 1700$	50.5	1945	1770	143.5	1798	
Vp <sub>3</sub> = 2000	-	-	1785	124	1813	

For the three propagation velocities considered in this study, the projection of the geothermal gradient for NAA2 (blue stars in Fig. V-14) ranges in the stability conditions of thermogenic gas melt reported by *Sloan (1990)* and later used by *Gelleti and Busetti (2011)* and *Li et al. (2015)*. The estimation of the gas composition using the "probable" velocity model and the upper threshold provides largely comparable results with a relative portion of ethane between 3 and 7% and a relative portion of propane between 1 and 3% (Fig. V-14).



Fig. V-14: Phase diagram and hydrate stability domains (Sloan, 1990). Green and red stars correspond to the projection in the P-T diagram of the estimated depth NAA1 considering different propagation velocities in the minibasin and above the diapir, respectively. The slope of the line informs about the geothermal gradient, considering a seafloor depth of 1685 metres and 100% methane hydrate in seawater (see location of selected areas in Fig. V-9). Blue stars correspond to the projections of NAA2 using the 3 geothermal gradients computed from the estimated depths of the NAA1 above the salt diapir.

Assuming that NAA2 is associated with a mix of thermogenic gas, its location restricted to the diapir suggests a vertical thermogenic migration along the salt flanks. Assuming that NAA1 is associated with a 100% methane hydrate, the location of NAA1 suggests a more lateral pathway along the minibasin.

# 5.5. Recognition criteria of an active thermogenic oil seeping area

The combination of different resolution scale geophysical datasets highlighted specific thermogenic seep features. High amplitudes both in the SBP and 3D exploration seismics appear as a relevant feature to identify hydrocarbon migration above salt diapirs, but the strict association with the presence of oil should be considered with suspicion. Assuming that anhydrite dissolution may contribute to the high amplitudes observed close to the diapir, the high amplitude might be restricted to the evaporite contexts.

Double negative polarity reflection could be a distinctive criterion for the recognition of thermogenic seep sites (*Li et al., 2015*). However, the persistence of double hydrate-related BSR involves distinctive migration pathways; vertical for heavy fluids and more lateral for lighter gas.

The oil presence on the seafloor is associated with an acoustic anomaly, yet the specific response of asphalt in sedimentary series still needs to be tested taking into account the probable contributions of carbonate concretions.

The active oil seep sites investigated in this study correspond to complex features characterised by a large number of heterometric depressions and asphalt mounds on the seafloor and gathers the characteristics of cluster pockmarks described by *Andresen et al. (2012)*, who also suggested thermogenic migration along salt flanks. The complexity of thermogenic pockmarks is probably controlled by a consortium of factors, such as the underlying deformation, pipe locations and hydrate distribution (Fig. V-13). Hydrocarbon pockmarks are known to be associated with concretions of hard-ground authigenic carbonates that contribute to seafloor roughness (*Römer et al., 2014*). Oil pockmarks also benefit from an additional roughness contributor associated with the peripheral migration of asphalt materials (Fig. V-7 and Fig. V-8). In the LCB, the seafloor complexity of the venting features appears as a relevant feature to identify oil seep sites on the seafloor. The pockmark geometry therefore seems pertinent to assess the fluid type and this may be used as a clue to characterise fluid escape features in the LCB and to categorise oil/gas from water pockmarks.

Seafloor depressions are progressively in-filled with sediment in the case of seepage disruption and the persistence of the depression suggests an active fluid flow (Cifci et al., 2003; Hovland et al., 2010; Ho et al., 2012). The activity of each of the 38 individual depressions is confirmed by individual seafloor reflectivity anomalies (Fig. V-7c). The model of gas migration through a water-saturated sediment pile developed by Cuss et al. (2014) at the sample scale involves the development of a main fluid conduit together with peripheral and auxiliary pipes. Multiple conduit outlets were also observed in this study from a large number of pockmarks and asphalt mounds (Fig. V-7) that developed in relation to the fault network (Fig. V-11). The volume of expelled hydrocarbons might also contribute to the topographic complexity by creating a large seeping domain. The timing of the formation of Type II pockmarks (*Riboulot et al., 2011; 2016*) associated with hydrate dissociation/dissolution can be spontaneous or progressive (Wei et al., 2015). The combined effect of a proximal salt diapir presumably enhances hydrate dissociation/dissolution over time by progressively increasing the temperature (Lucazeau et al., 2004; Serié et al., 2016) and the NaCl concentration (Sloan, 2003; *Oi et al.*, 2012; *Chong et al.*, 2015). The particular typology of the depression complex observed in the LCB at thermogenic seep sites could possibly be associated with hydrate dissociation/dissolution at the BGHSZ, the difference being that hydrate would dissociate in the context of thermal anomaly instead of a seepage disruption.

# 6. Conclusions

The combination of a 3D seismics with high-resolution near-surface seismic sections provided a complementary and comprehensive study of the geophysical signature of an active oil seep in the LCB. The recognition of recurrent oil slicks expelled from natural seafloor seeps with satellite imagery demonstrated the thermogenic hydrocarbon migration. This study focuses on a large seeping zone located at the rim of a salt canopy and composed of a large number of pockmarks and asphalt mounds, forming a 1 km<sup>2</sup> seeping zone on the seafloor.

- A mini-graben, developing from the combination of concentric conjugate faults at the diapir crest, controls the location of seafloor pockmarks and surrounding asphalt mound fields and explains that seafloor manifestations of thermogenic seeps are complex due to the geometry of venting features, but also due to the underlying structure and migration pathways, through pipes or faults.
- The oil-supplying pockmark complex is characterised by positive anomalies on backscatter data and seafloor amplitudes and corresponds to seafloor high-impedance layers in the sub-bottom profiler. Strong seafloor anomalies are linked to high amplitudes on exploration seismics and organised as vertical pipes above the base of gas hydrate stability zone.
- Seafloor asphalt mound fields that develop at peripheral areas are linked by shallow faults with buried HIL probably composed of restricted-size carbonate concretions. We propose that the fluid migration is dispersed with moderate flux at the asphalt mound location.
- The fluid bypass system at the crest of the diapir is characterised by two parallel and cross-cutting negative reflections. The first refers to the BGHSZ of hydrate 1 structure. The identification of recurrent oil slicks certifies thermogenic migration, the second negative reflection is probably related to the stability base of hydrate structure 2 and/or H associated with the migration of a heavier gas mixture.

To conclude, this case study defines a series of geophysical attributes associated with an active thermogenic oil seep such as double BSR, focused pipes and rough seafloor that should be tested in other areas for relevance.

<u>Chapitre VI.</u> Synthèse régionale de la distribution des structures d'émanation d'hydrocarbures lourds et contrôle structural



Sources: AAPG Bulletin, CGG, European Geoscience Union, European Space Agency, Florida State University, Marum, Roberts Scribbler, Sea Change, TDI Brooks, Woods Hole Oceanographic Institution

# <u>Section I</u> Synthèse régionale : Caractérisation des signatures géophysiques associées aux émanations d'hydrocarbures lourds dans le bassin du Bas-Congo

# Introduction à l'article prêt à soumettre au journal G-cubed

Nous avons observé dans le chapitre précédent (**Chapitre V**) que l'analyse détaillée d'une zone de sortie active d'hydrocarbures (Fig. VI-A) permettait de définir des marqueurs géophysiques éventuellement spécifiques aux émanations d'hydrocarbures lourds. Ce site se localisait au niveau de la tête d'un diapir et présentait en particulier (i) des corps de forte amplitude à la fois sur les données de sismique 3D et sur les données de sondeurs de sédiments ; (ii) des morphologies particulières en fond de mer composées d'une agrégation de micro-dépressions ; (iii) des monticules de tailles restreinte sur le fond de mer, interprétés comme des monts d'asphaltes ; (iv) des doubles réflecteurs à polarité négative.



Fig. VI-A : Visualisation en 3D des objets identifiés au niveau du site d'étude de la zone de fuite d'hydrocarbures lourds détaillé dans le Chapitre V. La canopée du sel est afficée en noir, les corps de forte amplitude extraints de la sismique sont affichées en orange. La section sismique est affichée en amplitude avec les valeurs de contrastes d'impédances positives en rouge et valeurs de contrastes d'impédances négatives en noir.

L'analyse d'images radar du **Chapitre III** a montré que les sites actifs d'expulsion d'hydrocarbures lourds sont nombreux dans la province profonde du bassin du Bas-Congo. La couverture spatiale du jeu de données géophysiques de surface et de subsurface doit permettre de valider nos observations menées à l'échelle d'un site actif disposant d'un jeu de données important (**Chapitre V**), à une échelle plus régionale, y compris avec des données parfois moins résolues.

- Les signatures géophysiques identifiées à partir du site étudié dans le chapitre précédent sont-elles extrapolables sur une collection de sites d'émanation plus importante ?
- Les morphologies de «pockmarks agglutinés» sont-elles caractéristiques des zones d'émanations d'hydrocarbures lourds ?
- La présence de monticules interprétés comme associés à des asphaltes, est-elle systématique ?

La Section I de ce Chapitre VI correspond à une synthèse, combinant les différentes techniques utilisées dans les chapitres précédents et présentant les avantages et limitations de chacune d'entre elles. Cette Section I s'intéresse en particulier à identifier les zones où tous les critères géophysiques caractérisant les sites de suintements actifs d'hydrocarbures lourds sont rassemblés afin d'établir un inventaire des sites potentiellement actifs. La localisation de ces sites sera ensuite comparée à celle des zones actives identifiées à partir de l'analyse d'images de satellite du Chapitre III, ce qui permettra notamment de contraindre *combien de sites potentiels fuient actuellement des hydrocarbures lourds ?* 

# Regional characterisation of geophysical oil seep features in the Lower Congo basin

## Article à soumettre à la revue G-cubed (Geochemistry, Geophysics, Geosystems).

Romain Jatiault<sup>a, b</sup>\*, Damien Dhont<sup>a</sup>, Lies Loncke<sup>b</sup>, Dominique Dubucq<sup>a</sup>, Patrice Imbert<sup>a</sup>

a Total SA, Centre Scientifique et Technique Jean Feger (CSTJF), Avenue Larribau, 64018 Pau, France

b University of Perpignan Via Domitia, Centre de Formation et de Recherche sur les Environnements Méditerranéens (CEFREM), UMR 5110, 52 Avenue Paul Alduy, 66100 Perpignan, France

\*Corresponding author. University of Perpignan Via Domitia, Centre de Formation et de Recherche sur les Environnements Méditerranéens (CEFREM), UMR 5110, 52 Avenue Paul Alduy, 66100 Perpignan, France. Tel.: +334 68 66 20 98

E-mail addresses: romain.jatiault@univ-perp.fr, romain.jatiault@gmail.com (R. Jatiault)

#### Résumé

Le bassin du Bas-Congo est connu pour expulser naturellement 4400 m<sup>3</sup> d'hydrocarbures liquides par an vers la surface de la mer. Ces hydrocarbures émanent de plus d'une centaine de sites de sorties en fond de mer. Une campagne de carottage géochimique confirme la présence d'hydrocarbures lourds sur ces sites en fond de mer. L'analyse des données sismiques améliore considérablement l'identification des zones de sorties actives. Cette étude vise principalement à une valider à l'échelle régionale les caractéristiques géophysiques associées à un point de fuite actif identifié auparavant. La zone d'émanation d'hydrocarbures lourds est située dans la province compressive du bassin qui présente de nombreuses remontées diapiriques en lien avec le glissement de la super-séquence postsalifère sur le niveau de décollement Aptien. Les points de sorties des hydrocarbures lourds au niveau du fond de mer sont contrôlés par la position de ces remontées diapiriques qui créent des chemins de migrations efficaces à travers les sédiments. L'article présente une description des signatures bathymétriques, de réflectivité, d'amplitude, de géophysiques de subsurface et des profils de sondeur de sédiments sur les sites de sorties thermogéniques. Ces lieux d'expulsion correspondent principalement à des monts sous-marins et à des pockmarks de forme complexe et irrégulière entourés de petits monticules. Les pockmarks à huile actifs sont associés à des anomalies positives d'amplitude sur le fond marin et montrent des cheminées verticales de forte amplitude enracinés sur le réflecteur à polarité négative marquant la base de stabilité des hydrates de gaz. Les profils de sondeur de sédiments montrent que les monticules sont reliés par un réseau de failles à des niveaux de fortes amplitudes enfouis. Sur la base de ces caractéristiques, nous avons identifié une série de sites potentiels d'émanations d'huile à l'échelle du bassin. L'utilisation d'attributs sismiques tels que la courbure, facilite la reconnaissance des monticules sur les données de géophysique de subsurface. Nous avons ainsi identifié un total de 2946 monticules individuels qui se regroupent au sein de 50 zones avec une densité de 35 à 240 monticules par km<sup>2</sup>. Ils sont interprétés comme étant associés à un stockage d'asphalte sur le fond de mer. Environ la moitié des sites potentiels sont associés à des émanations récurrentes d'hydrocarbures identifiées à la surface de la mer. Les sites restants pourraient correspondre à des sites inactifs sur la période de surveillance satellitaire ou dont le fonctionnement est dominé par des émanations de gaz.

*Mots clés :* Nappes d'hydrocarbures, Fuite d'hydrocarbures thermogéniques, Pockmarks, Asphaltes, Diapirs de sel, Bassin du Bas-Congo, Hydrates de gaz, Double BSR.

# I.1. Introduction

The understanding of natural transfers of hydrocarbon from petroleum reservoirs to the seafloor present great implications in the apprehension of sedimentary basin evolution (Gay et al., 2006a; Cartwright et al., 2007; Andresen et al., 2011; Anka et al., 2013; Marcano et al., 2013; Serié et al., 2016), deep marine ecosystems inventory (Charlou et al., 2004; Ondréas et al., 2005; Jones et al., 2014) or submarine geohazards (Bünz et al., 2005; Hill et al., 2010; see Anka et al., 2012 for a complete review). The seafloor expressions of focused fluid flow mostly occur as seafloor pockmarks (Kind and MacLean, 1970; Judd and Hovland, 2009). They corresponds to the seafloor expression of focused migration pathways (Loncke et al., 2004; Pilcher and Argent, 2007) whose size and geometry depends of sediment host properties and hydrocarbon flow (*Roberts et al., 2006*). On seismic sections, acoustic anomalies imprint the migration paths of fluids through the sedimentary layer succession (Cunningham and Lindholm, 2000; Heggland, 2002; Gay et al., 2006b). Vertical succession of acoustic anomalies is either expressed as vertical amplitude dimming associated with sediment liquefaction and high gas content or as an amplitude increase due to Hydrocarbon Related Diagenic Zones (HRDZ - O'Brien and Woods 1994; Cowley and O'Brien, 2000). They are either entitled as (i) pipes forming large clusters of vertical positive amplitude anomalies, or (ii) chimneys corresponding to large solitary features without noticeable internal reflection structure (Løseth et al., 2001; Berndt et al., 2003; Heggland, 2005; Cartwright et al., 2007; Løseth et al., 2009; Hustoft et al., 2010; Moss and Cartwright, 2010; Løseth et al., 2011; Connolly et al., 2013; Karsten et al., 2015). In the condition of abundant hydrocarbon gas migration, the Bottom Simulating Reflection (BSR) marks the Base of Gas Hydrate Stability Zone (BGHSZ) and consists of a negative polarity reflection associated with a negative impedance contrast between a stable hydrate domain overlying a free gas interval (Shipley, 1979; MacKay et al., 1994; Haacke et al., 2007). Occasionally, the temporary hydrocarbon storage below the BSR creates High Reflective Zones (HRZ; Andresen et al., 2011).

The identification of sea surface oil seepage slicks provides an additional means to validate hydrocarbon migration throughout the petroleum exploration workflow, from the targeting (*Kornacki et al., 1994; Williams and Lawrence, 2002; O'Brien et al., 2005; Stalvies et al., 2017*) to the prospect validation (*Jauer and Budkewitsch, 2010*). This technique recently gained interest in frontier basins thanks to its cost-efficiency. When stacked, the multi-temporal observations of natural recurrent slick outlines are diverging from a central area identified as the oil surfacing area (*de Beukelear et al., 2003*). The manual picking of the Oil Slick Origins (OSO; *Garcia-Pineda et al., 2010*) that corresponds to the proximal detectable edge of individual seepage slicks is used to locate seafloor

seeps by integrating current measurements and probable migration pathways of oil during its ascension through the water column (*Jatiault et al., submitted*). In this study area, the vertical projection of the average location of the OSO at the seafloor provides the most accurate location of the seafloor origin.

Recently, *Jatiault et al. (accepted)* described seafloor and sub-seafloor high-resolution characteristics of an active oil seep in the study area. The study showed that this thermogenic seep site consists in complex of heterometric pockmarks associated with small size asphalt mounds (~300) laterally (*Unterseh et al., 2013; Jones et al., 2014*). The subsurface is affected by:

- a shallow High Impedance Layer (HIL) that reach the seafloor at the location of pockmarks. The HIL were first described and interpreted as related to carbonate concretions with a possible contribution of asphalt layers (*Hill et al., 2010*);
- a double negative polarity reflection. The first is interpreted as a methane BSR overlying the second BSR that could be related to a mix of heavier gas;
- an upward deflection of the BSR testifying a thermal anomaly due to the fluid ascent;
- a positive amplitude anomalies occurring as two distinctive features delimited by the BSR; a massive high amplitude bodies below the BSR and vertical pipes that connect the BSR with the seafloor and act as supplying conduits for the seafloor pockmarks.

This complementary study aims at validating previously described criterions on a greater oil seep population recognised in the Lower Congo Basin. The combination of sea surface slicks database, geochemical cores and seafloor topographic manifestations visible on seismics data (high resolution surveys used for geo-hazards evaluation and exploration 3D seismics) will help to inventory oil seeps sites through the basin. The comparison with the whole seafloor fluid flow feature array will be used to discuss the potential seismic characteristics typical of oil seep sites.

It is probable that satellite-based oil seeps inventory only enables the identification of a subset of the whole seeps array. In the Gulf of Mexico, potential seep sites were determined from the locations of seafloor amplitude anomalies on exploration seismics (*Frye et al., 2008*) and 50% are associated with recurrent oil slicks at the sea surface (*Garcia-Pineda et al., 2010*). This study aims also to compare the total active oil seeps sites array identified at the sea surface with the potential seep sites identified on geophysical surveys in the Lower Congo Basin.

# I.2. The Lower Congo Basin

The study area corresponds to a large oil seeping province located in the deep offshore Angola, with water depths ranging from 1000 to 3000 m and located between 10 to 12 °E and 6 to 8°S. The Lower Congo Basin (LCB), being part of the West African passive margin, results from the South Atlantic opening that initiated during the Early Cretaceous (144 - 140 Ma). The subsequent chrono-stratigraphic framework can be divided into 3 major phases. The pre-salt (Neocomian to Barremian) consists of extensive lacustrine infill resulting in the oil-prone Bucomazi Fm (Burwood, 1999, Cole et al., 2000). The Aptian evaporites layer was deposited during a low water circulation period (1000 m thick in average; Marton et al., 2000). The post-salt super-sequence is subdivided into 3 main episodes. The aggrading stage resulted in the development of a carbonate-ramp (Pinda Fm; 113 - 95 Ma) under the condition of a stable-state climate and restricted marine conditions (Haq et al., 1987; Séranne, 1999). This period is followed by a progressive deepening of the basin due to thermal subsidence that led to the deposition of the oil-prone Iabe Fm (99 - 65 Ma) and subsequent immature Landana Fm (65 - 45 Ma; Cole et al., 2000; Schoelköpf and Patterson, 2000). The Eocene/Oligocene transition is marked by a regional unconformity, corresponding to a 10 Ma hiatus that eroded about 500 m of sediments from the shelf to the basin, which controversially interpreted as originating from the African superswell (Nyblade and Robinson, 1994) or climate fluctuations.

The establishment of the paleo-Congo river during the early Oligocene, coupled with "ice house" period resulted in a prograding stage (35 - 5 Ma) characterised by deltaic deposits (**Malembo Fm**). The Miocene-Pliocene transition is marked by the displacement of the Congo River to its actual location and to the development of an important upwelling system during the Early Quaternary (*Uenzelmann-Neben, 1998*) which led to drastic changes in sedimentation towards fine-grained deposits in the deep sea fan. The post-salt super-sequence is affected by gravitational gliding over the Aptian salt décollemment layer. Salt tectonics subdivides the basin into an upslope extensional domain, a translated area and a downslope compressive province characterised by salt diapirs which confined sedimentation onto minibasins (*Oluboyo et al., 2014*).

The study area is mostly located in the downslope compressive province and is affected by a proficient fluid system evidenced by numerous studies (*Lucazeau et al., 2004; Gay et al., 2006b,c; Gay et al., 2007; Andresen et al., 2011; Andresen and Huuse, 2011; Andresen, 2012; Imbert and Ho, 2012; Anka et al., 2013; Jones et al., 2014; Wenau et al., 2014 a, b; Maia et al., 2016; Jatiault et al., 2017; Jatiault et al., accepted, submitted*). The Miocene series, characterised by extensive high amplitudes,

outcrop above the crest of salt diapirs and correspond to privileged stratigraphic pathways for the migration of fluids in the Aptian salt province (*Serié et al., 2016*). Two types of seafloor pockmarks are specific of the area. The bulls-eyed (*Andresen et al., 2011*) consist of a vertical succession of stacked sub-circular depressions in mini-basins and are strongly associated with the polygonal fault system (*Cartwright et al., 2007*). Clustered pockmarks consist of a complex aggregation of heterometric pockmarks located above salt diapirs (*Andresen, 2012; Jatiault et al., accepted*).

# **I.3. Data and Methods**

## I.3.1. SAR data and seepage slicks inventory

The entire SAR collection consists of a long range monitoring integrating 156 scenes acquired during 21 years (1994 - 2014) with a high variability of the distribution of SAR acquisition, either temporally (Table IV-3) or spatially (Fig. VI-1). The oil seeping province is imaged with a large stack of SAR scene collection, varying between 50 to 150 overlapping scenes (Fig. VI-1). The SAR dataset consists of a combination of X-band (2.5 to 3.75 cm) and C-band (3.75 to 7.5 cm) data that are known to correspond to the most suitable wavelength to detect oil slicks at the sea surface especially for the recognition of the thinnest oil films (*Gade and Alpers, 1998*). The oil presence at the sea surface diminishes the wind-induced capillary waves which create a local decrease of radiometric values on SAR data. The dismissal of look-alikes (*i.e.* spills from platforms or boats, low wind effects, algal blooms) is in first order based on the aspect of the backscatter anomaly (radiometric values, edges sharpness and sinuosity) and afterwards stacked on a compilation map. The variability of both the sea surface currents and winds orientations creates diverging surface slicks patterns whose centres enables the identification of the oil surfacing area (black stars in Fig. VI-1; *Jatiault et al., 2017*).

Table VI-1: Inve	ntory of SAR	scenes collection	characteristics
------------------	--------------	-------------------	-----------------

Satellite/ Sensor	Period of acquisition	Wavelength	Pixel Spacing (m)	Amount of SAR data
<b>Envisat</b> /WSM	2002 - 2012	C (5.8 cm)	75	46
<b>ERS/IMP</b>	1994 - 2001	C (5.8 cm)	12.5	17
Cosmo-SkyMed	2009 - 2014	X (3.1 cm)	3-15	80
TerraSAR – X	2011	X (3.1 cm)	20	6
RADARSAT-2	2005 - 2012	C (5.3 cm)	25-50	7

# I.3.2. Geochemical coring

The seafloor coring campaign was conducted across the deep province of the LCB, within the transitional/compressive domain (blue triangles in Fig. VI-1). The entire dataset consists of a large amount of 488 piston cores operated during several coring campaigns between 1998 and 2010 by TDI Brooks. Piston cores are composed of a vertical succession of 20 cm long sub-sections with a maximum depth of 5.6 m. The geochemical analysis includes:

- The headspace gas components ( $C_1$  to  $C_5$ ) that provides the gas composition (*Abrams and Narimanov*, 1997).
- The Gas Chromatography Mass Spectrometer (*GC MS*) that measures the distribution of alkane composition (Sn alkane) assessed from the retention time (performed for 423 cores out of the whole 488 cores). The sum of individual extractible alkanes portion provides an estimation of the concentration of high molecular weight hydrocarbon (*C*<sub>15+</sub> hydrocarbon concentration).
- Unresolved Complex mixture (UCM) defined as the unextractable organic carbon with chromatogram ( $C_{15+}$ ). The analysis of  $C_{15+}$  hydrocarbon sums the Sn alkanes and the UCM to provide an estimation of the concentration of heavy hydrocarbons
- Vitrinite reflectance (VRo) that provides information on the thermal maturity (e.g. Cardott, 2012).
- Total Scanning Fluorescence (TSF) intensity is measured with spectrometry technique helps to quantify the fluorescence of aromatic components (*Abrams, 2005*). The maximum intensity (I<sub>max</sub>) corresponds to the maximal values of fluorescence between the emission (EM) and the excitation (EX) spectrums (e.g. *Barwise and Hay, 1996*). The ratio (R<sub>1</sub>) between maximal value of EM and EX provides an indirect estimation of the °API (American Petroleum Institute; ° API = -10.1\*R<sub>1</sub> + 59.8).

## I.3.3. Seismic dataset

The available seismic dataset consists of a 3D seismic cube used for petroleum exploration, complemented by a high resolution survey used for geo-hazards evaluation acquired with AUV (Autonomous Underwater Vehicle).

The seismic cube covers a 3300 km<sup>2</sup> area with a maximum acoustic penetration of 4500 ms TWT (Fig. VI-1). The source system is composed of 2 airguns separated by 50 m with shot intervals of 18.75 m. The sensors system consists of 10 parallel; 100 m separated streamers, and is composed of

396 individual receivers groups separated by 12.5 m. The available dataset consists of the near-offset trace seismic cube.



Fig. VI-1: Geographical localisation of the study area and compilation of available dataset. The red square refers to the spatial extent of maps displayed in Fig. VI-2a, b; Fig. VI-5a, b; Fig. VI-6f; Fig. VI-8a, b and Fig. VI-9a, b.

The Sub-Bottom Profiler (SBP) dataset was acquired during two surveys operated in 2009 by C&C and in 2011 by Fugro (Table V-1). The gridded area has a line spacing of 1000 m along the slope direction and 175 m along the strike direction and acquired. The combination of the two datasets covers an 830 km<sup>2</sup> with 5500 km of SBP sections. The high frequency SBP is characterised by a 10 cm vertical resolution while the penetration is limited to the first 100 ms TWT below seafloor. We used the amplitude attribute to display the 3D seismic impedance contrast at lithologic interfaces. The RMS (Root Mean Square) amplitude was used to display SBP sections and to identify geophysical anomalies on the 3D seismic.

Data type		Line spacing (m)	Max. Penetr. (ms TWT)	Dominant frequency	Horizontal Res. (m)	Vertical Res. (m)	Covered area
Sub- seafl oor	3D exploration seismic	12.5*12.5	4500	20 - 100 Hz	12.5	~4 m	3300 km <sup>2</sup>
	AUV Sub- bottom profiler	175*1000	100	1.5 - 4.5 kHz	1.5	~10 cm	5500 km
Sea- floor	AUV HR bathymetry	-	-	200 kHz	1.5 - 3 m	-	830 km <sup>2</sup>
	AUV Seafloor Reflectivity	175*1000	Few centimetres	120 - 410 kHz	3 m	-	830 km <sup>2</sup>

Table VI-2: Characteristics of the available datasets including seafloor and sub-seafloor imagery.

The high resolution survey includes a high resolution bathymetry (EM2000 multibeam echo-sounder) and seafloor reflectivity acquired along the acquisition tracklines of the vehicle. In addition, the seafloor origin of a large majority (>80%) of recurrent oil seep sites were imaged with a large scale (16 000 km<sup>2</sup>), 12.5m resolution multibeam bathymetry. The computation of the slope map superimposed with seafloor isochrones enhances the imagery of seafloor features. Seafloor curvature maps are computed using the first arrivals of the 3D seismic cube on the seafloor. We used a window size of 3 profiles and an interpolation length of 5 samples.

We integrated all the available data across the basin, including SAR scenes analysis, geochemical coring, bathymetry and seismic data to get a regional scale approach of the oil seeping system. Each map shown in this publication (Fig. VI-2a, b; Fig. VI-5a, b; Fig. VI-6f; Fig. VI-8a, b and Fig. VI-9a, b) corresponds spatially to each other. The displayed area corresponds to an upscale in order to enhance the quality of maps (red square location in Fig. VI-1) but statistics computation were based on a larger areas, using the entire data volume (Fig. VI-1).

# I.4. Analysis and results

# I.4.1. Evidence of active oil seeps

# I.4.1.1. Sea surface manifestations of oil

The visual analysis of the 156 SAR scenes revealed an amount of 3000 seepage slicks characterised by elongated or curvilinear trends with variable lengths (Fig. VI-2a). Diverging black streaks and clusters of OSO were used to identify active oil seep sites. The oil slick detection frequency varies from one

site to the other. Compared to the SAR coverage, the occurrence percentage of oil slicks varies from 5 to 80%. Hundred seep sites are distributed across the margin. The water depth ranges from 1200 to 2700 m and corresponds to the deep Neogene delta of the Congo River. The OSO emerges within circles of 2.5 km radius suggesting that the lateral deflection of hydrocarbon plumes in the water column remains low compared to the water depths (Fig. VI-2b; *Jatiault et al., accepted*). The vertical projection of OSO locations, density and geometric mean centres help to locate active oil seep sites on the seafloor (Fig. VI-2c, d, e).

#### I.4.1.2. Seafloor geochemical coring

The geochemical analysis of seafloor piston cores shows that the core characteristics greatly vary (Fig. VI-3a). The Sn-alkanes concentration ( $C_{16} - C_{32}$ ) ranges from 0.1 to 36 ppm while the concentration of UCM ranges from 2 to 85,000 ppm. The TSF values in cores range between 1116 to 87,240,000 and about 35% of drilled piston cores (172 out of the 488) have greater TSF values that the regional background (10 000 units - *Serié et al., 2016*).

The plot of the fluorescence (TSF) compared to the concentration in  $C_{15+}$  (Unresolved Complex Mixture + Sn alkanes) provides an indirect method to quantify the heavy hydrocarbon presence in the subsurface sediments (Fig. VI-3a). Piston cores are sorted in categories depending on the confidence degree of hydrocarbon presence in cores. This evaluation is based on the TSF values compared to the regional background (Fig. VI-3a):

- 20 piston cores that are sorted in the "sure" category (Fig. VI-3a), with TSF values at least 100 times greater than the regional background (>10<sup>6</sup>).
- 38 cores are sorted in the "probable" category (Fig. VI-3a) with TSF values 10 times higher than the regional background (100,000 <TSF <1,000,000)

The combination of the two categories show that a total of 58 piston cores are sorted in the combination of the "Probable" and "Sure" categories (red dashed square in Fig. VI-3b).

 114 cores are sorted in the "possible" category (Fig. VI-3a) for moderate TSF values (10,000 <TSF <100,000)</li>

In addition to the indirect estimation of oil presence with fluorescence and GC analysis, the observation of asphalt inclusion confirms that oil are present in 10 piston cores (black triangles in Fig. VI-3a). Even if it only represents 2% (10/488) of the total cores array, the 10 cores corresponds to the highest TSF and UCM values.



Fig. VI-2: a. Compilation map of seepage slicks outlines identified from the interpretation of 156 overlapping SAR scenes. The colours refer to distinct active oil seep sites. b. Compilation of OSO pinpointed from diverging recurrent slicks in white dots, superimposed with the OSO density map and iso-contours. High values in warm colours correspond to frequent oil surfacing areas. c, d, e. Extract of the OSO density map at recurrent oil slicks areas, superimposed in transparency with slope maps of the seafloor.



Fig. VI-3: a. Graph (logarithmic axis) of the concentration of the high molecular weight hydrocarbons ( $C_{15+}$ ) compared to the maximal intensity of the Total Scanning Fluorescence (TSF Imax). The colours of dots refer to the certitude degree of hydrocarbon presence in cores. b. Same graph with a correlation of sea surface slicks manifestations. The dots are sorted into 4 categories depending on the geographical correspondence of oil at the sea
# surface (red dots) and visual inclusion in cores (triangles). The red dashed triangle delimits the two categories "Sure" and "Probable" that presumably contains oil traces.

#### I.4.1.3. Geographical correspondence and correlation

A subset of 22 cores were drilled inside or in close proximity to the vertical projection of recurrent seepage slicks (<1500 m) detected with the SAR system (red dots and green triangles in Fig. VI-3b). The geochemical analysis was successful for 19/22 cores, showing that the  $C_{I5+}$  concentration corresponds to high concentrations of heavy hydrocarbon in drilled oil seeps. All piston cores located at proximity (<1500 m) to a recurrent oil seep show TSF values at least 50 times higher than the regional background. A large majority (17/19) of cored thermogenic seeps detected on radar images mostly range among the "Probable" and "Sure" categories, the remaining (2/17) are inside the "Possible" category (red dots and green triangles in Fig. VI-3b). The successful association between seafloor thermogenic seeps to recurrent sea surface slicks validate the fact that oil seep sites are located sub-vertically to seafloor pockmarks at the regional scale, as evidenced by hydrodynamic models (*Jatiault et al., submitted*). Assuming that 58 piston cores are sorted into the "Probable" and "Sure" categories, 38% (22/58) are associated with recurrent seepage slicks. The °API gravity, estimated with the fluorescence technique, is ranging from 10 to 40 for active oil seep sites associated with sea surface oil slicks.

Even if visual confirmation of asphalt inclusion remains unusual (10 cores; black triangles in Fig. VI-3a), 40% are associated with proximal recurrent seep site at the sea surface (4/10; green triangles in Fig. VI-3b). The geochemical analysis are available for 2 cores (out of the 4) and reveal that TSF values and the concentration in  $C_{15+}$  reach the highest values among the whole core dataset (Fig. VI-3b).

# I.4.2. Fluid flow features on the seafloor

We mapped and characterised all seafloor features that may be related to fluid escapes in the study area, independently from SAR and geochemical coring results. They have been sorted into six main families: conical shaped pockmarks (isolated and lined-up), seafloor gullies, submarine mounds, complex shaped pockmarks (clusters of heterometric pockmarks and irregular pockmarks) (Fig. VI-4). In addition to these morpho-types, another corresponds to scattered positive topographic hummocky features (Fig. VI-4).



Fig. VI-4: Compilation of major fluid vent morpho-types observed at the seafloor in the Lower Congo Basin. The bathymetric colorscale was normalised to enable a depth comparison between morpho-types categories using a 60 m dynamic range.



Fig. VI-5: a. Seafloor map superimposed with dip map. b. Interpretative map of the seafloor. Fluid venting features were sorted from their morphological characteristics: Isolated conical pockmark; Lined-up conical pockmarks; Submarine mound; Seafloor gullies; Clustered pockmarks; Irregular pockmarks;. Black stars show the positions of the mean impact points of oil slicks at the sea surface.

#### a. Conical shaped pockmarks

Conical shaped pockmarks are characterised by gentle slopes, less than 15° along the maximum inflexion (Fig. VI-4a), with a maximal depth of 150 m. Conical shaped pockmarks are found widespread in the entire study area, mostly within salt minibasins (Fig. VI-5). About 890 conical shaped pockmarks were also depicted. They are associated with seafloor reflectivity anomalies.

Lined-up conical pockmarks (Fig. VI-4b), defined as a geographical succession of at least three conical shaped pockmarks along a main direction are widely distributed along the maximal flexural axis of salt minibasins induced (Fig. VI-5) and form curvi-linear canyon with depth greater than 100 m in high density venting areas.

#### b. Seafloor gullies

Seafloor gullies are distributed along the maximal flexural axis of minibasin synclines (Fig. VI-4c). They are characterised by seafloor reflectivity anomalies. They consist of deep (>50 m) and lengthened (>1 km) depressions on the seafloor, either continuous or consisting of a geographical succession of conical shaped pockmarks. They are also located at the tip of outcropping normal faults associated with the sagging of minibasins, or at the unconformity between uplifted slabs of Miocene-Pliocene series at diapirs and Quaternary siltstones in minibasins.

#### c. Submarine mounds

Submarine mounds are bathymetric highs on the seafloor with typical sizes ranging from 5 to 20 m above seabed and diameter up to 500 m (Fig. VI-4d). Seafloor mounds remains unusual across the study area with only 17 mounds. Each of them consist of clusters of individual mounds. The slope of individual mounds goes from 10 to 30°. Radial faults (*Stewart, 2006; Carruthers et al., 2013*) development can be observed from the high resolution bathymetry. Submarine mounds are well discernible on the seafloor reflectivity anomalies and the seafloor amplitude map form consistent patches of hardened material compared to the surrounding siltstones. Seafloor mounds are located above allochthonous salt diapirs with particular shapes (Fig. VI-4) that correspond, most of the time, to restricted extension diapirs (pike/needle).

#### d. Complex shaped pockmarks

Complex shaped pockmarks are defined as uneven fluid escape features on the seafloor with a main depression usually restricted to few tens of meters. Complex shaped pockmark occur as two distinctive

features; (1) Cluster of heterometric pockmark (Fig. VI-4e) are defined as an aggregation of a large amount of micro-pockmarks that develops along the concentric fault networks at the rim of the salt canopies with dimensions that reach more than 1500 m in length (*Jatiault et al., accepted*). This creates a lengthened depression domain that contains different heterometric pockmarks; (2) Irregular shape pockmarks (Fig. VI-4f) correspond to pseudo circular depressions combined with a rough aspect at the bottom of the depression. Local depressions are associated with a strong and positive seafloor anomaly on the seafloor reflectivity maps (Fig. VI-4). They are mostly found along coastward salt flanks (Fig. VI-5). We identified 109 and 175 cluster and irregular pockmarks, respectively.

#### e. Seafloor hummocky areas

The seafloor is affected by rough patches clustering over restricted-size areas, on top of salt diapir. The dimension of hummocky features remains below the 3D seismic resolution and a good imagery of these features is only possible with the high resolution data (Fig. VI-6a). However, seafloor hummocky areas induce a slight disturbance of the seafloor creating a rough aspect that can be discernible from the exploration seismic resolution (Fig. VI-6a). On the HR bathymetry, hummocky areas consist of a large amount of restricted-size positive topographic features (Fig. VI-6b). The discrimination of hummocky features is particularly enhanced using the curvature attribute that measures the bathymetric slope inflexions (Fig. VI-6c). The values of the curvature maps are high positive at the top of the topographic features (round or elongated shape; Fig. VI-6d), medium along the flanks (~0) and negative at the rim (Fig. VI-6e). We assumed that rough patches correspond to high density of seafloor hummocky and that individual positive roundish curvature values correspond to individual hummocks. Most of the time, the presence of hummocky clusters is associated with complex shaped pockmarks (even if the association with a nearby seafloor depression is not systematic. We identified 2946 possible individual hummocks over the area imaged with 3D seismics. Hummocky features are concentrated within 10 areas visible in the high resolution survey and 50 areas from the 3D seismics at 12.5m resolution (Fig. VI-6). The 3D seismics enables the recognition of ~55% of individual hummock features visible on the HR survey. The amount of discernible hummocky features within hummocky cluster areas range between 10 to 210 objects on the 3D seismics over surfaces ranging from 0.12 to 3.45 km<sup>2</sup>. The density of mounds range from 35 to 240 hummocks per km<sup>2</sup>.



Fig. VI-6: a. Seafloor map extracted from the first arrivals of the 3D seismics. The dynamic range of the seafloor colour scale is 60 m. b. Seafloor slope map of the 3 m resolution multi-beam echo sounder affected by the meter-scale seafloor hummocky areas. c. Map of curvature surface attribute extracted from the 3D seismic data. d. Zoom of the 3 m resolution echo-sounder seafloor map (bathymetric range is 10 m) superimposed with the slope map. e. Zoom of the curvature surface attribute of the 3D seismic first arrivals. f. Extract of the geographical inventory of the hummocky areas superimposed with salt diapirs locations and natural oil seep sites. The numbers refer to the amount of individual detected hummocky areas.

One piston core was drilled inside a seafloor hummocky area visible on the 3D seismics. The core contains asphalt inclusions. Hummocky features present the same morphological and geophysical characteristics and are present in comparable configurations as asphalt mounds previously identified in the area (*Unterseh et al., 2013; Jones et al., 2014*). We interpret the large amount of restricted sized seafloor hummocks as asphalt material that spread on the seafloor above the crest of salt diapirs following a migration across sedimentary series.

Hummocky areas are frequently associated with prolific oil seep sites detectable with SAR data on the high resolution dataset (*Jatiault et al., accepted*). The HR survey shows that among the 10 areas characterised by seafloor hummocks, 5 are associated with detectable oil at the sea surface. Among the 50 areas identified from the 3D seismics, 21 are associated with recurrent oil slicks at the sea surface. Both the HR survey and information deduced from 3D seismics suggest that barely half of asphalt mounds fields are associated with detectable and recurrent slicks at the sea surface (21 out of 50 in the whole array).

# I.4.3. Echo characterisation of the subsurface

#### I.4.3.1. Positive geophysical anomalies on the 3D seismic

We used the RMS amplitude computation stack on the 3D seismic data through the near surface interval to regionally inventory geophysical anomalies. We extracted the high amplitudes of the first 100 ms TWT following the seafloor reflection (Fig. VI-7 A). Geophysical anomalies occur as four main distinctive categories.

The first type (1; Fig. VI-7 A) refers to a vertical succession of low amplitude reflections. Low amplitude pipes suggest an acoustic dimming in the sedimentary pile where the impedance contrasts is attenuated across successive lithologic interfaces. Low amplitude pipes (dark features in Fig. VI-7 A) mostly spread across salt minibasins or are aligned along the maximal flexural axis of salt minibasins (Fig. VI-7 A; Fig. VI-8). We identified a large amount of 582 low amplitude pipes across the area imaged with the exploration seismic (Fig. VI-8). Low amplitudes anomalies identified in the 3D seismics corresponds to the location of conical shaped pockmark (isolated and lined-up) and seafloor gullies (Fig. VI-7 C). The lithologic interfaces are disrupted by an acoustically transparent chimney in the sub-bottom profiler below the location of conical pockmarks (Fig. VI-4). Lithologic interfaces are either truncated by the seafloor depressions or associated with a slope inflection, stacked on successive lithologic interfaces. In the condition of horizon truncation, the

truncation is probably associated with a recent initiation of the seepage activity. In the case of a vertical succession of slopes inflection, the maximum affected interval outreaches the acoustic penetration of the sub-bottom profiler and can be followed up to 600 ms TWT on the exploration seismic. On the sub-bottom profiler, stratigraphic boundaries remain well organised surrounding the low amplitude anomalies. Most of them correspond to the bulls-eyed pockmarks as defined by *Andresen et al. (2011)*.



Fig. VI-7: A. Extract of the RMS interval of the first 100 ms TWT showing different types of seismic anomalies. Note the presence of a shallow diapir that creates consistent high amplitudes close to the seafloor. Outcrop of Neogene series creates a moderate amplitude anomaly. Sub-circular low amplitude anomaly in minibasins and smaller sub-circular high amplitude anomalies are lying above salt diapirs. B. Quaternary sediment isopach revealing

the differential sedimentation between minibasin areas and diapir areas. C, D, E, F. Seismic sections through the different geophysical anomalies identified on the RMS stack amplitude (see details in text and locations on the Fig. VI-7 A, B). G. Zoom in the black square of Fig. VI-7F.

The second type (2) of acoustic anomaly consists in very high amplitudes, spreading through large and consistent patches due to the top salt reflection (red in Fig. VI-7 D), within the first 100 - 150 ms TWT below the seafloor. In this situation, the distinction between fluid-related amplitude anomalies and the top of salt reflection is difficult and the recognition of the fluid migration features might be altered.

The third type (3; Fig. VI-7 A) of acoustic anomaly refers to moderate positive amplitudes anomalies related to the outcrop of older sediments (mostly dated Neogene) above salt diapirs whose values progressively decrease laterally (Fig. VI-7 E). The affected surface areas range from 1 to 10 km<sup>2</sup>. Moderate amplitude anomalies consist of consistent and extensive patches either associated with a downslope uplift of older sediments above salt napes or an upslope slab of uplifted sediments along salt walls such as raised rims (Fig. VI-7 E). The types 2 and 3 are associated with the same salt-related uplift phenomenon but differ in terms of diapir burial depths.

The fourth type (4; Fig. VI-7 A) of acoustic anomaly refers to local, pseudo circular and Positive High Amplitude Anomalies (PHAA; Ho et al., 2012) that are vertically stacked on successive lithologic interfaces. marking a vertical succession of strong impedance contrasts (bright anomalies; Fig. VI-7 F, G). The spatial extend of PHAA varies from 60 to 350 m in diameter and are found either as multiple vertical pipe clusters (see Jatiault et al., accepted) or isolated chimneys (Fig. VI-7 F, G). On the RMS amplitude stack of the first 100 ms TWT, we identified a restricted amount of 75 individual PHAA that are mostly associated with diapiric areas (Fig. VI-8). They mostly tend to concentrate along the upslope salt flank or along minibasins edge. High amplitude vertical pipes are associated with strong RMS amplitudes in the central area encompassed with a moderate peripheral anomaly. The seafloor expression of PHAA mostly corresponds to the complex shaped pockmarks (clustered or isolated) and submarine mounds structures.

The area imaged with 3D seismic covers 30 individual recurrent oil seep sites, among which 28 are related to shallow salt diapirs, either directly corresponding to the location of uplifted older sediment slabs due to salt tectonics. The seafloor origin of recurrent oil seep sites visible from SAR data corresponds exclusively (100 %) to PHAA pipes in the shallow subsurface (<100ms; Fig. VI-8). Among the 75 individual vertical chimneys identified (type 4; Fig. VI-7 A), about 40% (30/75) of geophysical anomalies are currently associated with prolific seep sites. Conversely, none (0%) of low amplitude pipes are associated with visible oil slicks at the sea surface.



Fig. VI-8: a. Map of the RMS amplitude stack of the first 100 ms TWT below seafloor. Geophysical positive amplitude anomalies are visible in warm colours. White circles show the average surfacing areas of recurrent oil seeps. b. Map of the allochthonous salt in purple polygons. Anticlines and synclines are respectively displayed in red and blue dashed polylines. Geophysical anomalies are extracted from the RMS amplitude stack and categorised between four main families: shallow salt diapirs, exhumed older and compacted sediments, pseudo-circular amplitude diming and vertical stack of pseudo-circular high amplitude anomalies.

### I.4.3.2. Negative polarity reflections

The subsurface is affected by Negative Amplitude Anomaly (NAA) reflections that cross-cut stratigraphic series and present the characteristics of a BSR. The BSR occur as extensive reflectors in minibasins with a distance from the seafloor ranging roughly between 250 to 500 ms TWT and is most of the time, they are underlained by a thick HRZ (High Reflective Zone).

Approaching the salt diapirs, the BSR occur as patches of restricted spatial extents. The distance with the seafloor is significantly closer compared to minibasins with depths ranging from 50 to 250 ms TWT (Fig. VI-9a). The difference in burial is known to be associated with the salt thermal conductivity above salt diapirs, decreasing the stable interval of gas hydrates (*Lucazeau et al., 2004*). Here, the BSR corresponds to the basal limit of pipe-like features (type 4 anomalies). It is characterised by a vertical succession of PHAA and is underlain by massive high amplitudes underneath. Among the 75 positive local positive geophysical anomalies (type 4) recognised with 3D seismics, about 60 % (45/75) are associated with a BSR. Among the 30 recurrent oil seeps sites imaged with 3D seismic, 21 are directly emplaced above a shallow BSR. At the location of PHAA, the BSR is locally deflected upwards in relation the thermal anomaly created by the fluid ascent (see NAA 1 in Fig. VI-10a, b).

The subsurface series are also occasionally affected by a second negative polarity reflection (see NAA 2 in Fig. VI-10c, d, e). The horizon occurs as a continuous cross-cutting surface that tends to mimic the first BSR. The vertical distance with the BSR is mostly constant, or punctually increases towards the minibasins (Fig. VI-10). The thermal effect associated with the presence of a salt diapir also affects the vertical location of the second BSR by decreasing the distance from the seafloor. Double BSRs are exclusively observed in the condition of an underlying salt diapir. The surface horizons are concomitantly and locally deflected upward below seafloor depressions, which also correspond to the locations of PHAA (Fig. VI-10). Double BSRs are exclusively associated with thermogenic migration as demonstrated from the SAR scene analysis. The observation of double negative polarity reflections is not systematic at the location of oil seep sites but occur sparsely across the study area (see red coloured areas in Fig. VI-9a). Among the 30 recurrent oil seeps sites correlated with 3D seismic, 6 of them are directly emplaced above a double BSR.



Fig. VI-9: a. Extract of the Bottom Simulating Reflection map with respect to basin structure illustrating the relationship with hydrates and oil seeps sites. b. Isochrons map of the HIL (High Impedance Layer) in the shallow subsurface extracted with the sub-bottom profiler. The colour-scale refers to the distance between the seismic horizon and the seafloor.



Fig. VI-10: a. Seafloor map superimposed with 5 m isobaths, OSO: oil slicks origins (Garcia-Pineda et al., 2010). b. Distance map of the first BSR with the seafloor superimposed with the underlying diapir extension. c. Distance map of the second BSR with the seafloor superimposed with the underlying diapir extension. d. Seismic section across a double cross-cutting, negative polarity reflection marked by two stacked black horizons (see location in Fig. VI-10.a) e. Interpretative line drawing.

# I.4.3.3. Subsurface high impedance layer

At the location of specific fluid flow features (Fig. VI-4d, e, f), the SBP sections are affected by a consistent high impedance layer (HIL), covering surfaces of 20 km<sup>2</sup> in average and of 100 km<sup>2</sup> maximum (Fig. VI-9b). The recognition of the HIL is restricted to the high resolution survey. It is defined as a cross-cutting reflector in the shallow subsurface. HIL are mostly distributed along the upslope flank of salt diapirs but can also be occasionally found in the downslope.

The distance between the HIL and the seafloor ranges between 0 to 80 ms TWT above diapirs and can be greater in minibasins (<200 ms TWT). The location of the interpreted origin of oil vents corresponds to the areas affected by the presence of HIL (Fig. VI-9b). Moreover, the interpreted seafloor origin of oil seeps (irregular and cluster pockmarks) corresponds to areas where the HIL reach the seafloor. There is a strong geographical correlation between seafloor-reaching HIL, shallow local BSR local and PHAA. At the location of submarine mounds, HIL is characterised by a strong contrast of acoustic impedance delimited as a continuous front in the sedimentary interval (Fig. VI-4d). The HIL cross-cuts the stratigraphic series and rise to the seafloor towards the location of mounds without showing internal particular organisation compared to stratigraphic boundaries. At the location of complex shaped pockmarks, the sub-bottom profiler shows a continuous HIL that crosscut or follow stratigraphic boundaries (Fig. VI-4e).

# I.5. Discussion

# I.5.1. Definition and significance of geophysical criterions of thermogenic seep sites

#### I.5.1.1. Seafloor expressions

Defining thermogenic seeps feature is of major importance to target seafloor coring, probable extreme ecosystems (*Jones et al., 2014*), seafloor geohazards or potential petroleum system plays. A total amount of 1750 conical shaped pockmarks have been recognised in the study area, including isolated and lined-up pockmarks. The amount of conical shaped pockmarks, including lined up and isolated represents 85% of the fluid escapes features identified on bathymetric data. Despite these features are abundant, none are presently responsible for oil escape as seen on SAR observations. The vertical projection of the average surfacing location of oil droplets and seafloor features shows that active oil features mostly corresponds to complex shape pockmarks together with submarine mounds (Table VI-3). The typologies associated with active oil seeps features are occasional across the margin. We identified 109 irregular pockmark, 175 cluster pockmarks and 17 submarine mounds from the bathymetric analysis. This represents barely 15 percent of the total amount of identified seafloor fluid escape features. However, this portion is responsible for 98% of seafloor vents responsible for oil supply during the period of observations (Table VI-3).

Table VI-3: Inventory of pockmarks depicted from the interpretation of the 12.5 m resolution multi-beam bathymetry. The imaged area largely outreaches the 3D-covered

Seafloor morphotypes		Total picked- out	Active (SAR data)	Percentage of oil active
Submarine Mounds		17	6	30 %
Complex shaped pockmarks Conical shaped pockmarks	Cluster of irregular pockmark	109	53	49 %
	Irregular single pockmarks	175	26	15 %
	Isolated conical pockmark	890	2	<1 %
	Lined-up pockmarks	589	0	0 %
Total picked-up		1750	81	/

exploration seismics and therefore explains the greatest amount of detected seafloor features.

Several factors can be responsible for the complex geometry of oil-supplying structures:

- The shape of the clusters of pockmarks could be related to a structural control. Previous studies demonstrated that those heterometric pockmarks follow the salt-related fault network in the LCB (*Andresen et al., 2012; Jatiault et al., accepted*), which is also evidenced form seafloor scars observed on bathymetric maps (Fig. VI-4e). The deformation is able to control the lateral evolution of fluid outlets and therefore the seafloor seeps geometry by focusing or dispersing the fluid migration routes.
- The uplift and outcrop of older/coarser Miocene/Pliocene sediments related to the salt tectonics seems to influence the location and the distribution of clusters of pockmarks.
- By opposition, conical pockmarks occur in salt minibasins where Quaternary series are composed of unconsolidated, fine-grained and impermeable sediments (*Uenzelmann-Neben*, 1998; *Anka et al.*, 2013). This sediment type can be gently deformed along the fluid ascent path, explaining the conformable geometries of pockmarks in minibasin (Fig. VI-4; Fig. VI-5).
- Previous works in the area show that the BSR outcrops might generate a large amount of clustered pockmarks at roughly 550 m depth (*Gay et al., 2007*). Even if salt diapirs affect the salino-thermobaric conditions, the identification of BSR above salt diapirs in the LCB suggests that the BGHSZ remains within the sedimentary interval at salt protrusion areas (Fig. VI-9). This hypothesis is therefore not applicable in our case study, yet we cannot dismiss the hydrate dissociation as a controlling factor of seafloor seep shapes in the area.
- Assuming that oil frequently escapes from the seafloor, it may be proposed that the development of impermeable barriers, such as carbonate pavements, hydrates nodules, or asphalt mounds, may induce occasional switch between fluid outlets.

• The hummocky morphologies are quite confidently interpreted as asphalt mound deposits, as seen from geochemical analysis and other studies in the area (*Unterseh, 2013; Jones et al., 2014*).

The volumes of expelled oil are similar between submarine mounds and complex shaped pockmarks, revealing that the fluid flow do not prevail on the seafloor geometry. Submarine mounds are likely controlled by the underlying salt diapir geometries, which mostly correspond to restricted topped size needles that focus the migration routes (Fig. VI-4). The distinction between clusters and irregular pockmarks is sometimes difficult. The difference could be associated with the evolution stages of the pockmark formation, one being at the initial stage of the other.

Conversely to the seafloor geometry, the seafloor reflectivity strength appears to be ineffective to distinguish oil seeps with other seafloor structures considering that the slope effect triggers an anomaly for each seafloor depressions (Fig. VI-4). Therefore, the reflectivity strength shall be carefully considered to identify active hydrocarbon seafloor seeps. For instance, very active oil seeps identified in this study were sorted as dormant seep sites in the other studies (Fig. 3 in *Wenau et al., 2014b*) based on reflectivity anomaly strength (*Sager et al., 2003*). Some additional factors to the seepage activity can also modify the seafloor response. For instance the anaerobic oxidation of hydrocarbons consume methane in priority (e.g. *Barnes and Goldberg, 1976; Ivanov et al., 1989; Boetius et al., 2000; Paull and Ussler, 2008; Knittel and Boetius, 2009*). It is therefore possible that carbonate concretion efficiency might drastically lower in oil-dominated seep sites.

#### I.5.1.2. Sub-seafloor expression

The vertical succession of strong reflections (PHAA) are interpreted as pipe-like features (Fig. VI-7 G; *Löseth et al., 2011; Karstens et al., 2015*) and are either related to a vertical stack of authigenic carbonate cementations or pavements (*Hovland et al., 1985; Hovland et al., 2005; Pierre and Fouquet, 2007; Römer et al., 2014*), vein-filled/ hydrate-rich sediments (*Sahling et al., 2008*) or hydrocarbon charged sediments (*Schroot et al., 2003*). The computation of the RMS map successfully provides the inventory of hydrocarbon seep sites.

Depending on the thickness of the amplitude summation interval, the shallow presence of salt  $(n^{\circ}2; Fig. VI-7A)$  might prevent the recognition of fluid migration conduits. We dismissed these affected areas because they do not strictly correspond to fluid-related anomalies even if the context is favourable for thermogenic migration (Fig. VI-7). The geophysical anomalies associated with the outcrops of coarse/highly permeable Miocene-Pliocene series  $(n^{\circ}3; Fig. VI-7A;$ 

*Andersson et al., 2000*)) form privileged migration pathways compared to fine grained/high cap rock efficient Quaternary siltstones.

The negative impedance contrast forming the BSR is likely attributed to the presence of gas instead of shallow oil storage, even if the impedance of heavily biodegraded oils remains under documented and is certainly highly variable depending on the biodegradation degree (*Peters et al., 2007*).

The identification of a second BSR was reported in few cases studies with controversial interpretations (*Posewang et Mienert, 1999; Andreassen et al., 2000; Foucher et al., 2002; Bangs et al., 2005; Popescu et al., 2006; Huuse et al., 2014; Macmahon et al., 2014; Pecher et al., 2014)*. In the LCB, the observation of second cross-cutting and negative polarity reflections exclusively occur; (i) at the crest of salt diapir and (ii) in the conditions of proven thermogenic fluid seepage from the identification of recurrent slicks. The second BSR could be associated with heavier gas components in the condition of abundant thermogenic dysmigration (*Jatiault et al., accepted*). Stacked BSRs 1 and 2 yet involve distinctive hydrocarbon compositions between the two layers, therefore preventing the hypothesis a mix of hydrocarbon components of BSR1 and BSR2 and involving distinctive migration pathways. The 100% methane-related BSR probably follows the lateral path along minibasin stratigraphic interfaces towards the crest of the diapir. Assuming the structure II and H hydrates are stable are greater depths (*Sloan et al., 1990*) and considering the restricted extension of BSR2, the thermogenic BSRs are probably associated with a more vertical advection along salt flanks.

The presence of HIL occurs in two main contexts. The first refers to HIL that are connected with PHAA and outcrop at the location of oil-supplying seafloor features. The second refers to buried HIL in the sedimentary pile. However, in both configurations, HIL spatially corresponds to fluid migration areas. The nature of HIL can be related (i) to the concretion of restricted-size carbonate slabs under moderate hydrocarbon migration (*Borowski et al., 1999*), (ii) hydrate-filled veins or (iii) oil solidification areas and asphalt production due to bacterial degradation processes in sediments (*Spormann et Widdel, 2000; Widdel et Rabus, 2001;Orcutt et al., 2010; Hazen et al., 2016*).

# I.5.2. Multi-scale evaluation of the thermogenic seepage potential

This study combines different observations and techniques to assess the seepage potential in the Lower Congo Basin. This enables identifying key features associated with thermogenic seeps systems. Each individual technique has its own advantages and limitations that are listed and explained below:

- The identification of surface slicks helped identifying prolific oil seep sites and addressing the present-day seepage efficiency. The occurrence rates defined as the ratio between the amount of detected slicks and SAR data coverage range from 5 to 80% (*Jatiault et al., 2017*). Considering that the SAR system efficiency relies upon the weather conditions and that active seep sites are mostly intermittent, the identification of recurrent seeps illustrates the importance of integrating a large volume of SAR data (at least a hundred of overlapping SAR scenes). The main disadvantage of the SAR system is the resolution with pixel spacing up to 75 m and its dependency to the weather conditions (1.5 to 6.5 m.s<sup>-1</sup>; *Jatiault et al., 2017*). On SAR images, miscellaneous look-alikes might induce a decrease of the backscattering values. The natural origin of black streaks remains questionable without a seafloor validation, even when recurrent (*Ryan et al., 2010*). Half of the total amount of oil that reaches the surface of the ocean corresponded to about 20 % of the whole detected slicks inventory and were removed by from the locations of boats and petroleum infrastructures (pipe and platforms) (*Jatiault et al., 2017*)
- Even low intensity hydrocarbon seep sites are detectable with seabed geochemistry using the fluorescence analysis (*Abrams, 2005*). The recognition of asphalt inclusions in cores demonstrates the thermogenic origin of fluid migrations. However, the geochemical coring is composed of discrete measurements demonstrating that even with a dense coreset, the technique potentially misses a large array of active seep sites (*Serié et al., 2016*).
- The presence of asphalt mounds confirms that oil is migrating towards the seafloor and constitutes another proof of an active oil seep site (*Jones et al., 2014*). The presence of asphalt mounds involves that the hydrocarbon dysmigration is sufficiently slow for the oil to be heavily degraded and stored on the seafloor (*Head et al., 2003; Larter et al., 2003; Larter et al., 2006; Peters et al., 2007; Jones et al., 2008*). However, the detection of such restricted-sized objects requires the acquisition of high resolution and/or the use of specific seismic attributes.
- Even if the composition of HIL remains undetermined, the presence of HIL seems to be characteristic of fluid migration areas. Regarding the wide extent of regions affected by HIL and seepage slicks origin uncertainty, the integration of seafloor reaching HIL database can helps to locate active hydrocarbon escapes.
- The computation of RMS amplitude maps enables the identification of vertical high amplitude anomalies probably signing active seep sites over geological timescales. However, the technique is irrelevant to assess the fluid type.

• The identification of a negative polarity BSR also helps to locate focused hydrocarbon fluid migration above salt diapirs (*Taylor et al., 2000; Lucazeau et al., 2004; Serié et al., 2016*). In the conditions of a shallow underlying diapir, the associated thermal anomaly creates an upward displacement of the BSR that is a suitable for the formation of a hydrate-related trap for hydrocarbon migration. However, the survival period of a BSR following the cessation of fluid migration remains under-documented, limiting the appreciation of seepage activity.

The integration of multi-proxy tools is relevant to confirm source rock maturation and to identify thermogenic fluid dysmigration areas. Yet the availability of such toolset implies that case studies were already extensively explored. For underexplored areas, remote sensing analysis provides a first order way to evaluate the seepage potential (Williams and Lawrence. 2002). The integration of current profilers when available (Jatiault et al., submitted), otherwise with regional metocean models helps to constrain probable migration route of oil throughout the water column and to quantify the probable lateral deflection.

# I.5.3. The present day compared to the total potential seeps array

The vertical combination of recurrent sea surface slicks coupled with seafloor evidences of active fluid flow demonstrates that heavy hydrocarbons are currently expelled from the seafloor. The combination of seismic data together with SAR imagery and geochemical features validates the natural origin of seepage slicks (*Serié et al., 2016*). These revealed geophysical features associated with oil seep systems and enables to inventory seafloor structures that are probably responsible for thermogenic escapes, namely potential oil seep sites. Both geochemical and geophysical manifestations show that a large amount of potential seep sites were not associated with recurrent sea surface slicks. The present day seepage activity observed with SAR data corresponds to 40 % of the total array of potential oil seep sites and most (75%) of them are overlain by a seafloor fluid flow feature on the seafloor showing that most were active at the seismic resolution scale.

The active array is concordant with results published in the Gulf of Mexico, where 50% of seafloor amplitude anomalies identified on seismic datasets (*Frye et al., 2008*) correspond to an active oil seep sites at the sea surface (*Garcia-Pineda et al., 2010*).

The SAR detectability thickness threshold possibly prevents the recognition of active oil seeps when the oil flow is low. The average displacement velocity of the sea surface in the LCB is about 17 cm.s<sup>-1</sup> (*Jatiault et al., 2017*) and assuming that slicks are smaller than 150 m wide (2 pixels of Envisat data)

and are at least 0.1  $\mu$ m thick (*de Beukelear et al., 2003*), this suggest that a minimum flow of **0.1 l.h**<sup>-1</sup> is necessary to be detected with the SAR system. Considering that 4380 m<sup>3</sup> are expelled annually from a hundred of seep sites (*Jatiault et al., 2017*), the average expelled volume of a random oil seep is estimated of **5.0 l.h**<sup>-1</sup>, i.e. about 50 times higher than the detectability threshold. Even if some active seep site may have been missed due to the SAR detectability thickness threshold, this factor is unlikely to be responsible for the whole dormant sites array.

Oil seep sites are mostly transient with a widespread range of recurrent periods (*Garcia-Pineda et al., 2010; Garcia-Pineda et al., 2016; Jatiault et al., 2017*). The SAR data collection ranges from 1994 to 2016, which is very brief compared to the geological time scale. The inactive stages of the remaining 60% geophysical anomalies could: (1) exceeds the SAR monitoring period (22 years), or (2) be shorter than SAR acquisition intervals (varying from few hours to few months).

Barely half of seafloor areas characterised by seafloor asphalt presence (seafloor mounds and oil impregnated cores) are currently supplying oil. The fluorescence technique provides a calibrating tip for the °API gravity estimation of the seafloor oil (*Abrams, 2005*) that ranges from 10 to 40. High biodegradation leads to an increase of the oil density in reservoirs (*Head et al., 2003; Peters et al., 2007*) but also in the shallow subsurface (e.g. *Zengler et al., 1999; Wilkes et al., 2001*), which can potentially drops below the density of ocean water (*Larter et al., 2003*). For °API of oil lower than the °API of ocean water (10), asphalts materials remain stored on the seafloor (*Macdonald et al., 2004; Jones et al., 2014*). Asphalt deposits stored on the seafloor were already reported in other provinces without sea surface manifestations (*Keller et al., 2007; Valentine et al., 2010*).

Extreme marine ecosystems are highly reactive to hydrocarbon flow fluctuations with a survival period following seepage extinction in the order of a year (*Hessler et al., 1988; Shanks, 1995; Shank et al., 1998; Mullineaux et al., 2000*). In situ records of photo/video from ROV dives would greatly help to verify the availability of modern chemosynthetic communities and therefore answer the seeping mechanism of the remaining 60% dormant geophysical anomalies (*Charlou et al., 2004, Gay et al., 2006a, Marcon et al., 2014*).

Table VI-4: Synthesis of observations related to the regional assessment of the total seeps array compared to detectable oil seeps. Coupling the features related to oil seep sites with unseeping geophysical anomalies enables the understanding of the present day activity of oil seepage compared to the total seeps array.

			Oil supplying sites (SAR data)	
		Total picked up	Count	Percentage of correlation
Seafloor asphalt mounds areas	HR bathymetry (3 m)	10	5/10	50%
	3D bathymetry (12.5 m)	50	21/50	42 %
Seafloor geochemical	"Probable" and "Sure"	58	22/58	38 %
(<1500 m)	Visual asphalt inclusion	10	4/10	40 %
Geophysical anomalies (n°4 - PHAA)	From 0 to 100 ms TWT	75	30/75	40 %
	<b>Clusters of pockmarks</b>	109	53	<b>49 %</b>
	Irregular pockmarks	175	26	15 %
Seafloor morphotypes	Mounds	17	6	30 %
	Conical shaped pockmarks (isolated and lined-up)	1479	2	<1%

# I.6. Summary and Conclusions

We used several distinctive tools to assess the seepage potential in the Lower Congo Basin. The analysis of sea surface oil manifestations imaged with satellite imagery, coupled with a dense geochemical core-set and seafloor manifestations of oil presence provides an integrated approach of the present day seepage efficiency.

- About 40% of geophysical anomalies are associated with recurrent oil slicks at the sea surface while the remaining 60% at likely related to be dormant seep sites whose periodicity exceeds the 22 years SAR of monitoring, or are shorter than SAR scene acquisition intervals.
- A large amount of low amplitude pipes (582) were identified in salt minibasins from the 12.5 m seismic resolution, they are connected with conical-shaped seafloor pockmarks on the seafloor.
- The geophysical features of thermogenic seep sites previously recognised at the local scale (*Jatiault et al., accepted*) are validated at the regional scale. Thermogenic seeps sites consist of (1) complex shaped features (cluster of irregular pockmarks and seafloor mounds), (2) they are associated with shallows high impedance layers (HIL) on the sub-bottom profiler and (3) with BSR that delimit (4) massive amplitude downward and (5) pipe-like features upwards.
- The recognition of a double BSR is not systematic (~20%) but occurs exclusively under the condition of thermogenic migration. Compared to the unusual worldwide distribution, the double BSR recognised on the Lower Congo Basin could represent a significant distinctive feature of thermogenic fluid migration.

# <u>Section II</u> Interaction entre la surcharge sédimentaire, la tectonique salifère et les émanations naturelles d'hydrocarbures lourds dans le bassin du Bas-Congo

# Introduction à l'article en cours de préparation pour publication

La répartition spatiale des zones de suintements actifs d'hydrocarbures lourds identifiés à partir de l'imagerie spatiale radar (Fig. III-4B) montre des zones où les points de fuite sont concentrés géographiquement, ou alignés (N120°). Le lien entre les périodes d'initiation d'expulsion fluides et les périodes d'accroissement du taux de sédimentation a été suggéré pour des périodes récentes (Miocène) (*Andresen, 2012*) dans le bassin du Bas-Congo. L'objectif de cette **Section II** n'est pas de reproduire les chemins de migrations depuis la mobilisation de la roche mère vers le fond de mer (migration latérale à travers les mini-bassins ou verticales le long des diapirs) car les données disponibles ne le permettraient pas. Nous avons cependant souhaité tester le lien entre les taux de sédimentation récents et la localisation des émanations d'hydrocarbures lourds mis en évidence dans le **Chapitre III**. En particulier, cette section visera à répondre aux questions suivantes :

- La structuration de la marge et notamment la tectonique salifère, pourrait-elle jouer un rôle sur la distribution spatiale des zones d'émanation d'hydrocarbures ?
- La surcharge sédimentaire dans les mini-bassins peut-elle influencer la localisation des expulsions d'hydrocarbures lourds mis en évidence ?

Dans la **Section II** de ce **Chapitre VI**, nous comparerons la localisation des zones de suintements d'hydrocarbures liquides avec celles des diapirs de sel qui peuvent constituer des chemins de migration pour les fluides vers la surface. Nous comparerons également la localisation des sites actifs avec les cartes d'épaisseur sédimentaires récentes (Plio-Quaternaire) dans les mini-bassins. Afin d'étudier la distribution géographique sur un nombre de points de fuites le plus important possible, nous avons procédé à une analyse des réflecteurs sismiques des dépôts récents sur un jeu de données sismiques d'échelle régionale (6200 km<sup>2</sup>). Cette **Section II** présente des résultats de travaux en cours d'avancement et propose des hypothèses conceptuelles pour expliquer ces résultats.

# Interaction between sediment overloading, salt tectonics and seepage activity in the Lower Congo Basin

# Article en cours de préparation pour publication.

**Romain Jatiault**<sup>*a*, *b*\*</sup>, Lies Loncke<sup>*b*</sup>, Damien Dhont<sup>*a*</sup>, Dominique Dubucq<sup>*a*</sup>

a Total SA, Centre Scientifique et Technique Jean Feger (CSTJF), Avenue Larribau, 64018 Pau, France

b University of Perpignan Via Domitia, Centre de Formation et de Recherche sur les Environnements Méditerranéens (CEFREM), UMR 5110, 52 Avenue Paul Alduy, 66100 Perpignan, France

\*Corresponding author at University of Perpignan Via Domitia, Centre de Formation et de Recherche sur les Environnements Méditerranéens (CEFREM), UMR 5110, 52 Avenue Paul Alduy, 66100 Perpignan, France.

E-mail adresses : romain.jatiault@univ-perp.fr, romain.jatiault@total.com (R. Jatiault).

# Résumé

Les sorties naturelles d'huile se localisent principalement à proximité des têtes de diapirs dans le bassin du Bas-Congo, ce qui suggère que les fluides thermogéniques migrent le long des murs de sel et des flancs des diapirs. L'origine des hydrocarbures est estimée par l'analyse de bio-marqueurs qui montrent que les huiles sont issues d'une combinaison de roches mères d'environnements sédimentaire marins et lacustres. L'origine lacustre des hydrocarbures témoigne d'une contribution conséquente des roches mères anté-salifères. En plus d'un contrôle structural par la tectonique salifère, nous montrons que la plupart des sites d'expulsion d'huile sont répartis sur les bords des mini-bassins qui enregistrent les taux d'accumulation les plus élevés. Les processus associés à la tectonique salifère, y compris la croissance des diapirs et le développement de mini-bassins favorisent les émanations actives d'hydrocarbures lourds, en raison de: (1) la création d'un différentiel de pression latéral entre les minibassins et les crêtes de diapir, (2) l'augmentation du plongement des séries le long des têtes de diapirs, (3) l'affleurement des séries miocènes avec des granulométries plus grossières qui servent de drains pour la migration des hydrocarbures jusqu'au fond de mer, (4) la création d'un réseau de drains le long des failles au niveau de la crête des diapirs, (5) l'augmentation de la production d'hydrocarbures dans les mini-bassins par déplacement vertical de la fenêtre à huile lors de l'approfondissement et enfin (6) du retrait basal des évaporites à proximité des diapirs qui pourrait mettre en connexion les roches mères anté-salifères avec les séries post-salifères, permettant ainsi la dysmigration des hydrocarbures vers la surface.

*Mots clés*: Tectonique salifère, Chargement sédimentaire, Mini-bassins, Émanations d'hydrocarbures, Expulsions de fluides, Pockmarks, Bassin du Bas-Congo.

# **II.1. Introduction**

Natural seepage of fluids is known to be strongly controlled by tectonics and structural settings (*Macgregor, 1993; Loncke et al., 2004; Zitter et al., 2006; Dupré et al., 2015*). The salt-related deformation and the associated tectonic stress controls the sealing efficiency creating efficient bypass systems to the seafloor (*Hodgson et al., 1992; Plaza-Faverola et al., 2015*). The interaction between salt tectonics, active seepage and the sedimentation gradient has been evidenced in the Gulf of Mexico (*Ingram et al., 2010*). In the North Sea, the rapid enhancement of the sedimentation rates (35 m.Myr<sup>-1</sup>) leads to the development of a dense pockmark field by increasing the

pore fluid pressure (*Hustoft et al., 2009*). The identification of recurrent seepage slicks with spaceborne SAR (Synthetic Aperture Radar) images enables the identification of oil seeping provinces.

Subsurface geophysical data can be complemented by space-borne seepage analysis to understand the geological settings responsible for oil seeps (*Garcia-Pineda et al., 2010*). In the deep offshore of the Lower Congo Basin, a volume of 4400 m<sup>3</sup> per year is estimated to be released from a hundred of active oil seep sites (*Jatiault et al., 2017*). The area is strongly affected by salt tectonics (*Marton et al., 2000*). In salt provinces, post-salt deposits are concentrated into salt minibasins due to the ongoing salt-related deformation (*Jackson et al., 1994; Vendeville, 2005; Oluboyo et al., 2014*). Understanding the interactions between salt tectonics, sedimentary input and fluid seepage is essential to evaluate the seepage history during the basin evolution (*Cobbold et al., 2009*). The aim of this study is to understand the spatial distribution of oil seep sites in relation with the geological structures of the Lower Congo Basin. In particular, this study aims in understanding the potential relationship between recent sediment overloading and seepage activity.

# II.2. Study area

The Lower Congo Basin (LCB) located offshore Angola (Fig. VI-11a) results from the south Atlantic opening during the Early Cretaceous. The deposition of a thick evaporite layer (Loeme salt; 1000 m thick in average; Marton et al., 2000) during the Aptian delimits two major sedimentary super sequences (Fig. VI-11b): the pre-salt and the post-salt. The pre-salt (Neocomian to Barremian) consists of extensive syn-rift lakes infill, resulting in the deposition of the oil-prone Bucomazi Fm (Burwood, 1999, Cole et al., 2000) deposited under the conditions of a thermal subsidence. The post-salt super-sequence is characterised by three periods of high sedimentary accumulation rates (Fig. VI-11c; Séranne and Anka, 2005). The first corresponds to an aggrading stage during the Albo-Cenomanian that resulted in the development of a thick (~600 m) carbonate-ramp (Pinda Fm). This period was followed by a progressive deepening of the basin, resulting in the deposition of the open-marine clastic Iabe Fm. The second period is associated with the establishment of the paleo-Congo River during the Early Oligocene that brought a large volume of clastic materials into the basin resulted in the development of a large Neogene Congo deep sea fan. The third period is related to the development of a large upwelling system during the Early Quaternary due to the displacement of the Congo River during the Early Pliocene to its current location (Ferry et al., 2004; Savoye et al., 2000), therefore enhancing primary productivity and resulting in the deposition of fine-grained sediments. The three periods of high sedimentation are strongly correlated with the activation/reactivation of salt tectonics in the LCB (Fig. VI-11c; Séranne and Anka, 2005). The Aptian salt acts as a decollemment layer for the post-salt super-sequence (*Marton et al., 2000; Brun and Fort, 2004; Fort et al., 2004*). The diapir configurations are widely varying but correspond to ridges, salt sheets, nappes and stocks following the nomenclature established by *Warren et al. (2016, p.492)*. The present-day diapiric framework can be sub-divided into three main geographic provinces. The northern area is characterised by large salt canopies extending horizontally. The central area is characterised by restricted-sized diapirs mostly squeezed towards the basin and interspersed by minibasins. The southern area is mostly dominated by a succession of linear salt anticlines and walls and separated by intra-slope basins (Fig. VI-11a ; *Guiraud et al., 2010; Oluboyo et al., 2014; Maia et al., 2016*). Oil seep sites are distributed through the diapir province and spatially expand from the Congo River to the north and almost to the Kwanza basin towards the south (Fig. VI-11).



Fig. VI-11: The study area is located in the Congo deep sea fan that is affected by strong Aptian salt tectonics (redrawn from Guiraud et al., 2010). The coloured dots correspond to the locations of recurrent oil seep sites identified with the SAR system (Jatiault et al., 2017). The occurrence rate refers to the amount of oil slicks compared to the SAR scene coverage density. Black continuous lies are 1000 m bathymetric isocontours. b. Regional geological

cross-section redrawn from Lentini et al. (2010). c. Tectono-lithologic framework of the post-rift super-sequence (modified from Séranne and Anka, 2005; Marcano et al., 2013).

# **II.3. Data and Methods**

In this study, we used 3D seismic data acquired with a low resolution (50 m) but with a large spatial extension (Table VI-5; Fig. VI-11a). The available dataset consists of the near-offset trace seismic cube. The seismic horizons were picked using the Sismage software (*Guillon and Keskes, 2004*).

Table VI-5: Characteristics of the 3D seismic data used in this study

Max. Penetration	<b>Dominant</b>	Horizontal	Vertical Resolution	Covered area
(ms TWT)	frequency	Res. (m)	(m)	
8000	~10 <b>-</b> 60 Hz	50	~20m	6200 km <sup>2</sup>

The computation of multiple seismic attributes was based on the interpretation of seismic data and the creation of seismic horizons. First, the computation of the "draining path" consists in an adaptation of hydrographical tools used to study the water circulation at the Earth's surface (see for instance in ArcGIS software). The "draining path" can therefore be defined as a geomorphologic seismic tool computed with Sismage. It considers an upward fluid flow along tilted seismic horizons (Mid-Pliocene in this paper; Fig. VI-12). The streamflow output increases with the catchment area.

The computation of the travel time between seismic horizons and the seafloor, namely isopach maps, provides a means to identify variations of the sediment accumulation rates across the study area. The value of the sediment thickness is extracted from the isopach maps, at the base of each minibasin identified on seismic data (Fig. VI-12).

A long range monitoring of oil seepage (21 years) was performed integrating a satellite SAR collection of 156 scenes and enabled the recognition of a hundred of recurrent oil seep sites distributed along the deep province of the Lower Congo Basin (Fig. VI-11). The amount of expelled oil varies from one site to another with occurrence rates values ranging from 5 to 80 % (*Jatiault et al., 2017*).

A seafloor coring campaign was conducted across the deep province of the LCB, within the transitional/compressive province. The entire dataset consists of a large amount of 488 piston cores operated during several coring campaigns between 1998 and 2010 by TDI Brooks. A subset of 58 cores was interpreted as probably containing hydrocarbon traces (Total Scanning Fluorescence value  $<10^5$ , i.e. 10 times greater than the regional background). The biomarkers analysis (*Peters et al., 2005, 2007*) provides a means to estimate the depositional environment. When available in the core, tricyclic terpanes enables a categorisation of deposit environment

(lacustrine, marine, evaporite, terrigenous) by comparing the ratios of C21T/C23T to C26T/C25T (Abrams and Namimanov, 1997; Peters et al., 2007).



Fig. VI-12: Illustration of the computation of the draining path along a seismic horizon (Mid-Pliocene in this work) and extraction of the area of accumulation in the basal area of minibasins.

# II.4. Regional insights of the oil seeping province

# **II.4.1. Salt tectonics**

The thickness of the post salt interval varies spatially but the average thickness reaches about 5 s TWT in the salt minibasins. The Neogene sedimentary input is concentrated into the minibasins creating a differential sedimentary loading (Fig. VI-13). Successive onlaps of reflectors at the minibasin wedges record the ongoing impact of salt tectonics on the sedimentation (Fig. VI-13). Some diapirs are squeezed due to the polyphased distal translation of post-salt series. This results in the outcrop of Neogene slabs along upslope salt flanks.

Due to vigorous salt tectonics, the sedimentation rates strongly differ between the crest of diapirs and the surrounding minibasins. The sedimentary overburden thicknesses were calculated from the distance between the first arrivals at the seafloor and the positive high amplitude seismic reflections at the top of salt diapirs. A large majority of oil seep sites (~ 95%) are located above shallow salt diapirs. We extracted the thickness intervals between the salt diapirs and the seafloor at the location of recurrent oil seep sites (Fig. VI-14a, b). Because oil seeps sites mostly locate above salt diapirs, the sediment thickness between the diapir and the seafloor remain low (Fig. VI-14c).



Fig. VI-13: Regional cross-section extracted from the 3D seismic cube illustrating the presence of pervasive salt diapirs and nappes that deeply steer the chrono-stratigraphic framework of the post-rift super-sequence. The sedimentation is focused in salt minibasins. See the location of the section in Fig. VI-11a.

The thickness of the sedimentary overburden between the salt diapir and the seafloor ranges from 0 to 950 ms TWT at the location of oil seep sites (Fig. VI-14c). The thickness of the sedimentary overburden is mostly concentrated between 150 and 350 ms and then progressively decreases outwards, i.e. between 150 to 350 ms and between 350 and 950 ms TWT. Regarding the burial of salt diapirs across the margin, prolific oil seep sites are mainly located on top of the shallowest portion of salt diapirs (Fig. VI-14). The diapir configurations mostly consist of an isolated promontory that concentrates the migrating fluids towards a unique detectable oil seep with the SAR data system. However, it may happen that two or three distinct oil seeps are associated with individual diapirs. Active oil seep sites are mostly located along the upslope flanks of salt diapirs (Fig. VI-13).



Fig. VI-14: a. Seicmic section extracted from the 3D exploration seismic and the location of recurrent oil seep sites. b. Line drawing showing the extraction of the thickness interval. c. Distribution of the thickness of the sedimentary overburden (ms TWT) between the top of salt and the seafloor at the location of active oil seep sites.

# II.4.2. Distribution of the sedimentation thickness

In the LCB, depocentres are vertically stacked among minibasins at least since the Eocene/Oligocene transition (Fig. VI-13). We picked noticeable seismic horizons of the Plio-Quaternary succession to

depict the possible variations of the sedimentary deposits in the minibasins and to compare the recent sediment distributions with the location of active oil seep sites. The following stratigraphic boundaries of the Plio-Quaternary succession correspond to noticeable seismic horizons from the seismic data: the Mid-Pliocene (Top Zanclean), Plio-Pleistocene transition (Top Piacenzian) and Mid-Pleistocene (Top Gelasian) (respectively n°1, 2 and 3 in Fig. VI-13 and Fig. VI-14a).

The Mid-Pliocene (Top Zanclean; see yellow to brown transition in Fig. VI-14b) reflector appears to be most seismic horizons to be compared with active oil seeps location. Indeed, this horizon is a compromise because: (i) the Mid-Pliocene reflector is sufficiently well preserved and undeformed compared to the deeper seismic horizons (Oligocene and Miocene), which enable to connect individual minibasins and to generate a sub-continuous map of the sedimentary burial and (ii) the dynamic range of the sediment thickness between diapir areas and minibasins of the Mid-Pliocene is greater compared to younger horizons.

We identified a total of 105 individual minibasins characterised by a local increase of isopach thicknesses (Fig. VI-15a, b). Regionally, the upslope area ( $n^{\circ}1$ ) is characterised by an important sedimentary input since Mid-Pliocene with a thickness interval that ranges from 750 to 1000 ms TWT. A more distal area ( $n^{\circ}2$ ), roughly trending at N120 is also affected by a substantial increase in the sedimentary input in the minibasins (Fig. VI-15b). Among the 44 oil seeps, 35 recurrent oil seeps sites are located in the upslope area ( $n^{\circ}1$ ) and 9 in the distal area ( $n^{\circ}2$ ). There is also a third highly sedimented area ( $n^{\circ}3$ ) that has been identified towards the NW, but this area is not associated with active oil seeps.

The Top Zanclean seismic horizon (Mid-Pliocene) was used to compute the draining path of fluids in the minibasins. Fluid flow directions are mostly converging towards the rim of salt diapirs (Fig. VI-16a). Assuming that fluids are migrating along a long stratigraphic surface, we identified the probable migration pathways of fluids in the recent sedimentary interval. This analysis was based from the integration of the seafloor origin of seeping oil compared to the underlying diapir, minibasins proximity, structural highs in minibasins and draining paths (Fig. VI-16b). Some minibasins edges correspond to the outlet of multiple seep sites. The migration paths might have been individualised into multiple seeps when migrating through the minibasins (Fig. VI-12). A total of 44 recurrent oil seep sites are emanating from 24 individual minibasins (Fig. VI-16b). Considering a total of 105 minibasins, only a quarter is associated with a recurrent oil seep sites. The two provinces showing an increase in the sedimentary supply embrace 85 % of active oil seeps sites.



Fig. VI-15: a. Map of the salt diapirs superimposed with the locations of oil seep sites. b. Map of the isopach between the reflector transitions between the Mid-Pliocene (Top Zanclean; 3.6 Ma) to the seafloor. An amount of 44 recurrent oil seep sites and 105 salt minibasins were indexed in the study area. See the location of available data in Fig. VI-11.a.



Fig. VI-16: a. Map of the draining paths in the minibasins computed from the Mid-Pliocene (Top Zanclean) horizon. White areas correspond to non-draining paths, blue to low accumulation flow (restricted-size catchment area) and red to large catchment areas or junction areas. b. Superimposition map of the salt diapirs, oil seep sites and sediment thickness accumulation since the Mid-Pliocene (Top Zanclean). Recurrent oil seep sites are displayed as coloured hexagons. The colours refer to the sediment interval in the proximal minibasins. Black arrows correspond to the possible draining paths and migration routes.

In each minibasin, we extracted the values of the sediment interval between the Mid-Pliocene (Top Zanclean) to the seafloor. We categorise the minibasins into two categories, namely "oil-seeping" and "unseeping" minibasins (Fig. VI-17). The distribution of the sedimentary thickness of unseeping basins ranges between 100 to 1000 ms TWT with a maximum density focused around 500 ms TWT. The distribution of the sedimentary thicknesses in oil seeping minibasins ranges between 100 to 1000 ms TWT with a substantial increase in density focused around 700 ms TWT. The Mid-Pliocene thickness interval is greater in average in oil-seeping minibasins than in unseeping minibasins (Fig. VI-17).



Fig. VI-17: Distribution of the density of the sedimentary thickness interval in minibasins between the Mid-Pliocene (Top Zanclean) to the seafloor for unseeping (blue) and oilseeping minibasins. The analysis was based on a population of 82 unseeping and 23 oil-seeping minibasins.

# II.4.3. Origin of the oil on the seafloor

Among the 58 piston cores identified as "probable" or "sure" thermogenic seeps, the origin of the oil has been estimated using tricyclic terpanes biomarkers (*C21T/C23T* and *C26T/C25T* ratios) from 38 piston cores. The marine origin was suggested for 90 % of the cores (34/38). A combination of both marine and lacustrine source rock was suggested for 35 % of the cores (13/38) whereas lacustrine source rocks have been identified for 2 cores. The Aptian evaporites are intercalated with organic rich beds (*Turner, 1995*) was evidenced as the potential source rock of the oil for two cores. Only two cores are associated with a terrigenous organic matter origin. The cores located at the vertical projection of recurrent oil seeps detected with the SAR system are mostly associated with a combination of early Cretaceous lacustrine (Barremian "**Bucomazi**"; Pre-salt) and restricted marine

source rocks (probably "**Iabe**"; Post-salt). The Early Cretaceous (**Iabe**) and the Tertiary source rocks (**Landana**, **Malembo**) are indistinguishable using biomarkers analysis because they were both deposited in marine environments.

# **II.5. Discussion**

# II.5.1. Control of the sedimentary input on seep sites location?

The understanding of the history of hydrocarbon fluid flows has great implications for petroleum exploration (*Anka et al., 2013*). Depending on considered timescales, miscellaneous triggering mechanisms are proposed for the initiation of hydrocarbon seeps.

At the geological timescales, a straight relationship between active tectonics and occurrence of seepage was demonstrated in worldwide petroleum provinces (*Macgregor, 1993*). In the Mediterranean Sea, evaporite series act as efficient seals while salt-related faulting provides routes for the dysmigration of fluids towards the surface (*Loncke et al., 2004*). Several authors proposed a link between the sedimentation rate and salt tectonic proficiency (*Rowan and Weimer 1998; Brun and Fort 2004; Marton et al., 2004, Gaullier and Vendeville, 2005; Vendeville, 2005; Loncke et al., 2006; Oluboyo et al., 2014*). In the Gulf of Mexico, the basal salt withdrawal triggers the sagging of minibasins which accommodates further sedimentation (*McBride et al., 1993*).

At short timescales, a rapid increase of the sedimentation rate was interpreted as a triggering mechanism for the development of a pockmark field in the North Sea (*Hustoft et al., 2009*). In the LCB, seafloor pockmark nucleation associated with shallow subsurface polygonal faults network were interpreted as the effect of drastic pore water expulsion under the condition of rapid sedimentation (*Andresen et al., 2011*).

Over larger timescales, the Late Miocene seismic intervals revealed a high density of fluid flow features (pockmarks) on the seismic data in the LCB (*Andresen, 2012*). However, this period of fluid seepage initiation is not correlated with the long range variations of the hydrostatic pressure (*Haq et al., 1987; Andresen, 2012*), revealing that the effects of global climate events was not a major factor controlling the expulsion of fluids in the area.

The relationships between (i) salt tectonics and seeping fluids (*Macgregor, 1993*), (ii) salt tectonics and sedimentation and (iii) sedimentation and fluid seeps were exposed in various cases studies. However, the relation involving salt tectonics, sedimentation and active fluid seepage remains yet
undemonstrated. In our study area, the comparison between "oil-seeping" and "unseeping" minibasins shows that, in average, the sedimentary input is greater since the Mid-Pliocene in seeping minibasins (Fig. VI-16). This suggests a direct relationship between seeping fluids, salt tectonics and sedimentation, which can be explained from the following concepts (Fig. VI-18):

- The sedimentary loading triggers a lithostatic overpressure through the sedimentary pile (*Cobbold et al., 2009*). The differential loading between diapir areas and minibasins leads to a lateral transfer of pressure in minibasins that can be accommodated by fluids circulation and subsequent release (Fig. VI-16c, d; n°1 Fig. VI-18).
- Both (i) the sagging of the central areas of minibasins due to the salt withdrawal and (ii) the uplift of sediment at minibasin edges progressively increase the slope angle in minibasin series (n°2 Fig. VI-18). The subsidence of minibasins is confirmed from the observation of concentric highs located at the rim of salt diapirs (raised rim; *Jackson et al., 1994; Hudec and Jackson 2009; Warren, 2016*).
- In the conditions of a lateral translation of post salt sedimentary series, the tilting of minibasins results in uplifted slabs along the upslope flanks of the salt (*Brun and Fort, 2004*). In our study area, most of extruded slabs at the diapir rims are associated with Miocene to Early Pliocene outcrops. The upper Miocene series are characterised by a sand-rich interval that represents high potential and privileged stratigraphic pathways (*Anderson et al., 2000; Serié et al., 2016*). In this setting, potential high porosity drains may reach the seafloor along salt diapirs, therefore facilitating the release of hydrocarbon (n°3 Fig. VI-18).
- The enhancement of near-surface faulting is demonstrated to control the location of thermogenic fluid seeps above salt diapirs (*Jatiault et al., accepted*). Active salt tectonics may therefore trigger a strong deformation and the formation of conduits for the release of fluids towards the seafloor (*Loncke et al., 2004; Zitter et al., 2006;* n°4 Fig. VI-18).
- The sagging of minibasins due to the salt withdrawal leads to an increase of the pressure and of the temperature of potential source rocks in minibasins. It is well known that the increase in the pressure and temperature enhances hydrocarbon maturation and production (n°5 Fig. VI-18). Therefore, it is possible that Tertiary source rocks, that are considered immature in general, might be locally mature in over-sedimented minibasins (Landana source rock for instance).
- The basal salt withdrawal possibly connects the pre-salt oil prone **Bucomazi Fm** source rock with post-salt series, which therefore provides possible migration routes for the pre-salt migrating fluids (n°6 Fig. VI-18).



Fig. VI-18: Interpretative scheme of the effects of active salt tectonics coupled with sediment overloading in minibasins on the location of active oil seep sites.

However, the correlation between the sediment distribution and seepage activity has to be considered carefully because additional factors might induce strong limitations:

- Apart from the sedimentation rate, the source rock availability/maturity certainly controls the location of the thermogenic seep sites. Even if the spatial distribution of the Bucomazi Fm remains under-documented, its lacustrine syn-rift nature suggest that this formation is subjected to a high thickness and lateral variability (*Brownfield and Charpentier, 2006*).
- The sediment thickness reaches very high values (up to 800 ms TWT since the Mid-Pliocene) in the more distal minibasins (n°3 in Fig. VI-16b) where no oil seeps were detected.
- The comparison of the sedimentation rates, salt tectonics and location of active oil seepage was performed for a specific period (Mid-Pliocene). Even if minibasin depocentres consist of a vertical succession over time, the relationship still needs to be validated for longer and shorter timescales.
- This relationship remains invalidated in the southern area where salt-related deformation is moderate (successive salt walls; *Guevara et al., 2010; Oluboyo et al., 2014*), compared to this study area (severe salt tectonics; diapirism). The deformation style probably controls sealing efficiency (*Hodgson et al., 1992*): (i) salt diapirs and canopies that deeply deform and thin the overburden create efficient migration systems, (ii) salt ridges, rollers, pillows and walls that induce a moderate deformation can potentially create efficient sealing systems.

#### **II.5.2.** Perspectives: Implications for the evaluation of petroleum systems

In the LCB, fluid flow features such as pockmarks are correlated with the basin history, hence providing tips of calibration to understand the seepage history in relation to the basin evolution (*Andresen, 2012*). The increase of the sedimentary input is correlated with a high density of fluid flow features in the Miocene to Oligocene seismic interval in the Danish Sea (*Andresen, 2012*). This relationship was also suggested for the Lower Congo Basin for the Miocene. The regional characterisation of the sedimentation rate using a large-scale geophysical dataset shows that, high sedimentation rates in salt minibasins are correlated to the location of prolific oil seeps sites detectable with the SAR resolution system.

The Mid-Pliocene (Top Zanclean; 3.6 My) correspond to a very recent period compared to the post-Rift super-sequence, yet it corresponds to period characterised by high sedimentation rates and high deformation:

- The salt tectonics enhanced since the Eocene/Oligocene transition in response to deposition of prograding sequence (*Séranne and Anka, 2005*).
- The sedimentation rate reaches a maximum during the Early Quaternary since the basin history (100m.My<sup>-1</sup>; *Marcano et al., 2013*) due the initiation of an upwelling system and an increase of the primary productivity (*Berger et al., 1998; Uenzelmann-Neben, 1998*).

The mature source rocks supposed to be at the origin of the oil at the sea surface mostly corresponds to the lacustrine **Bucomazi** and open-sea marine **Iabe** formations (*Burwood, 1999; Brownfield and Charpentier, 2006*). This is confirmed from geochemical coring showing that the expelled oil mostly corresponds to a mix of lacustrine and marine source rocks, suggesting that both **Bocumazi** and **Iabe** are contributing to the oil found act the sea surface with a prevalence of **Iabe Fm**.

The younger Tertiary marine source rocks were reported immature, yet the maturity evaluations might have been biased due to strong retardations of the vitrinite structure modification in the area (*Schito et al., 2016*). The Tertiary source rocks (Landana and Malembo Formations) were also punctually reported to be mature within depocentres in the hanging-wall of lystric faults in the extensional domain (Landana and Malembo formations; *Anka et al., 2013*) even if hydrocarbon releases remain unreported for Tertiary source rocks. The contribution of the Tertiary source rocks to present-day hydrocarbon seepage shall not be dismissed in the minibasins characterised by high sedimentation rates, assuming that the Early Cretaceous and the Tertiary source rocks are indistinguishable using biomarkers analysis. The integration of basin modelling techniques would greatly help to verify the thermal maturation hypothesis of Tertiary source rocks in seeping minibasins and to understand hydrocarbon seepage history.

## II.6. Conclusions

In this paper, we combined the regional inventory of active oil seep sites, locations of salt diapirs and Plio-Quaternary sedimentation interval. This enabled us to reveal a strong connection between these different parameters and to propose the following conclusions:

- The study shows that the location of active oil seep sites correspond to the crest of diapirs, in the areas affected by strong salt-related deformation.
- Lateral variations of sediment thickness occur between diapir areas and minibasins. The sedimentary input is highly variable from a minibasin to another. Active oil seeps that were detected on SAR images are gathered within two main provinces characterised by a relatively higher accumulation rate in average.
- The effect of strong sedimentary overloading could trigger a ensemble of possible mechanisms that potentially enhance the seepage activity: (1) increase of differential pressure between diapir and minibasin areas triggering fluid migration; (2) increase of the dip angle along salt flanks; (3) Outcrop of stratigraphic permeable migration conduits providing efficient routes towards the seafloor; (4) Creation of a bypass system along the salt-related fault network; (5) possible increase of thermal maturity in minibasins and (6) connection of pre-salt source rocks with Tertiary series, potentially due to the withdrawal of the basal salt.



# Conclusions générales

les et

perspectives

## I. Rappel des objectifs et motivations

De nombreuses marges continentales ont servi de chantiers d'étude pour la reconnaissance des zones de sorties actives de fluides. L'abondance des sites associés aux émanations de méthane biogénique a permis de développer une vision étoffée du mécanisme de fonctionnement de ces systèmes, ce qui n'est pas le cas pour des sites d'échappement d'hydrocarbures lourds, moins spécifiquement étudiés. La problématique de la thèse était de comprendre le fonctionnement de ces sorties naturelles d'hydrocarbures lourds depuis les bassins sédimentaires vers les réservoirs hydro/atmosphériques. Ces problèmes cristallisent de nombreux intérêts :

- D'un point de vue économique, l'identification de zones de fuites d'hydrocarbures lourds permet d'identifier des systèmes pétroliers matures, mais également de localiser les zones potentiellement affectées par des aléas géologiques en fond de mer (surpressions notamment);
- D'un point de vue des aléas géologiques, il est important d'identifier les particularités de ces systèmes à huile afin d'orienter les implantations des infrastructures en domaine sous-marins.
- D'un point de vue biologique, ces zones constituent des « oasis de vie », siège d'une forte diversité biologique qu'il apparaît important de localiser, répertorier et étudier ;
- D'un point de vue écologique, la compréhension du mécanisme d'émanation naturelle d'hydrocarbures lourds permet d'orienter les réponses des cellules de crise lors des marées noires ;
- D'un point de vue sociétal, les fuites d'hydrocarbures lourds s'accompagnent de l'expulsion d'une grande quantité d'éléments à effet de serre dans l'océan et/ou l'atmosphère qu'il est primordial de quantifier dans un contexte de changement climatique.

Pour cela, nous avons concentré notre étude dans le bassin profond du Bas-Congo. Elle constitue une des premières analyses intégrées du processus de fuites naturelles d'hydrocarbures lourds depuis les réservoirs sédimentaires vers les réservoirs hydro/atmosphériques.

## II. Vers une meilleure compréhension des sorties naturelles <u>d'hydrocarbures lourds</u>

L'objectif principal de la thèse visait à relier les zones de présence d'hydrocarbures lourds à la surface de la mer avec les structures fond de mer. Pour l'atteindre, nous avons suivi une **approche intégrée**, **multiéchelle** qui nécessite d'utiliser des données issues de quatre domaines: l'analyse des images radar à la surface de la mer tirées des **techniques spatiales**, l'analyse des mesures de courant issues des **techniques océanographiques**, la collecte des teneurs en hydrocarbures dans les carottes sédimentaires à partir d'analyse géochimique et des données d'imagerie de fond de mer et de subsurface dérivées des techniques de **géophysique marine**. L'intégration combinée de ces techniques a permis d'obtenir une vision intégrée du système d'échappements d'hydrocarbures lourds vers l'hydro/atmosphère dans le bassin profond du Bas-Congo (Fig. VII-1).

L'imagerie spatiale a mis en évidence un nombre conséquent de nappes naturelles d'hydrocarbures liquides à la surface de mer dans le basin du Bas-Congo. Dans le cas de déversements naturels, la superposition de la cartographie des séries temporelles d'images montre que les nappes divergent à partir d'une zone centrale en fonction des vents et des courants, qui correspond à la zone d'impact en surface mer. Un total de **102 sites** de déversements a été identifié dans la province compressive du bassin du Bas-Congo libérant un volume d'hydrocarbures lourds estimé à **4400 m<sup>3</sup> par an**. Ce volume est très nettement supérieur aux volumes envisagés et classe le bassin du Bas-Congo parmi les provinces mondiales émanant les plus grands volumes d'hydrocarbures liquides.

Lors du monitoring par imagerie radar haute fréquence (1 image toutes les 12 heures pendant 12 jours), les conditions de détection étaient idéales, ce qui permet de démontrer que l'absence de détection de nappes d'hydrocarbures naturels d'une image sur l'autre est plutôt liée à un **mécanisme de fuite intermittent** sur ce cycle de surveillance. Même si le monitoring par imagerie radar est discret dans le temps, l'analyse montre que cette intermittence s'exprime de manière très **hétérogène** entre les différents points d'émission avec des périodes d'activité et d'inactivité, mais aussi des variations dans les volumes de fluides expulsés d'un site à l'autre. L'hypothèse d'un facteur régional contrôlant les émanations d'hydrocarbures ne peut donc être validée sur cette période d'observation avec une fréquence d'échantillonnage des prises de vue radar trop faible. La proportion des hydrocarbures liquides et gazeux expulsés depuis le fond de mer qui atteint la surface de la mer demeure aussi mal-contrainte et ne peut être quantifiée avec le seul outil satellitaire.

La dispersion spatiale des zones d'impact des nappes d'hydrocarbures à la surface de l'eau demeure relativement faible en étant restreinte à un **rayon maximum de 2.5 km**, en comparaison à la profondeur d'eau qui varie entre 1200 et 2700 m. La vitesse de remontée du panache d'hydrocarbures est estimée **entre 3 et 8 cm.s<sup>-1</sup>**. Cependant les changements de phase, de densité et de volume du

panache de fluides peuvent induire des variations de la vitesse d'ascension, qu'il serait nécessaire de quantifier par une surveillance acoustique par exemple. Il n'existe pas de loi linéaire entre la profondeur d'eau et la déflection horizontale du panache, l'essentiel de la déflection se produisant dans la tranche d'eau la **plus superficielle** jusqu'à 250 m de profondeur.

La partie compressive du bassin concentre l'intégralité des expulsions de pétrole vers la surface. Elle est caractérisée par une forte tectonique salifère et de nombreux diapirs. Les exutoires en fond de mer se localisent alors sur la périphérie des dômes de sel. Ils se concentrent en particulier au niveau des bordures des mini-bassins présentant les taux de sédimentation les plus importants. Les flancs salifères correspondent à des discontinuités lithologiques qui sont utilisés par les fluides pour migrer vers le fond de mer. Dans notre zone d'étude couvrant une superficie 15 000 km<sup>2</sup> et parmi les 1700 objets visibles en fond de mer pouvant être associés à des sorties de fluides d'après la littérature, les seules structures étant associées à des sites actifs d'expulsion d'hydrocarbures lourds correspondent à des pockmarks irréguliers et agglutinés en chapelets ainsi que des monts sous-marins situés en tête de diapir. Par opposition, aucun site d'échappement de pétrole n'est associé aux pockmarks classiques de forme conique représentant 90% des structures visibles en fond de mer. Ces derniers pourraient alors être liés à de l'expulsion d'eau notamment dans les zones de pression le long des axes synclinaux. Les zones périphériques aux structures d'émission d'hydrocarbures lourds présentent de nombreux monticules métriques, interprétés comme étant associés à un stockage d'hydrocarbures lourds et biodégradés en fond de mer, probablement correspondant à des monts d'asphaltes.

Les zones de fuites d'hydrocarbures lourds sont caractérisées par des signatures géophysiques associées à des anomalies d'amplitudes sous le fond de mer. Le BSR délimite deux zones : (i) une zone inférieure, dont l'épaisseur est d'environ 200 ms d'épaisseur, est affectée par de fortes amplitudes massives et (ii) une zone supérieure dont l'épaisseur est d'environ 80 ms où les fortes amplitudes se distribuent sous la forme d'anomalies verticales, de type "pipe". Les données géophysiques haute résolution des sondeurs de sédiments de campagnes AUV imagent un corps de forte impédance qui atteint progressivement le fond de mer au niveau des pockmarks. Ces corps fortement réflectifs pourraient correspondre à des carbonates authigènes ou à un stockage d'asphaltes proches du fond de mer dont seul le prélèvement in-situ pourrait déterminer la nature.

La centaine de zones de fuites récurrentes d'hydrocarbures repérées à partir des images radar coïncident systématiquement avec les différentes anomalies géophysiques identifiées. Cependant **environ 60%** des sites présentant toutes les caractéristiques géophysiques d'activité ne sont pas associés à des fuites actuelles d'hydrocarbures lourds qui pourraient être repérées à la surface de l'eau par l'imagerie spatiale. Ces sites pourraient correspondre à des sites fossiles, mais également à des sites dont les rythmicités ne sont pas compatibles avec la période où les fréquences d'observations radar.



Fig. VII-1: (page précédente) Bloc diagramme synthétique présentant les méthodes utilisées et les principaux résultats obtenus concernant la caractérisation des migrations d'hydrocarbures lourds dans le bassin du Bas-Congo.

## III. Faits marquants

De façon plus synthétique, les questions scientifiques posées se sont articulées autour de trois axes - surface mer, colonne d'eau et fond de mer - pour lesquelles des réponses ont pu être apportées.

#### Sur la distribution géographique des zones de sorties fluides hydrocarbonés

• Quel est le volume d'hydrocarbures liquides atteignant la surface de la mer dans le bassin du Bas-Congo ?

Un nombre conséquent de nappes d'hydrocarbures liquides a été détecté à la surface de la mer par l'analyse de série temporelle d'images satellites sur plus de 21 ans. Une centaine de sites d'émission se distribuent dans la province compressive de la marge.

• Quelles sont les périodes d'activité/d'inactivité des zones de suintement d'hydrocarbures lourds ?

Le couplage de deux périodes de surveillance satellitaire montre que le mécanisme de fuite est intermittent avec des périodes très différentes d'un site à l'autre. Ainsi, certains sites sont actifs depuis le début de la période de surveillance (année 1994) et pour d'autres, les observations des périodes d'activité sont limitées à seulement quelques jours.

• Quel est le volume d'hydrocarbures liquides atteignant la surface de la mer dans le bassin du Bas-Congo ?

Un volume total de 4400 m<sup>3</sup> par an d'hydrocarbures liquides est estimé avoir été expulsé par les 102 sites de déversement actifs à travers le bassin depuis le début de la période de surveillance, soit 21 ans.

#### Sur la dérive du panache dans la colonne d'eau

• Quelle est la trajectoire des nappes d'hydrocarbures dans la colonne d'eau entre les points d'émission en fond de mer et leur point d'impact à la surface de la mer ?

Les zones d'apparition d'hydrocarbures à la surface de l'eau sont restreintes à des cercles de 2.5 km de rayon. Les données courantométriques ont permis de reproduire la trajectoire du fluide dans la tranche d'eau qui subit peu de déflection horizontale depuis son point d'émission.

• Quel sont les gammes de vitesse de remontée du panache de fluide ?

Les données courantométriques ont permis de contraindre la vitesse de remontée des hydrocarbures entre 3 et 8 cm.s<sup>-1</sup>.

• Les lois de déflections linéaires en fonction de la profondeur d'eau s'appliquent-elles à l'ensemble des marges continentales ?

Les conditions hydrodynamiques du bassin montrent que les courants profonds sont contraires aux courants plus superficiels, ce qui induit des directions de déflection opposées et donc une résultante totale relativement faible. Les lois de déflection linéaires ne répondent pas à la complexité des conditions hydrodynamiques du bassin étudié.

#### Sur la caractérisation des structures en fond de mer

# • Existe-t-il des critères géophysiques caractérisant les zones de suintements d'hydrocarbures lourds ?

Les zones de sorties actives d'hydrocarbures sont caractérisées par des morphologies particulières en fond de mer. Ce sont des dépressions, ou chapelets de dépressions regroupées, formant des structures irrégulières sur le fond de mer.

En périphérie des zones dépressionnaires, de nombreux monticules interprétés comme étant associés à un stockage d'asphaltes. Leur présence montrent que le flux est y probablement plus dispersif, ce qui suggère une diminution du flux d'hydrocarbures latéralement.

La subsurface est affectée par un double réflecteur sismique à polarité négative. Le premier est interprété comme la signature géophysique d'un niveau riche en gaz sous un niveau à hydrates, correspondant à la base de stabilité des hydrates de méthane. Le second pourrait correspondre à la base de stabilité d'hydrates issus d'un mélange de gaz plus lourds. La signature géophysique associée à la base de stabilité des hydrates (BSR) délimite un domaine associé à de fortes amplitudes, massives sous le BSR et interprétées (i) comme un stockage de gaz ou (ii) comme des carbonates authigènes associés à la présence de sel, donc spécifiques de la province du Bas-Congo. Au-dessus du BSR, les fortes amplitudes se distribuent en chapelets de "pipe" de forte amplitude reliées aux dépressions fond de mer. Les deux BSR sont localement surélevés au droit des sorties actives d'hydrocarbures.

# • Existe-t-il des configurations géologiques, où des éléments internes à la marge, favorisant ces émanations d'hydrocarbures lourds ?

La tectonique salifère, de par son action sur la surcharge sédimentaire contrôle les zones de fuites d'hydrocarbures lourds dans le bassin du Bas-Congo, en facilitant notamment le développement de drains (failles, remontée de séries poreuses et perméables). Les mini-bassins associés à des émanations naturelles d'hydrocarbures lourds présentent les taux de sédimentation les plus importants. Il semble donc que la surcharge sédimentaire, en lien avec la tectonique salifère influe sur la distribution des zones d'émanations d'hydrocarbures.

# • Combien de sites pouvant potentiellement être associé à des émanations d'hydrocarbures lourds sont actuellement actifs ?

La combinaison des données géophysiques, géochimiques et de l'imagerie spatiale montre qu'environ 40 % des sites potentiels sont actifs dans le bassin du Bas-Congo.

## IV. Pistes de recherche

#### **IV.1. Impact environnemental**

#### IV.1.1. Quantification à l'échelle mondiale

Les premières quantifications du volume mondial d'hydrocarbures expulsé en mer ont déjà plus de quatre décennies (*Wilson et al., 1973*) et les techniques qui ont été utilisées ont bien évolué depuis. L'imagerie spatiale permet notamment d'identifier les nappes naturelles d'hydrocarbures, marqueurs d'expulsion fluides en fond de mer. Elle permet aussi de montrer l'intermittence des fuites, qui semble être un mode de fonctionnement globalisé (*Garcia-Pineda et al., 2015*). Lors du processus amont d'exploration pétrolière, l'évaluation des zones de fuites d'hydrocarbures liquides dans le domaine marin est systématique. Une analyse à l'échelle globale de ce phénomène permettrait de réévaluer le

volume d'hydrocarbures liquides expulsés naturellement et par exemple de les confronter aux déversements accidentels liés aux activités humaines.

#### IV.1.2. Dégradation des hydrocarbures par méthanogénèse

L'imagerie satellitaire contribue dans une certaine mesure (en émettant des hypothèses sur l'épaisseur de la nappe) à estimer le volume de pétrole à la surface de la mer. Cependant, l'imagerie spatiale ne permet pas pour le moment d'imager les panaches de gaz pouvant être relâchés simultanément aux hydrocarbures liquides dans l'hydro-atmosphère et qui peuvent pourtant représenter des volumes considérables (5 volumes de CH<sub>4</sub> pour un volume de pétrole dans le bassin de Santa Barbara; Valentine et al., 2010). Durant le processus de dysmigration des hydrocarbures, ces derniers subissent des interactions chimiques et bactériologiques avec les organismes présents dans les sédiments. Ces interactions ont des effets notoires sur la qualité des hydrocarbures, car ces bactéries vont consommer une partie des hydrocarbures lourds. Une des réactions principales impliquant ces interactions est la dégradation des hydrocarbures par méthanogénèse (Fig. VII-2a ; Spormann et Widdel, 2000; Widdel et Rabus, 2001; Jones et al., 2008) qui peut générer une forte quantité de méthane, correspondant à un gaz à effet de serre important à cause de sa forte puissance radiative. La réaction se traduit par une consommation des hydrocarbures lourds et des molécules d'eau interstitielles pour produire du méthane, du dioxyde de carbone, du dihydrogène et de la biomasse. La mise en place de ce processus fait appel à certaines conditions qui sont toutes respectées dans les environnements étudiés :

- Disponibilité de molécules d'eau : celles-ci sont présentes en grande quantité au niveau la subsurface (première centaine de mètres) au passage des fluides lors de leur migration vers le fond de mer.
- La présence des nutriments (*K*, *N*, *P*,...) dans les sédiments est issue de la diagenèse de minéraux, elle constitue le facteur limitant la dégradation des hydrocarbures lourds (*Head et al., 2003*, *Larter et al., 2003*).
- Des températures comprises entre 20 et 50 °C, qui constituent des environnements privilégiés pour l'activité bactérienne et la dégradation des hydrocarbures, que ce soit en surface mer ou dans les sédiments marins (*Head et al., 2003, Larter et al., 2003; Jones et al., 2008; Das et Chandran, 2011; Cheng et al., 2014*). Le gradient géothermique calculé à partir de la position de BSR dans cette étude montre que les températures sont légèrement supérieures à 20 °C quelques dizaines de mètres sous les sites de fuite d'hydrocarbures lourds en fond de mer.

La salinité de l'eau de mer est également un paramètre important à considérer, car elle diminue la température maximum à partir de laquelle la biodégradation devient possible (*Grassia et al., 1996*). La présence d'évaporites fournit une quantité de sels potassiques probablement suffisante pour déclencher la réaction à faible température.

Les têtes de diapirs salifères du bassin du Bas-Congo semblent donc constituer un environnement privilégié favorisant la dégradation des hydrocarbures. La quantité de méthane produite augmente proportionnellement avec le niveau de biodégradation. Les valeurs reportées sont comprises entre 2.8 et 76.10<sup>-6</sup> mol de méthane par jour par gramme d'huile dégradée (*Larter et al., 2003; Berdugo-Clavijo et Gieg, 2014; Cheng et al., 2014; Cai et al., 2015*) avec une valeur maximale de 2000 m<sup>3</sup> de méthane produit par m<sup>3</sup> de pétrole dégradé lorsque le biodégradation est complète (Fig. VII-2b).



Fig. VII-2: Présentation des différents mécanismes et des gaz générés en lien avec des fuites d'hydrocarbures lourds. a. Dégradation des hydrocarbures par méthanogénèse. Réaction de biodégradation des huiles dans les milieux sédimentaires saturés en eau et sans présence de sulfates abondants (e.g. Spormann et Widdel, 2000; Widdel et Rabus, 2001; Jones et al., 2008). b. Graphique montrant l'évolution de la proportion de pétrole résiduel au cours de la biodégradation, en comparaison à la production de méthane (redessiné d'après Peters et al., 2007). c. Modèle décrivant les observations d'aérosols organiques dans la direction du vent, après un scénario de fuite d'hydrocarbures (Deep Water Horizon, modifié d'après DeGouw et al., 2011).

La quantification du volume de gaz généré lors des fuites d'hydrocarbures liquides n'a pas encore été abordée et doit nécessairement être prise en compte dans les bilans de carbone. De nombreux paramètres demeurent cependant difficilement quantifiables avec les données actuellement disponibles, tel que le degré de biodégradation. Un prélèvement *in-situ* de composants hydrocarbonés permettrait alors d'estimer le stade de dégradation et probablement de mieux contraindre le volume de méthane relâché. L'effet de protection des bulles de gaz par une peau d'hydrocarbures liquides faciliterait l'exportation d'un volume significatif de gaz à effet de serre vers l'atmosphère, des mesures de concentration en hydrocarbures à la surface de la mer permettraient de mieux connaître cet effet et de quantifier le volume de gaz atteignant la surface de la mer.

#### IV.1.3. Production d'aérosols

Lors du déversement accidentel d'hydrocarbures du "*Deepwater Horizons Oil Spill*" dans le Golfe du Mexique, le volume conséquent d'aérosols identifié dans l'air a été interprété comme associé à la dégradation des huiles à la surface de la mer (*De Gouw et al., 2011*). Les aérosols sont de puissants gaz à effet de serre qui sont en particulier responsables de la formation du trou dans la couche d'ozone ( $O_3$ ). La quantité de pétrole émis lors de *Deep Water Horizon* est estimée à 2.03.10<sup>6</sup> kg par jour et le flux d'aérosols associé est estimé à 80 000 kg par jour.

Aucune étude ne s'est portée sur les quantités d'aérosols associés aux suintements naturels. L'hypothèse même de formation d'aérosols reste à être confirmée dans ce cas de figure, car le volume de 4400 m<sup>3</sup> par an ( $\sim 10^4$  kg par jour) estimé dans notre travail, demeure très largement inférieur à celui des déversements accidentels comme pour le DWH. Certains facteurs vont limiter la production d'aérosols dans le cas de suintements naturels, comme c'est le cas par exemple du temps de résidence ou du débit qui resteront plus faibles. Des acquisitions aéroportées permettraient alors de confirmer/ infirmer la présence d'aérosols au-dessus des points de fuites récurrentes.

# IV.2. Durée de vie et périodicité d'un site actif d'émanations d'hydrocarbures

#### IV.2.1. A court terme : Monitoring spatial à partir de données Sentinel-1

Les agences spatiales (ESA, NASA, JAXA,...) promeuvent actuellement la gratuité des images satellitaires destinées à la surveillance de l'environnement au grand public, ce qui génère un volume de données disponibles sans cesse grandissant. Depuis le début la mission Sentinel et en particulier avec le lancement des satellites radar Sentinel-1A en avril 2014 et Sentinel-1B en avril 2016, la période de revisite n'est plus que de 6 jours pour la même orbite. Ces données acquises régulièrement peuvent contribuer à surveiller les zones d'émanantion d'hydrocarbures sur les périodes courtes, permettant notamment d'étudier la variation temporelle du flux d'hydrocarbures et de tenter de la corréler avec d'éventuelles périodes saisonnières ou astronomiques (**Chapitre III**), mais aussi de contraindre la variabilité saisonnière de la dérive du panache de fluide dans la colonne d'eau (**Chapitre IV**).

#### IV.2.2. A l'échelle des temps géologiques

L'analyse des marqueurs géologiques correspondant au passage des fluides dans les sédiments ne peut être abordée qu'à partir de mesures géophysiques. L'identification de sites fossiles pourrait constituer des témoins du mode de fonctionnement des sites d'émanation d'hydrocarbures. Les périodes d'initiation et d'interruption de sorties fluides pourraient être observées au niveau des anomalies géophysiques à partir de discontinuités verticales. Dans le bassin profond du Bas-Congo cependant, la tectonique salifère fournit certes des chemins de migrations efficaces pour la remontée des fluides vers le fond de mer, mais déforme profondément la surcharge sédimentaire (Chapitre V; Chapitre VI). La déformation importante complexifie alors l'analyse détaillée des marqueurs géophysiques associés à la migration des fluides. Un seul site fossile et relativement peu déformé par la tectonique salifère a été étudié sur la zone d'étude. Celle-ci présente une succession verticale d'anomalies géophysiques, délimitée dans les parties sommitales et basales par des séries non affectées par des anomalies d'amplitude (Fig. VII-3). Cette observation contraint alors les périodes d'activité des échappements fluides entre le Pliocène moyen et le Pléistocène moyen pour ce site. Une étude plus régionale de l'ensemble de sites passifs permettrait d'étudier la synchronicité des périodes d'expulsions de fluides à l'échelle du bassin et éventuellement de faire le lien avec une modification des paramètres environnementaux, telle que la réactivation de la tectonique salifère et/ou les variations climato-eustatiques.



Fig. VII-3: Exemple d'anomalie verticale d'amplitude interrompue dans la pile sédimentaire. Bandeaux supérieurs : mosaïque de différentes cartes isochrones et cartes d'amplitudes issues des données de sismique 3D. Bandeau inférieur : section sismique présentant des évidences de migration de fluides.

#### IV.3. Comparaison à la réalité terrain

L'analyse d'un jeu de données complet de géophysique de subsurface a permis de mettre en évidence des anomalies telles que des corps de fortes amplitudes subcirculaires empilés au-dessus de la base de stabilité des hydrates, ou bien d'autres plus massifs distribués sous les hydrates (**Chapitre V**). Nous avons avancé plusieurs hypothèses pour expliquer la présence de ces fortes amplitudes : (i) la concrétion de carbonates sous l'effet de la dissolution de l'anhydrite ou (ii) la concrétion de lentilles carbonatées de faible dimension dans les zones de migrations « périphériques ». Un échantillonnage sur site permettrait de contraindre avec moins d'incertitudes la nature de ces anomalies. L'analyse d'analogues de terrain au niveau de zones de sorties actives d'hydrocarbures lourds pourrait également permettre de contraindre ces systèmes. À notre porte, la chaîne pyrénéenne pourrait constituer un bon analogue, où de multiples zones d'émanation d'hydrocarbures lourds ont été décrites dans les séries Albiennes à Cénomaniennes (Fig. VII-4).



Fig. VII-4: Présentation d'un analogue de terrain potentiel pour l'étude de la distribution spatiale des lentilles carbonatées authigènes (Ispaster, Pays basque Espagnol). Modifié d'après Agirrezabala et al. (2013). Lame mince montrant la présence d'asphaltes sur zone (c : calcite, d : dolomite, p : comblement de pyrobitumes en noirs). Coupe montrant la distribution et l'empilement de lentilles de carbonates authigènes dans une matrice de turbidites sableuses.

## Références

#### A B C D E F G H I J K L M N O P Q R S T U V W X-Y-Z

## A

- Abrams, M.A. (2005). Significant of hydrocarbon seepage relative to petroleum generation and entrapment, Marine and Petroleum Geology 22, p. 457-477.
- Abrams, M. (2013). Best practices for the collection, analysis, and interpretation of seabed geochemical samples to evaluate subsurface hydrocarbon generation and entrapment. In Offshore Technology Conference. Offshore Technology Conference.
- Abrams, M. A., & Narimanov, A. A. (1997). Geochemical evaluation of hydrocarbons and their potential sources in the western South Caspian depression, Republic of Azerbaijan. Marine and Petroleum Geology, 14(4), 451-468.

- Acosta, J., Uchupi, E., Muñoz, A., Herranz, P., Palomo, C., Ballesteros, & M., ZEE Working Group. (2005). Salt diapirs, salt brine seeps, pockmarks and surficial sediment creep and slides in the Canary Channel off NW Africa. In Geophysics of the Canary Islands (pp. 41-57). Springer Netherlands. DOI 10.1007/s11001-004-1161-7.
- Acosta, J., Muñoz, A., Herranz, P., Palomo, C., Ballesteros, M., Vaquero, M., & Uchupi, E. (2001). Pockmarks in the Ibiza Channel and western end of the Balearic Promontory (western Mediterranean) revealed by multibeam mapping. Geo-Marine Letters, 21(3), 123-130. DOI 10.1007/s003670100074.
- Adalsteinsson, D. D., Camassa, R. R., Harenberg, S. S., Lin, Z. Z., Mclaughlin, R. M., Mertens, K. K., & White, B. B. (2011). Subsurface trapping of oil plumes in stratification:

laboratory investigations. Monitoring and Modeling the Deepwater Horizon Oil Spill: A Record-Breaking Enterprise, 257-262.

- Agirrezabala, L. M., Kiel, S., Blumenberg, M., Schäfer, N., & Reitner, J. (2013). Outcrop analogues of pockmarks and associated methane-seep carbonates: A case study from the Lower Cretaceous (Albian) of the Basque-Cantabrian Basin, western Pyrenees. Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology, 390, 94-115.
- Aitken, C., Brown, A., Gray, N., Rowan, A., Head, I., Jones, M., & Larter, S. (2007). Anaerobic hydrocarbon degradation in petroleum reservoirs and methane generation. In Proceedings of the 23rd International Meeting on Organic Geochemistry (pp. 9-14).
- Akar, S., Süzen, M.L., & Kaymakci, N. (2011). Detection and object-based classification of offshore oil slicks using ENVISAT-ASAR images. Environ Monit Assess p409–423.
- Allen, A.A., Schlueter, R.S., & Mikolaj, P.G. (1970). Natural oil Seepage at Coal Oil Point, Santa Barbara, California. Science, 170, 974–977.
- Alpers, W., & Espedal, H.A. (2004). Oils and Surfactants in SAR Marine User's Manual.
- Alperin, M. J., & Reeburgh, W. S. (1984). Geochemical observations supporting anaerobic methane oxidation. Microbial growth on C-1 compounds, 282, 289.
- Asl, S. D., Dukhovskoy, D. S., Bourassa, M., & MacDonald, I. R. (2017). Hindcast modeling of oil slick persistence from natural seeps. Remote Sensing of Environment, 189, 96-107.
- Anderson, J. E., Cartwright, J., Drysdall, S. J., & Vivian, N. (2000). Controls on turbidite sand deposition during gravity-driven extension of a passive margin: examples from Miocene sediments in Block 4, Angola. Marine and Petroleum Geology, 17(10), 1165-1203.

- Anderson, R. T., & Lovley, D. R. (2000). Biogeochemistry: hexadecane decay by methanogenesis. Nature, 404(6779), 722.
- Andresen, K. J., Huuse, M., & Clausen, O. R. (2008). Morphology and distribution of Oligocene and Miocene pockmarks in the Danish North Sea–implications for bottom current activity and fluid migration. Basin Research, 20(3), 445-466.http://dx.doi.org/10.1016/j.margeo.2012 .07.006.
- Andresen, K.J., Huuse, M., Shödt., N.H., Clausen, F., & Seidler, L. (2010). Hydrocarbon plumbing systems of salt minibasins offshore Angola revealed by three-dimensional seismic analysis, AAPG Bulletin, 95, 1039-1065, http://dx.doi.org/10.1306/12131010046.
- Andresen, K.J., & Huuse, M. (2011). 'Bulls-eye' and polygonal faulting in the Lower Congo Basin: Relative timing and implications for fluid expulsion during shallow burial, Marine Geology 279, 111-127, http://dx.doi.org/ 10.1016/j.margeo.2010.10.016.
- Andresen, K.J. (2012). Fluid flow features in hydrocarbon plumbing systems: What do they tell us about the basin evolution, Marine Geology, 332-334, 89-108, http://dx.doi.org/10.1016/j.margeo.2012.07. 006.
- Andreassen, K., Mienert, J., Bryn, P., & Singh, S. C. (2000). A double gas-hydrate related bottom simulating reflector at the Norwegian continental margin. Annals of the New York Academy of Sciences, 912(1), 126-135.
- Angelliaume, S., Minchew, B., Chataing, S., Martineau, P., & Miegebielle, V. (2017). Multifrequency radar imagery and characterization of hazardous and noxious substances at sea. IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing, 55(5), 3051-3066.
- Arhan, M., Mercier, H., & Park, Y. H. (2003). On the deep water circulation of the eastern South Atlantic Ocean. Deep Sea Research

Part I: Oceanographic Research Papers, 50(7), 889-916.

- Anka, Z., Berndt, C., & Gay, A. (2012). Hydrocarbon leakage through focused fluid flow systems in continental margins, Marine Geology p 332-334.
- Anka, Z., Séranne, M., Lopez, M., Scheck-Wenderoth, M., & Savoye, B. (2009). The long-term evolution of the Congo deep-sea fan: A basin-wide view of the interaction between a giant submarine fan and a mature passive margin (ZaiAngo project), Tectonophysics 470, 42-56, http://dx.doi.org/ 10.1016/j.tecto.2008.04.009.
- Anka, Z., Ondrak, R., Kowitz, A., & Schodt, N. (2013). Identification and numerical modeling of hydrocarbon leakage in the Lower Congo Basin: Implications on the genesis ok km-wide seafloor mounded structures, Tectonophysics, 604, 153-171, http://dx.doi.org/10.1016/j.tecto.2012.11.02 0.
- Aprin, L., Heymesa, F., Laureta, P., Slangena, P., & Le Floch, S. (2015). Experimental Characterization of the Influence of Dispersant Addition on Rising Oil Droplets in Water Column. CHEMICAL ENGINEERING, 43.
- Arhan, M., Mercier, H., & Park, Y.H. (2003). On the deep water circulation of the eastern South Atlantic Ocean. Deep Sea Research Part I: Oceanographic Research Papers, 50(7), 889-916.
- Arning, E. T., Gaucher, E. C., van Berk, W., & Schulz, H. M. (2015). Hydrogeochemical models locating sulfate-methane transition zone in marine sediments overlying black shales: A new tool to locate biogenic methane?. Marine and Petroleum Geology, 59, 563-574.

## B

Baltzer, A., Ehrhold, A., Rigolet, C., Souron, A., Cordier, C., Clouet, H., & Dubois, S. F. (2014). Geophysical exploration of an active pockmark field in the Bay of Concarneau, southern Brittany, and implications for resident suspension feeders. Geo-Marine Letters, 34(2-3), 215-230.

- Bangs, N. L., Musgrave, R. J., & Tréhu, A. M. (2005). Upward shifts in the southern Hydrate Ridge gas hydrate stability zone following postglacial warming, offshore Oregon. Journal of Geophysical Research: Solid Earth, 110(B3).
- Barnes, R. O., & Goldberg, E.D. (1976). Methane production and consumption in anoxic marine sediments. Geology 4:297–300.
- *Barwise*, *T.*, & *Hay*, *S.* (1996). *Predicting oil* properties from core fluorescence.
- Ballard, R. D. (1977). Notes on a major oceanographic find(marine animals near hot-water vents at ocean bottom). Oceanus, 20, 35-44.Baltzer, A., Ehrhold, A., Rigolet, C., Souron, A., Cordier, C., Clouet, H., & Dubois, S. F. (2014). Geophysical exploration of an active pockmark field in the Bay of Concarneau, southern Brittany, and implications for resident suspension feeders. Geo-Marine Letters, 34(2-3), 215-230.
- Bayon, G., Loncke, L., Dupré, S., Caprais, J. C., Ducassou, E., Duperron, S., ... & Henderson, G. M. (2009). Multi-disciplinary investigation of fluid seepage on an unstable margin: the case of the Central Nile deep sea fan. Marine Geology, 261(1), 92-104.
- Beegle-Krause, J. (2001). GENERAL NOAA OIL MODELING ENVIRONMENT (GNOME): A NEW SPILL TRAJECTORY MODEL. International Oil Spill Conference Proceedings: March 2001, Vol. 2001, No. 2, pp. 865-871.
- Becker, P.R. & Manen, C.A. (1988). Natural Oil Seeps in the Alaskan marine environment. Outer Continental Shelf Environmental Assessment Program Research Unit 703.
- Beglinger, S.E., Doust, H., & Cloestingh, S. (2012). Relating petroleum system and play development to basin evolution: West African South Atlantic basins, Marine and Petroleum Geology, 30, 1-25, http://dx.doi.org/10.1016/j.marpetgeo.2011. 08.008.

- Berdugo-Clavijo, C., & Gieg, L. M. (2014). Conversion of crude oil to methane by a microbial consortium enriched from oil reservoir production waters. Frontiers in microbiology, 5.
- Berger, W. H., Wefer, G., & Richter, C. (1998). Color cycles in Quaternary sediments from the Congo Fan region (Site 1075): a statistical analysis. In Proceedings of the Ocean Drilling Program. Initial reports (Vol. 175, pp. 561-567). Ocean Drilling Program.
- Berkes, F., Knippertz, P., Parker, D.J., Jeans, G., & Quiniou-Ramus, V. (2012). Convective Squalls over the Eastern Equatorial Atlantic, Weather and Forecasting, 27, 770 – 783, http://dx.doi.org/10.1175/WAF-D-11-00086.1
- Bern, T.I., Wahl., T., Anderssen, T., & Olsen, R. (1992). Oil Spill detection using satellite based SAR: experience from a field Experiment, Proceedings First ERS-1 Symposium - Space at the Service of our Environment, 829 – 834.
- Berndt, C., Bünz, S., Clayton, T., Mienert, J., & Saunders, M. (2004). Seismic character of bottom simulating reflectors: examples from the mid-Norwegian margin. Marine and Petroleum Geology, 21(6), 723-733.
- Biteau, J. J., Choppin de Janvry, G., & Perrodon, A. (2003). The Petroleum System, a fundamental tool–How the Petroleum System relates to the Petroleum Province. Oil and Gas Journal, 34-39.
- Boetius, A., & Wenzhöfer, F. (2013). Seafloor oxygen consumption fuelled by methane from cold seeps. Nature Geoscience, 6(9), 725-734.
- Boetius, A., Ravenschlag, K., Schubert, C. J., Rickert, D., Widdel, F., Gieseke, A., ... & Pfannkuche, O. (2000). A marine microbial consortium apparently mediating anaerobic oxidation of methane. Nature, 407(6804), 623-626.
- Boles, J.R., Clark., J.F., Leifer, I., & Washburn, L. (2001). Temporal variation in natural methane seep rate due to tides, Coal Oil

Point area, California, Journal of Geophysical Research, 106, 27077 – 27086.

- Bohrmann, G., & Torres, M. E. (2006). Gas hydrates in marine sediments. In Marine geochemistry (pp. 481-512). Springer Berlin Heidelberg.
- Borowski, W. S., Paull, C. K., & Ussler, W. (1999). Global and local variations of interstitial sulfate gradients in deep-water, continental margin sediments: Sensitivity to underlying methane and gas hydrates. Marine Geology, 159(1), 131-154.
- Bourry, C. (2008). Caractérisation physique et géochimique d'hydrates de gaz d'environnements géologiques différents. Apport des techniques de Diffraction X Synchrotron et de Spectroscopie Raman. Contribution à l'étude de leur origine, formation et stabilité sur les marges. Thèse de l'université de Brest.
- Boyer, D., Cole, J., & Bartholomae, C. (2000). Southwestern Africa: Northern Benguela Current Region, Marine Pollution Bulletin, 41, 123-140.
- Brekke, C., Solberg, A.H.S. (2005). Oil spill detection by satellite remote sensing, Remote Sensing of Environment, 95, 1-13, http://dx.doi.org/10.1016/j.rse.2004.11.015.
- Brice, S.E., Cochran, M.D., Pardo, G., & Edwards, A.D. (1982). Tectonics and sedimentation of the South Atlantic Rift Sequence: Cabinda, Angola. American Association Petroleum Geologists Memoir, 34, 5–18.
- Brown, A. R. (2011). Interpretation of threedimensional seismic data. Society of Exploration Geophysicists and American Association of Petroleum Geologists.
- Brownfield, M.E., & Charpentier, R.R. (2006). Geology and total petroleum systems of the west-central coastal province (7203), west Africa (No. 2207-B).
- Brun, J.P., & Fort, X. (2004). Compressional salt tectonics (Angolan Margin), Tectonophysics, 382, 129–150, http://dx.doi.org /10.1016/j.tecto.2003.11.014.

- Burwood, R. (1999). Angola: source rock control for Lower Congo Coastal and Kwanza Basin petroleum systems, Geological Society, London, Special Publications v. 152, p181-184.
- Bünz, S., Mienert, J., Bryn, P., & Berg, K. (2005). Fluid flow impact on slope failure from 3D seismic data: a case study in the Storegga Slide. Basin Research, 17(1), 109-122.

## <u>C</u>

- Cai, C., Xie, Z., Worden, R. H., Hu, G., Wang, L., & He, H. (2004). Methane-dominated thermochemical sulphate reduction in the Triassic Feixianguan Formation East Sichuan Basin, China: towards prediction of fatal H 2 S concentrations. Marine and Petroleum Geology, 21(10), 1265-1279.
- Cai, M., Jiménez, N., Krüger, M., Guo, H., Jun, Y., Straaten, N., & Richnow, H. H. (2015). Potential for aerobic and methanogenic oil biodegradation in a water flooded oil field (Dagang oil field). Fuel, 141, 143-153.
- Calvès, G., Huuse, M., Schwab, A., & Clift, P. (2008). Three-dimensional seismic analysis of high-amplitude anomalies in the shallow subsurface of the Northern Indus Fan: Sedimentary and/or fluid origin. Journal of Geophysical Research: Solid Earth, 113(B11).
- Camassa, R., Khatri, S., McLaughlin, R., Mertens, K., Nenon, D., Smith, C., & Viotti, C. (2013). Numerical simulations and experimental measurements of dense-core vortex rings in a sharply stratified environment. Computational Science & Discovery, 6 (1), 014001.
- *Cainelli*, C., Mohriak, W.U. (1999). Some remarks on the evolution of sedimentary basins along the eastern Brazilian continental margin, Episodes, 22:3, 206-216.
- *Cardott*, B. J. (2012). Introduction to vitrinite reflectance as a thermal maturity indicator.
- Carruthers, D., Cartwright, J., Jackson, M. P., & Schutjens, P. (2013). Origin and timing of layer-bound radial faulting around North

Sea salt stocks: New insights into the evolving stress state around rising diapirs. Marine and Petroleum Geology, 48, 130-148.

- Cartwright, J., James, D., & Bolton, A. (2003). The genesis of polygonal fault systems: a review. Geological Society, London, Special Publications, 216(1), 223-243.
- *Cartwright*, J., Huuse, M., & Aplin, A. (2007). Seal bypass systems. AAPG bulletin, 91(8), 1141-1166.
- *Casenave*, V. (2017). Architecture et dynamique des migrations d'hydrocarbures dans une couverture sédimentaire à hydrates de gaz : implications sur le système pétrolier (Bassin du Bas Congo), Thèse de l'université de Montpellier.
- Cathles, L. M., Su, Z., & Chen, D. (2010). The physics of gas chimney and pockmark formation, with implications for assessment of seafloor hazards and gas sequestration. Marine and petroleum Geology, 27(1), 82-91.
- Chanton, J.P., Burnett, W., Dulaiova, H., Corbett, D.R., & Taniguchi, M. (2003). Seepage Rate Variability in Florida Bay Driven by Atlantic Tidal Height, Biogeochemistry, 1– 17.
- Charlou, J.L., Donval, J.P., Fouquet, Y., Ondreas, H., Knoery, J., Cochonat, P., Levaché, D., Poirier, Y., Jean-Baptiste, P., Fourré, E., & Chazallon, B. (2004). Physical and chemical characterization of gas hydrates and associated methane plumes in the Congo– Angola Basin Chemical Geology, 205, 405 – 425, http://dx.doi.org/10.1016/j.chemgeo.2003.12 .033.
- Chen, H., An, W., You, Y., Lei, F., Zhao, Y., & Li, J. (2015). Numerical study of underwater fate of oil spilled from deepwater blowout. Ocean Engineering, 110, 227-243.
- Chen, J., & Denison, M. S. (2011). The Deepwater Horizon oil spill: environmental fate of the oil and the toxicological effects on marine organisms. Horizon (indicated in red).

- Chen, S., & Hu, C. (2014). In search of oil seeps in the Cariaco basin using MODIS and MERIS medium-resolution data. Remote Sensing Letters, 5(5), 442-450.
- Chen, H. Z., LI, D. M., & Xiao, L. (2007). Mathematical modeling of oil spill on the sea and application of the modeling in Daya Bay. Journal of Hydrodynamics, Ser. B, 19(3), 282-291.
- Cheng, L., Shi, S., Li, Q., Chen, J., Zhang, H., & Lu, Y. (2014). Progressive degradation of crude oil n-alkanes coupled to methane production under mesophilic and thermophilic conditions. PloS one, 9(11), e113253.
- Chong, Z. R., Chan, A. H. M., Babu, P., Yang, M., & Linga, P. (2015). Effect of NaCl on methane hydrate formation and dissociation in porous media. Journal of Natural Gas Science and Engineering, 27, 178-189.
- Chopra, S., & Marfurt, K. J. (2008). Emerging and future trends in seismic attributes. The Leading Edge, 27(3), 298-318.
- *Çifçi*, G., Dondurur, D., & Ergün, M. (2003). Deep and shallow structures of large pockmarks in the Turkish shelf, Eastern Black Sea. Geo-Marine Letters, 23(3-4), 311-322. DOI 10.1007/s00367-003-0138-x.
- Claypool, G. E., & Kaplan, I. R. (1974). The origin and distribution of methane in marine sediments. In Natural gases in marine sediments (pp. 99-139). Springer US.
- *Clift*, R., Grace, J. R., Weber, M. E., & Bubbles, D. (1978). Particles. Academic, New York, 171-202.
- Clift, R., Grace, J. R., & Weber, M. E. (2005). Bubbles, drops, and particles. Courier Corporation.
- Cobbold, P. R., Clarke, B. J., & Løseth, H. (2009). Structural consequences of fluid overpressure and seepage forces in the outer thrust belt of the Niger Delta. Petroleum Geoscience, 15(1), 3-15.
- Cole, G. A., Requejo, A.G., Ormerod, D., Yu, Z., & Clifford, A. (2000). Petroleum geochemical assessment of the Lower Congo Basin, in

Mello, M.R., and Katz, B.J., eds., Petroleum systems of South Atlantic margins: AAPG Memoir 73, p.325-339.

- Colwell, R. R., Walker, J. D., & Cooney, J. J. (1977). Ecological aspects of microbial degradation of petroleum in the marine environment. CRC critical reviews in microbiology, 5(4), 423-445.
- Connolly, D., Aminzadeh, F., Brouwer, F., & Nielsen, S. (2013). Detection of subsurface hydrocarbon seepage in seismic data: *Implications for charge, seal, overpressure,* and gas-hydrate assessment. In Hydrocarbon Seepage: From Source to 199-220). Surface *(pp.* Society of Exploration Geophysicists and American Association of Petroleum Geologists.
- Cordes, E. E., Carney, S. L., Hourdez, S., Carney, R. S., Brooks, J. M., & Fisher, C. R. (2007). Cold seeps of the deep Gulf of Mexico: community structure and biogeographic comparisons to Atlantic equatorial belt seep communities. Deep Sea Research Part I: Oceanographic Research Papers, 54(4), 637-653.
- Cowley, R., & O'brien, G. W. (2000). Identification and interpretation of leaking hydrocarbons using seismic data: a comparative montage of examples from the major fields in Australia's north west shelf and Gippsland Basin. APPEA Journal, 40(1), 121-150.
- Cramez, C., & Jackson, M. P. A. (2000). Superposed deformation straddling the continental-oceanic transition in deep-water Angola. Marine and Petroleum Geology, 17(10), 1095-1109.
- Crooke, E., Talukder, A., Ross, A., Trefry, C., Caruso, M., Carragher, P., Stalvies, C., & Armand, S (2015). Determination of seafloor seepage locations in the Mississippi Canyon. Marine and Petroleum Geology, 59, 129-135. http://dx.doi.org/10.1016/j.marpetgeo.2014. 08.004.
- *Cullen*, J., Mosher, D. C., & Louden, K. (2008). The Mohican channel gas hydrate zone, Scotian slope: geophysical structure.

- Cunningham, R., & Lindholm, R. M. (2000). AAPG Memoir 73, Chapter 8: Seismic Evidence for Widespread Gas Hydrate Formation, Offshore West Africa.
- Cuss, R., Harrington, J., Giot, R., & Auvray, C. (2014). Experimental observations of mechanical dilation at the onset of gas flow in Callovo-Oxfordian claystone. Geological Society, London, Special Publications, 400(1), 507-519.
- Cuvelier, D., Sarrazin, J., Colaço, A., Copley, J. T., Glover, A. G., Tyler, P. A., ... & Desbruyères, D. (2011). Community dynamics over 14 years at the Eiffel Tower hydrothermal edifice on the Mid-Atlantic Ridge. Limnology and Oceanography, 56(5), 1624-1640.

## <u>D</u>

- Da Costa, J.L., Schirmer, T.W., & Laws, B.R. (2000). Lower Congo basin, Deepwater Exploration Province, Offshore West Africa, Second Wallace E. Pratt memorial Conference 3 Petroleum Provinces of the 21<sup>st</sup> Century.
- Danforth, A. (1998). Petroleum systems of the coastal Kwanza and Benguela basins, Angola.
- Das, N., & Chandran, P. (2010). Microbial degradation of petroleum hydrocarbon contaminants: an overview. Biotechnology research international, 2011.
- Davison, I. (1999). Tectonics and hydrocarbon distribution along the Brazilian South Atlantic margin. Geological Society, London, Special Publications, 153(1), 133-151.
- De Boever, E., Swennen, R., & Dimitrov, L. (2006). Lower Eocene carbonate-cemented "chimney" structures (Varna, Bulgaria) control of seepage rates on their formation and stable isotopic signature. Journal of Geochemical Exploration, 89(1), 78-82.
- **Davies**, R. J., & Cartwright, J. (2002). A fossilized Opal A to Opal C/T transformation on the northeast Atlantic margin: support for a

significantly elevated Palaeogeothermal gradient during the Neogene?. Basin Research, 14(4), 467-486.

- Davies, R. J., & Cartwright, J. A. (2007). Kilometer-scale chemical reaction boundary patterns and deformation in sedimentary rocks. Earth and Planetary Science Letters, 262(1), 125-137.
- Davies, R. J., Huuse, M., Hirst, P., Cartwright, J., & Yang, Y. (2006). Giant clastic intrusions primed by silica diagenesis. Geology, 34(11), 917-920.
- Davy, H. (1811). On a combination of oxymuriatic gas and oxygene gas. Philosophical Transactions of the Royal society of London, 101, 155-162.
- De Batist, M., Klerkx, J., Van Rensbergen, P., Vanneste, M., Poort, J., Golmshtok, A. Y., & Krinitsky, P. (2002). Active hydrate destabilization in Lake Baikal, Siberia?. Terra Nova, 14(6), 436-442.
- De Beukelear, S.M., MacDonald, I.R., Guinasso, N.L., Murray, J.A. (2003). Distinct side-scan sonar, RADARSAT SAR, and acoustic profiler signatures of gas and oil seeps on the Gulf of Mexico slope, Geo-Marine Letters, 23, 177-186.
- **De Boever**, E., Swennen, R., Dimitrov, L. (2006). Lower Eocene carbonate-cemented "chimney" structures (Varna, Bulgaria) control of seepage rates on their formation and stable isotopic signature. Journal of Geochemical Exploration, 89(1), 78-82.
- De Gouw, J. A., Middlebrook, A. M., Warneke, C., Ahmadov, R., Atlas, E. L., Bahreini, R., ... & Fehsenfeld, F. C. (2011). Organic aerosol formation downwind from the Deepwater Horizon oil spill. Science, 331(6022), 1295-1299.
- De Moustier, C., Zabal, X., Boelmann, J., Kraft, B. J., Zielinski, O., & Fox, P. A. (2013). Near-Bottom Acoutical Detection of Bubble Streams Emanating From Natural Sea floor Seeps in the Gulf of Mexico. In Proceedings of Offshore Technology Conference (Vol. 24171).

- Deffontaines, B., Riazanoff, S., Najoui, Z., & Facon, M. (2014). Monitoring marine oil seeps from space : the African Case. The 13th HGS-PESGB Conference on African E&P.
- **Dhont**, D., Cauquil, E., & Jatiault, R. (2013). Relation between Oil Seeps and Seabed Morphologies, Offshore technology Conference paper n°24242.
- Dias, C. A. (1983). Note on the evidence of a permanent southward flow of the upper oceanic tropospheric waters off Angola at 12° S. Collection of Scientific Papers International Commission for the Southeast Atlantic Fisheries, 10, 99-102.
- *Dietz*, R.S., & Lafond., E.C. (**1950**). Natural slicks on the ocean, Journal of Marine Research, p 69-79.
- Dickens, G. R. (2001). Sulfate profiles and barium fronts in sediment on the Blake Ridge: present and past methane fluxes through a large gas hydrate reservoir. Geochimica et Cosmochimica Acta, 65(4), 529-543.
- Dillon, W.P., J.A. Grow, & Paull, C.K. (1980). Unconventional gas hydrate seals may trap gas off southeast US, Oil & Gas J.; Vol/Issue: 78, Pages: 124, 126, 129-131.
- Ding, F. (2009). Near-surface Sediment Structures at Cold Seeps and their Physical Control on Seepage: A Geophysical and Geological Study in the Southern Gulf of Mexico and at the frontal Makran Accretionary Prism/Pakistan. Doctoral thesis of the university of Bremen.
- **Doll**, J.E., Baranski, M. (**2011**). Greenhouse basics, Climate Change and Agriculture Fact Sheet Series E3148.
- Doi, T., Tozuka, T., Sasaki, H., Masumoto, Y., & Yamagata, T. (2007). Seasonal and interannual variations of oceanic conditions in the Angola Dome. Journal of Physical Oceanography, 37(11), 2698-2713.
- Dholabhai, P. D., Englezos, P., Kalogerakis, N., & Bishnoi, P. R. (1991). Equilibrium conditions for methane hydrate formation in aqueous mixed electrolyte solutions. The

Canadian Journal of Chemical Engineering, 69(3), 800-805.

- Droz, L., Rigaut F., Cochonat, P., & Tofani, R. (1996). Morphology and recent evolution of the Zaire turbidite system (Gulf of Guinea).
  Geological Society of America Bulletin, 108, 253 - 269.
- Droz, L., Marsset, T., Ondreas, H., Lopez, M., Savoye, B., & Spie-Anderson, F.L. (2003). -Architecture of an active mud-rich turbidite system: the Zaire Fan (Congo–Angola margin southeast Atlantic): results from ZaiAngo 1 and 2 cruises. - American Association of Petroleum Geologists Bulletin, 87, 7, 1145 - 1168.
- Dubucq, D., Sicot, G., Lennon, M., & Miegebielle, V. (2016). Detection and Discrimination of the Thick Oil Patches on the Sea Surface. ISPRS-International Archives of the Photogrammetry, Remote Sensing and Spatial Information Sciences, 417-421.
- Dupont, L.M. (2013). The Congo Deep-Sea fan as an archive of Quaternary change in Africa and the Eastern Tropical South Atlantic (a review), in External Controls on Deep-Water Depositional Systems, Kneller, B.C., Ole, J., Martinsen, J., McCaffrey, B., SEPM Special Publication No. 92, P; 79-87.
- Dupré, S., Berger, L., Le Bouffant, N., Scalabrin, C., & Bourillet, J. F. (2014). Fluid emissions at the Aquitaine Shelf (Bay of Biscay, France): A biogenic origin or the expression of hydrocarbon leakage?. Continental Shelf Research, 88, 24-33.
- Dupre, S., Scalabrin, C., Grall, C., Augustin, J. M., Henry, P., Şengör, A. M., ... & Géli, L. (2015). Tectonic and sedimentary controls on widespread gas emissions in the Sea of Marmara: Results from systematic, shipborne multibeam echo sounder water column imaging. Journal of Geophysical Research: Solid Earth, 120(5), 2891-2912.
- Dupré, S., Woodside, J., Foucher, J. P., De Lange, G., Mascle, J., Boetius, A., ... & Harmégnies, F. (2007). Seafloor geological studies above active gas chimneys off Egypt (Central Nile Deep Sea Fan). Deep Sea

Research Part I: Oceanographic Research Papers, 54(7), 1146-1172.

Duval, B., Cramez, C., & Jackson, M.P.A. (1991). Raft tectonics in the Kwanza Basin, Angola, Marine and Petroleum Geology, 9, 389 – 404.

## E

- *Edwards*, D., McKirdy, D. M., & Summons, R. E. (1998). Enigmatic asphaltites from the southern Australian margin: molecular and carbon isotopic composition. PESA Journal, 26, 106-129.
- *Emery*, K. O., & Dietz, R. S. (1941). Gravity coring instrument and mechanics of sediment coring. Geological Society of America Bulletin, 52(10), 1685-1714.
- England, W. A. (1994). Secondary migration and accumulation of hydrocarbons. MEMOIRS-AMERICAN ASSOCIATION OF PETROLEUM GEOLOGISTS, 211-211.
- *Espedal*, H.A., & Johannessen, O.M. (2000). Detection of oil spills near offshore installations using synthetic aperture radar (SAR), International Journal of Remote Sensing, 21:11, 2141-2144, http://dx.doi.org/10.1080/014311600500294 68.
- *Espedal*, H.A., & Wahl, T. (**1999**). Satellite SAR oil spill detection using wind history information, International Journal of Remote Sensing, vol. 20, 49-65.
- *Etiope*, G. (2015). Natural Gas Seepage The Earth's Hydrocarbon Degassing.

## F

- Fenchel, T., & Jørgensen, B. B. (1977). Detritus food chains of aquatic ecosystems: the role of bacteria. In Advances in microbial ecology (pp. 1-58). Springer US.
- Feng, D., Chen, D., Peckmann, J., & Bohrmann, G. (2010). Authigenic carbonates from methane seeps of the northern Congo fan:

microbial formation mechanism. Marine and Petroleum Geology, 27(4), 748-756.

- Ferry, J. N., Babonneau, N., Mulder, T., Parize, O., & Raillard, S. (2004). Morphogenesis of Congo submarine canyon and valley: implications about the theories of the canyons formation. Geodinamica Acta, 17(4), 241-251.
- Fingas, M. F. (1995). A literature review of the physics and predictive modelling of oil spill evaporation. Journal of Hazardous Materials, 42(2), 157-175.
- Fingas, M. (1996). The evaporation of oil spills: Prediction of equations using distillation data. Spill Science & Technology Bulletin, 3(4), 191-192.
- Fingas, M., & Brown, C. (2000). A review of the status of advanced technologies for the detection of oil in and with ice. Spill Science & Technology Bulletin, 6(5), 295-302.
- Fingas, M., & Brown, C. (2014). Review of oil spill remote sensing. Marine pollution bulletin, 83(1), 9-23. http://dx.doi.org/10.1016/j.marpolbul.2014. 03.059.
- Fiscella, B., Giancaspro, A., Nirchio, F., Pavese, P., & Trivero, P. (2000). Oil spill detection using marine SAR images. International Journal of Remote Sensing, 21(18), 3561-3566.
- *Floodgate*, G. D. (1984). The fate of petroleum in marine ecosystems.
- Floodgate, G.D., & Judd, A.G. (1992). The origins of shallow gas, Continental Shelf Research, Vol 12, No 10, pp 1145 - 1156.
- *Fontboté*, L., & Boni, M. (Eds.) (**1994**). Sedimenthosted Zn-Pb Ores (Vol. 10). Springer Science & Business Media.
- *Foucher*, J. P., Westbrook, G., Boetius, A., Ceramicola, S., Dupré, S., Mascle, J., ... & Praeg, D. (2009). Structure and drivers of cold seep ecosystems. Oceanography, 22(1), 92-109.
- *Foucher*, J. P., Nouzé, H., & Henry, P. (2002). Observation and tentative interpretation of a

double BSR on the Nankai slope. Marine Geology, 187(1), 161-175.

- Fort, X., Brun, J.P., & Chauvel, F. (2004). Salt tectonics on the Angolan margin, synsedimentary deformation processes, AAPG Bulletin, 88:11, 1523–1544.
- Franceschetti, G., Iodice, A., Riccio, D., Ruello, G., & Siviero, R. (2002). SAR Raw Signal Simulation of Oil Slicks in Ocean Environments, IEEE TRANSACTIONS ON GEOSCIENCE AND REMOTE SENSING, VOL. 40, NO. 9.
- Franklin, B., Brownrigg, W., & Farish, M. (1774). Of the stilling of waves by means of oil. Extracted from Sundry Letters between Benjamin Franklin, LL. DFRS William Brownrigg, MDFRS and the Reverend Mr. Farish. Philosophical Transactions, 64, 445-460.
- Friedrichs, M. A., McCartney, M. S., & Hall, M. M. (1994). Hemispheric asymmetry of deep water transport modes in the western Atlantic. Journal of Geophysical Research: Oceans, 99(C12), 25165-25179.
- Froelich, P.N., Klinkhammer, G.P., Bender, M.L., Luedtke, N.A., Heath, G.R., Cullen, D., Dauphin, P., Hammond, D., Hartman, B., & Maynard, V. (1979). Early Oxidation of Organic-Matter in Pelagic Sediments of the Eastern Equatorial Atlantic - Suboxic Diagenesis: Geochimica & Cosmochimica Acta, v. 43, p. 1075–1090.
- *Frye*, M. (2008). Preliminary evaluation of inplace gas hydrate resources: Gulf of Mexico Outer Continental Shelf. OCS Report MMS, 4, 94.
- Fu, Y., van Berk, W., & Schulz, H. M. (2016). Hydrogen sulfide formation, fate, and behavior in anhydrite-sealed carbonate gas reservoirs: A three-dimensional reactive mass transport modeling approach. AAPG Bulletin, 100(5), 843-865.
- *Fugro* Global Environmental & Ocean Sciences (2009). Angola, Block 32 - Metocean Survey Final Report.

## <u>**G</u></u></u>**

- Gade, M., & Alpers, W. (1998). Imaging of biogenic and anthropogenic ocean surface films by the multifrequency/ multipolarization SIR-C/X-SAR, Journal of Geophysical Research, 103, 18851-18866.
- Galeron, J., Menot, L., Renaud, N., Crassous, P., Khripounoff, A., Treignier, C., & Sibuet, M. (2009). Spatial and temporal patterns of benthic macrofaunal communities on the deep continental margin in the Gulf of Guinea. Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography, 56(23), 2299-2312.
- Garcia-Pineda, O., Zimmer, B., Howard, M., Pichel, P., Li, X., & MacDonald, I.R. (2009). Using SAR images to delineate ocean oil slicks with a texture-classifying neural network algorithm (TCNNA), Canadian journal of Remote Sensing, 35, 411-421.
- Garcia-Pineda, O., MacDonald, I., Zimmer, B., Shedd, B., & Roberts, H. (2010). Remotesensing evaluation of geophysical anomaly sites in the outer continental slope, northern Gulf of Mexico, Deep-Sea research II 57, 1859-1869, http://dx.doi.org/10.1016/j.dsr2.2010.05.005
- Garcia-Pineda, O., MacDonald, I., & Shedd, W. (2013). Analysis of oil fluxes of hydrocarbon seep formations on the Green Canyon and Mississipi Canyon: a study using 3-d seismic attributes in combination with satellite and acoustic data, Offshore Technology Conference 24226.
- Garcia-Pineda, O., MacDonald, I., & Shedd, W. (2014). Analysis of oil-volume fluxes of hydrocarbon-seep formations on the Green canyon and Mississippi canyon: A study with 3D Seismic Attributes in combination with satellite and acoustic data, SPE Reservoirs Evaluation and Engineering.
- Garcia-Pineda, O., MacDonald, I., Silva, M., Shedd, W., Asl, S. D., & Schumaker, B. (2016). Transience and persistence of natural hydrocarbon seepage in Mississippi

canyon, Gulf of Mexico. Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography, 129, 119-129.

- Garzoli, S. L., Dong, S., Fine, R., Meinen, C. S., Perez, R. C., Schmid, C., ... & Yao, Q. (2015). The fate of the deep western boundary current in the South Atlantic. Deep Sea Research Part I: Oceanographic Research Papers, 103, 125-136.
- Gaullier, V., & Vendeville, B. C. (2005). Salt tectonics driven by sediment progradation: Part II—Radial spreading of sedimentary lobes prograding above salt. AAPG bulletin, 89(8), 1081-1089.
- Gay, A. (2002) Les marqueurs géologiques de la migration et de l'expulsion des fluides sédimentaires sur le plancher des marges passives matures. Exemples dans le Bassin du Congo., Université des Sciences et Technologies, Thèse Université de Lille 1, France, 426 pp.
- Gay, A., Lopez, M., Cochonat, P., Sultan, N., Cauquil, E., & Brigaud, F. (2003). Sinuous pockmark belt as indicator of a shallow buried turbiditic channel on the lower slope of the Congo Basin, West African Margin. In: Van Rensbergen, P., Hillis, R.R., Maltman, A.J., Morley, C.K., Subsurface Sediment Mobilization, Geological Society of London, Special Publications, vol. 216, 173–189.
- Gay, A., Lopez, M., Berndt, C., & Séranne, M. (2007). Geological controls on focused fluid flow associated with seafloor seeps in the Lower Congo Basin, Marine Geology 244, 68 – 92, http://dx.doi.org/10.1016/j.margeo.2007.06. 003.
- Gay, A., Lopez, M., Cochonat, P., Levaché, D., Sermondadaz, G., & Seranne, M. (2006 a). Evidences of early to late fluid migration from an upper Miocene turbiditic cannel revealed by 3D seismic coupled to geochemical sampling within seafloor pockmarks, Lower Congo Basin, Marine and Petroleum geology 23, 387-399, http://dx.doi.org/10.1016/j.marpetgeo.2006. 02.004

- Gay, A., Lopez, M., Cochonat, P., Séranne, M., Levaché, D., & Sermondadaz, G. (2006 b). Isolated seafloor pockmarks linked to BSRs, fluid chimneys, polygonal faults and stacked Oligocene–Miocene turbiditic paleochannels in the Lower Congo Basin, Marine Geology 226, 25 – 40, http://dx.doi.org/10.1016/j.margeo.2005.09. 018.
- Gay, A., Lopez, M., Ondreas, H., Charlou, J.L., Sermondadaz, G., & Cochonat, P. (2006 c). Seafloor facies related to upward methane flux within a Giant Pockmark of the Lower Congo basin, Marine Geology 226, 81 – 95, http://dx.doi.org/10.1016/j.margeo.2005.09. 011.
- Geldof, J. B., Gafeira, J., Contet, J., & Marquet, S. (2014, May). GIS Analysis Of Pockmarks From 3D Seismic Exploration Surveys. In Offshore Technology Conference. Offshore Technology Conference.
- *Geletti*, R., & Busetti, M. (2011). A double bottom simulating reflector in the western Ross Sea, Antarctica. Journal of Geophysical Research: Solid Earth, 116(B4).
- Gindre-Chanu, L., Warren, J. K., Puigdefabregas, C., Sharp, I. R., Peacock, D. C., Swart, R., ... & Henrique, L. (2015). Diagenetic evolution of Aptian evaporites in the Namibe Basin (south- west Angola). Sedimentology, 62(1), 204-233.
- Girard-Ardhuin, F., Mercier, G., Collard, F., & Garello, R. (2005). Operational Oil-Slick Characterization by SAR Imagery and Synergistic Data, IEEE Journal of Oceanic Engineering, 30:3, 487 – 495.
- Glasby, G.P., & Kasahara, J. (2001). Influence of tidal effects on the periodicity of earthquake activity in diverse geological settings with particular emphasis on submarine hydrothermal systems, Earth-Science Reviews, 52, 261–297.
- *Gómez*, C., & Green, D. R. (2017). Small unmanned airborne systems to support oil and gas pipeline monitoring and mapping. Arabian Journal of Geosciences, 10(9), 202.
- *Gordon*, A. L., & Bosley, K. T. (1991). Cyclonic gyre in the tropical South Atlantic. Deep Sea

Research Part A. Oceanographic Research Papers, 38, S323-S343.

- Gordon, R. L., & Instruments, R. D. (1996). Principles of operation a practical primer. RD Instruments, San Diego.
- *Grammeltvedt*, E. B. (2014). Size Distribution for Oil Droplets Dispersed in Water: An Experimental Study by Image Analysis.
- Grassia, G. S., McLean, K. M., Glénat, P., Bauld, J., & Sheehy, A. J. (1996). A systematic survey for thermophilic fermentative bacteria and archaea in high temperature petroleum reservoirs. FEMS microbiology ecology, 21(1), 47-58.
- Gray, T., Dingler, J., & Wood, G. (2013, May). Multiscale Seabed Seepage Manifestations in the South Caspian Basin, Azerbaijan. In Offshore Technology Conference. Offshore Technology Conference.
- Greinert, J., Artemov, Y., Egorov, V., De Batist, M., & McGinnis, D. (2006). 1300-m-high rising bubbles from mud volcanoes at 2080m in the Black Sea: Hydroacoustic characteristics and temporal variability, Earth and Planetary Science Letters, 244, 1–15, http://dx.doi.org/10.1016/j.epsl.2006.02.011
- Guevara, M., Hawkins, L., Joaquim, L., Johnstone, D., Jones, W., Jose, J. G., & Oliveira, A. (2010). Structural Development and Depositional History of the Lower Congo and Kwanza Basins, Salt Tectonic Province, Angola. AAPG International Conference: May.
- Guilbot, J., Cagnol, J.L., Stankoff, M., Bouroullec, J.L., & Lemasitre, L. (2010). Subsalt Exploration, Appraisal and Development Challenges in Gulf of Guinea: Example of Block 32 - Angola.
- Guiraud, M., Buta-Neto, A., & Quesne, D. (2010). Segmentation and differential post-rift uplift at the Angola margin as recorded by the transform-rifted Benguela and oblique-toorthogonal-rifted Kwanza basins. Marine and Petroleum Geology, 27(5), 1040-1068.

- *Guillon*, S., & Keskes, N. (2004, October). Sismage and the 3d visualization at total. In AAPG International Conference: October (pp. 24-27).
- Gwiazda, R., Paull, C. K., Caress, D. W., Lorenson, T., Brewer, P. G., Peltzer, E. T., & Lundsten, E. (2016). Eel Canyon slump scar and associated fluid venting. In Submarine Mass Movements and their Consequences (pp. 411-418). Springer International Publishing.

## H

- Haacke, R. R., Westbrook, G. K., & Hyndman, R. D. (2007). Gas hydrate, fluid flow and free gas: Formation of the bottom-simulating reflector. Earth and Planetary Science Letters, 261(3), 407-420.
- Haas, A., Peckmann, J., Elvert, M., Sahling, H., & Bohrmann, G. (2010). Patterns of carbonate authigenesis at the Kouilou pockmarks on the Congo deep-sea fan. Marine Geology, 268(1), 129-136.
- Hall, P. A., McKirdy, D. M., Grice, K., & Edwards, D. S. (2014). Australasian asphaltite strandings: Their origin reviewed in light of the effects of weathering and biodegradation on their biomarker and isotopic profiles. Marine and Petroleum Geology, 57, 572-593.
- Haq, B. U., Hardenbol, J., & Vail, P. R. (1987). The new chronostratigraphic basis of Cenozoic and Mesozoic sea level cycles. Timing and depositional history of eustatic sequences: constraints on seismic stratigraphy: Cushman Foundation for Forminiferal Research, Special Publications, 24, 7-13.
- Hanssen, V.L., Duggal., A., MacMillan, A., Wang, L., & Sado, O. (2005). Hydrodynamic and Structural Design Challenges in Benign Areas, Offshore west Africa Conference.
- Harayama, S., Kishira, H., Kasai, Y., & Shutsubo, K. (1999). Petroleum biodegradation in marine environments. Journal of molecular microbiology and biotechnology, 1(1), 63-70.

- Hardman-Mountford, N.J., Richardson, A.J., Agenbag, J.J., Hagen, E., Nykjaer, L., Shillington, F.A., & Villacastin, C. (2003). Ocean climate of the South Esat Atlantic observed from satellite data and wind models, Progress in Oceanography, 59, 181-221, http://dx.doi.org/10.1016/j.pocean.2003.10. 001.
- Hazen, T. C., Dubinsky, E. A., DeSantis, T. Z., Andersen, G. L., Piceno, Y. M., Singh, N., ...
  & Stringfellow, W. T. (2010). Deep-sea oil plume enriches indigenous oil-degrading bacteria. Science, 330(6001), 204-208.
- Hazen, T. C., Prince, R. C., & Mahmoudi, N. (2016). Marine oil biodegradation.
- Head, I. M., Jones, D. M., & Larter, S. R. (2003). Biological activity in the deep subsurface and the origin of heavy oil. Nature, 426(6964), 344-352.
- Heggland, R. (2002). Seismic evidence of vertical fluid migration through faults: applications of chimney and fault detection. In Proceedings from AAPG Hedburg Conference, Vancouver.
- Hessler, R. R., Smithey, W. M., Boudrias, M. A., Keller, C. H., Lutz, R. A., & Childress, J. J. (1988). Temporal change in megafauna at the Rose Garden hydrothermal vent (Galapagos Rift; eastern tropical Pacific). Deep Sea Research Part A. Oceanographic Research Papers, 35(10-11), 1681-1709.
- Hill, A.J., Fish, P.R., & Thomas, S. (2010), Deepwater Angola geohazard mitigation.
- Hill, A. J., Southgate, J. G., Fish, P. R., & Thomas, S. (2011). Deepwater Angola part I: Geohazard mitigation. Frontiers in Offshore Geotechnics II, 209-214.
- Hill, A. J., Evans, T. G., Mackenzie, B., & Thompson, G. (2011). Deepwater Angola part II: Geotechnical Challenges. Frontiers in Offshore Geotechnics II, 215-220.
- Hodgson, N. A., Farnsworth, J., & Fraser, A. J. (1992). Salt-related tectonics, sedimentation and hydrocarbon plays in the Central Graben, North Sea, UKCS. Geological

Society, London, Special Publications, 67(1), 31-63.

- Ho, S., Carruthers, D., & Imbert, P. (2016). Insights into the permeability of polygonal faults from their intersection geometries with Linear Chimneys: a case study from the Lower Congo Basin. Carnets Geol., 16(02), 17.
- Ho, S., Cartwright, J.A., & Imbert, P. (2012). Vertical evolution of fluid venting structures in relation to gas flux, in the Neogene, Quaternary of the Lower Congo Bain, Offshore Angola.
- Hood, K. C., Wenger, L. M., Gross, O. P., & Harrison, S. C. (2002). Hydrocarbon systems analysis of the northern Gulf of Mexico: Delineation of hydrocarbon migration pathways using seeps and seismic imaging. Surface exploration case histories: Applications of geochemistry, magnetics, and remote sensing: AAPG Studies in Geology, 48, 25-40.
- Holmes, M.E., Schneider, R.R., & Müller, P.J. (1997). Reconstruction of past nutrient utilization in the eastern Angola Basin based on sedimentary 15N/14N ratio1997, Paleoceanography, 12:4, 604-614.
- Hopkins, J., Lucas, M., Dufau, C., Sutton, M., & Stum, J. (2013). Detection and variability of the Congo River plume from satellite derived sea surface temperature, salinity, ocean colour and sea level. Remote Sensing of Environment, 139, 365-385.
- Hornafius, J. S., Quigley, D., & Luyendyk, B.P. (1999). The world's most spectacular marine hydrocarbon seeps (Coal Oil Point, Santa Barbara Channel, California): Quantification of emissions. Journal of Geophysical Research: Oceans, 104(C9), 20703-20711.
- Hovland, M. (1981). A classification of pockmark related features in the Norwegian Trench. IKU, Institutt for Kontinentalsokkelundersøkelser.
- Hovland, M. (2002). On the self-sealing nature of marine seeps. Continental Shelf Research, 22(16), 2387-2394.

- Hovland, M., Hill, A., & Stokes, D. (1997). The structure and geomorphology of the Dashgil mud volcano, Azerbaijan. Geomorphology, 21(1), 1-15.
- Hovland., M., & Irwin., H. (1992). Habitat of Methanogenic Carbonate cemented sediments in the North Sea, Bacterial Gas, 157–172.
- Hovland, M., & Judd, A. G. (1988). Seabed pockmarks and seepages: Impact on geology, biology and the marine environment: London. Graham and Trotman, 293p.
- Hovland, M., Judd, A. G., & King, L. H. (1984). Characteristic features of pockmarks on the North Sea Floor and Scotian Shelf. Sedimentology, 31(4), 471-480.
- Hovland, M., Talbot, M.R., Qvale, H., Olaussen, S., & Assberg, L. (1987). Methane-related carbonate cements in pockmarks of the North Sea, Journal of Sedimentary Petrology, 57:5, 881 - 892.
- Hovland, M., Heggland, R., De Vries, M.H., & Tjelta, T.I. (2010). Unit-pockmarks and their potential significance for predicting fluid flow, Marine and Petroleum Geology 27, 1190 – 1199, doi:10.1016/j.marpetgeo.2010.02.005.
- Hovland, M., MacDonald, I., Rueslåtten, H., Johnsen, H. K., Naehr, T., & Bohrmann, G. (2005). Chapopote asphalt volcano may have been generated by supercritical water. Eos, 86(42), 397-402.
- Hovland, M., & Svensen, H. (2006). Submarine pingoes: Indicators of shallow gas hydrates in a pockmark at Nyegga, Norwegian Sea, Marine Geology 228, pp.15–23.
- Hu, C., Li, X., Pichel, W.G., & Muller-Karger, F.E. (2009). Detection of natural slicks in the NW Gulf of Mexico using MODIS imagery, Geophysical Research Letters, 36, http://dx.doi.org/10.1029/2008GL036119.
- Hu, L., Yvon-Lewis, S.A., Kessler, J.D., & MacDonald, I.R. (2012). Methane fluxes to the atmosphere from deepwater hydrocarbon seeps in the northern Gulf of

Mexico. Journal of Geophysical Research: Oceans, 117(C1).

- Hudec, M. R., & Jackson, M. P. (2004). Regional restoration across the Kwanza Basin, Angola: Salt tectonics triggered by repeated uplift of a metastable passive margin. AAPG bulletin, 88(7), 971-990.Hudson, J. D. (1977). Stable isotopes and limestone lithification. Journal of the Geological Society, 133(6), 637-660.
- Hudson, J. D. (1977). Stable isotopes and limestone lithification. Journal of the Geological Society, 133(6), 637-660.
- Huene, R., & Scholl, D. W. (1991). Observations at convergent margins concerning sediment subduction, subduction erosion, and the growth of continental crust. Reviews of Geophysics, 29(3), 279-316.
- Hustoft, S., Dugan, B., & Mienert, J. (2009). Effects of rapid sedimentation on developing the Nyegga pockmark field: Constraints from hydrological modeling and 3-D seismic data, offshore mid-Norway. Geochemistry, Geophysics, Geosystems, 10(6).
- Huuse, J. D., Palmer, C., & Cole, V. (2014, June). Deepwater Papua New Guinea-Evidence for a Working Petroleum System. In 76th EAGE Conference and Exhibition 2014.

## Ī

- Imbert, P., & Ho, S. (2012). Seismic-scale funnelshaped collapse features from the Paleocene–Eocene of the North West Shelf of Australia. Marine Geology, 332, 198-221.
- Ingram, W. C., Meyers, S. R., Brunner, C. A., & Martens, C. S. (2010). Late Pleistocene– Holocene sedimentation surrounding an active seafloor gas-hydrate and cold-seep field on the Northern Gulf of Mexico Slope. Marine Geology, 278(1), 43-53.
- Ivanov, M. V., Lein, A. Y., Reeburgh, M. S., & Skyring, G.W. (1989). Interaction of sulphur and carbon cycles in marine sediments. Evolution of the Global Biogeochemical Sulphur Cycle. Wiley, Chichester, 125-79.

Ivanov, A.Y., Gobulov, B.N., & Zatyagalova, B.B. (2007). On oil and gas seeps and underground fluid discharges in the Southern Caspian based on Space Radar Data, Earth Exploration from Space, 2, 62-81.

## <u>J</u>

- Jackson, C. R., & Apel, J. R. (2004). Synthetic aperture radar: marine user's manual. US Department of Commerce, National Oceanic and Atmospheric Administration, National Environmental Satellite, Data, and Information Serve, Office of Research and Applications.
- Jackson, M. P., Cramez, C., & Fonck, J. M. (2000). Role of subaerial volcanic rocks and mantle plumes in creation of South Atlantic margins: implications for salt tectonics and source rocks. Marine and Petroleum Geology, 17(4), 477-498.
- Jackson, M., & Hudec, M. (2009, October). Interplay of basement tectonics, salt tectonics, and sedimentation in the Kwanza Basin, Angola. In AAPG Search and Discovery Article 30091, presented at the AAPG International Conference and Exhibition, Cape Town, South Africa (pp. 26-29).
- Jackson, C. A. L., & Lewis, M. M. (2012). Origin of an anhydrite sheath encircling a salt diapir and implications for the seismic imaging of steep-sided salt structures, Egersund Basin, Northern North Sea. Journal of the Geological Society, 169(5), 593-599.
- Jackson, C.R., da Silva, J.C., Jeans, G., Alpers, W., & Caruso, M.J. (2013). Nonlinear internal waves in synthetic aperture radar imagery. Oceanography, 26(2), 68-79, http://dx.doi.org/10.5670/ oceanog.2013.32.
- Jackson, M. P., Vendeville, B. C., & Schultz-Ela, D. D. (1994). Structural dynamics of salt systems. Annual Review of Earth and Planetary Sciences, 22(1), 93-117.
- Jansen, J. H. F. (1985). Hiatuses in Mesozoic and Cenozoic sediments of the Zaire (Congo)

continental shelf, slope, and deep-sea fan. South Atlantic Paleoceanography (Eds KJ Hsu and HJ Weissert), 197-204.

- Jatiault, R., Dhont, D., Loncke, L., & Dubucq, D. (2017). Monitoring of natural oil seepage in the Lower Congo Basin using SAR observations. Remote Sensing of Environment, 191, 258 - 272. http://dx.doi.org/10.1016/j.rse.2017.01.031.
- Jatiault, R., Dhont, D., Loncke, L., Durrieu de Madron, X., Dubucq, D., Channeliere, C., & Bourrin, F. (submitted). Dynamic behavior of natural oil droplets through the water column in deep-water environments: The case of the Lower Congo Basin. Submitted to Deep Sea Research Part I.
- Jatiault, R., Loncke, L., Dhont, D., Imbert, P., & Dubucq, D. (accepted). Geophysical characterisation of an active oil seep in the Lower Congo Basin. To be published in Marine and Petroleum Geology.
- Jauer, C. D., & Budkewitsch, P. (2010). Old marine seismic and new satellite radar data: Petroleum exploration of north west Labrador Sea, Canada. Marine and Petroleum Geology, 27(7), 1379-1394. doi:10.1016/j.marpetgeo.2010.03.003.
- Johansen, Ø., Rye, H., & Cooper, C. (2003). DeepSpill—field study of a simulated oil and gas blowout in deep water. Spill Science & Technology Bulletin, 8(5), 433-443.
- Johannessen., O. M., Sandven, M., Jenkins, A. D., Durand, D., Petterson, L. H., Espedal, H., Evensen, G., & Hamre, T. (2000). Satellite earth observation in operational oceanography, Coastal Engineering, 41, 155-176.
- Jones, D. M., Head, I. M., Gray, N. D., Adams, J. J., Rowan, A. K., Aitken, C. M., & Oldenburg, T. (2008), Crude-oil biodegradation via methanogenesis in subsurface petroleum reservoirs. Nature, 451(7175), 176-180.
- Jones, D.O.B. Walls, A., Clare, M., Fiske, M.S., Weiland, R.J., O'Brien, R., & Touzel, D.F. (2014). Asphalt mounds and associated biota on the Angolan margin, Deep-Sea

*Research I, http://dx.doi.org/10.1016/j.dsr.2014.08.010.* 

- Josenhans, H. W., Ki Hovland, M., & Judd, A. (1988). Seabed pockmarks and seepages: impact on geology, biology, and the marine environment. Springer.ng, L. H., & Fader, G. B. (1978). A side-scan sonar mosaic of pockmarks on the Scotian Shelf. Canadian Journal of Earth Sciences, 15(5), 831-840.
- Joye, S. B., Boetius, A., Orcutt, B. N., Montoya, J. P., Schulz, H. N., Erickson, M. J., & Lugo, S. K. (2004). The anaerobic oxidation of methane and sulfate reduction in sediments from Gulf of Mexico cold seeps. Chemical Geology, 205(3), 219-238.
- Judd, A. G. (2003). The global importance and context of methane escape from the seabed. Geo-Marine Letters, 23(3-4), 147-154. DOI 10.1007/s00367-003-0136-z.
- Judd, A., & Hovland, M. (2009). Seabed fluid flow: the impact on geology, biology and the marine environment. Cambridge University Press.

## <u>K</u>

- Kar, Y. (2006). Importance of asphaltite deposits in southeastern Anatolia. Energy Sources, Part A, 28(14), 1343-1352.
- Karantzalos, K., & Argialas, D. (2008). Automatic detection and tracking of oil spills in SAR imagery with level set segmentation. International Journal of Remote Sensing, 29(21), 6281-6296.
- Karner, G. D., Driscoll, N. W., McGinnis, J. P., Brumbaugh, W. D., & Cameron, N. R. (1997). Tectonic significance of syn-rift sediment packages across the Gabon-Cabinda continental margin. Marine and Petroleum Geology, 14(7-8), 973-1000.
- Karstens, J., & Berndt, C. (2015). Seismic chimneys in the Southern Viking Graben– Implications for palaeo fluid migration and overpressure evolution. Earth and Planetary Science Letters, 412, 88-100.
- Keller, E. A., Duffy, M., Kennett, J. P., & Hill, T. (2007). Tectonic geomorphology and

hydrocarbon induced topography of the mid-channel Anticline, Santa Barbara Basin, California. Geomorphology, 89(3), 274-286.

- Killops, S., & Killops, V. (2005). Introduction to Organic Geochemistry, 2nd edn (paperback). Geofluids, 5(3), 236-237.
- *Killops*, S. D., & Killops, V. J. (2013). Introduction to organic geochemistry. John Wiley & Sons.
- Kim, T.H., Yang, C.S., Oh, J.H., & Ouchi, K. (2014). Analysis of the Contribution of Wind drift factor to oil slick Movment under strong tidal condition. Hebei Spirit Oil Spill Case. Plos ONE, 9(1), e87393.
- King, L.H., & MacLean, B. (1970). Pockmark on the Scotian Shelf, Geological Society of America Bulletin, V.81, P.3141-3148.
- Kleindienst, S., & Joye, S. B. (2017). Global Aerobic Degradation of Hydrocarbons in Aquatic Systems. Aerobic Utilization of Hydrocarbons, Oils and Lipids, 1-18.
- Knittel, K., & Boetius, A. (2009). Anaerobic oxidation of methane: progress with an unknown process. Annual review of microbiology, 63, 311-334.
- *Koh*, C. A., & Sloan, E. D. (2007). Natural gas hydrates: Recent advances and challenges in energy and environmental applications. AIChE journal, 53(7), 1636-1643.
- Kopte, R., Brandt, P., Dengler, M., Tchipalanga, P. C. M., Macuéria, M., & Ostrowski, M. (2017). The Angola Current: Flow and hydrographic characteristics as observed at 11° S. Journal of Geophysical Research: Oceans.
- Korber, J.H., Sahling, H., Pape, T., dos Santos Fereira, C., MacDonald, I., & Bohrmann, G. (2014). Natural oil seepage at Kobuleti Ridge, eastern Black Sea. Marine and Petroleum Geology, 50, 68- 82, http://dx.doi.org/10.1016/j.marpetgeo.2013. 11.007.
- Kornacki, A.S., Kendrick, J.W., & Berry, J.L. (1994). Impact of oil and gas vents and slicks on petroleum exploration in the

deepwater Gulf of Mexico, Geo-Marine Letters, 14, 160-169.

- Korotenko, K. A. (2016). High-Resolution Numerical Model for Predicting the Transport and Dispersal of Oil Spill in Result of Accidental Deepwater Blowout in the Black Sea. In The 26th International Ocean and Polar Engineering Conference. International Society of Offshore and Polar Engineers.
- Khripounoff, A., Caprais, J. C., Decker, C., Essirard, M., Le Bruchec, J., Noel, P., & Olu, K. (2015). Variability in gas and solute fluxes through deep-sea chemosynthetic ecosystems inhabited by vesicomyid bivalves in the gulf of Guinea. Deep Sea Research Part I: Oceanographic Research Papers, 95, 122-130.
- Kvenvolden, K. A., & Barnard, L. A. (1983). Hydrates of natural gas in continental margins. Studies in continental margin geology, 34, 631-640.
- Kvenvolden K.A., & Cooper C.K. (2003). Natural seepage of crude oil into the marine environment, Geo-Marine Letters, 23, 140-146, http://dx.doi.org/10.1007/s00367-003-0135-0.
- Kvenvolden, K.A., & Harbaugh, J.W. (1983). "Reassessment of the Rates at which Oil from Natural Sources Enters the Marine Environment". USGS Staff -- Published Research. Paper 426. http://digitalcommons.unl.edu/usgsstaffpub/ 426.
- Kvenvolden, K. A., & Rogers, B. W. (2005). Gaia's breath—global methane exhalations. Marine and Petroleum Geology, 22(4), 579-590.

### L

Labson, V.F., Clark, R.N., Swayze, G.A., Hoefen, T.M., Kokaly, Raymond., Livo, K.E., Powers, M.H., Plumlee, G.S., & Meeker, G.P. (2010). Estimated minimum discharge rates of the Deepwater Horizon spill— Interim report to the Flow Rate Technical Group from the Mass Balance Team: U.S. Geological Survey Open-File Report 2010– 1132, 4 p.

- Lacava, T., Ciancia, E., Coviello, I., Di Polito, C., Grimaldi, C. S., Pergola, N., ... & Tramutoli, V. (2017). A MODIS-Based Robust Satellite Technique (RST) for Timely Detection of Oil Spilled Areas. Remote Sensing, 9(2), 128.
- Lammoglia, T., & de Souza Filho, C. R. (2012). Mapping and characterization of the API gravity of offshore hydrocarbon seepages using multispectral ASTER data. Remote Sensing of Environment, 123, 381-389. doi:10.1016/j.rse.2012.03.026.
- Landeau, M., Deguen, R., & Olson, P. (2014). Experiments on the fragmentation of a buoyant liquid volume in another liquid. Journal of Fluid Mechanics, 749, 478-518.
- Langhi, L., Zhang, Y., Gartrell, A., Underschultz, J., & Dewhurst, D. (2010). Evaluating hydrocarbon trap integrity during fault reactivation using geomechanical threedimensional modeling: An example from the Timor Sea, Australia. AAPG bulletin, 94(4), 567-591.
- Larter, S., Wilhelms, A., Head, I., Koopmans, M., Aplin, A., Di Primio, R., & Telnaes, N. (2003). The controls on the composition of biodegraded oils in the deep subsurface part 1: biodegradation rates in petroleum reservoirs. Organic Geochemistry, 34(4), 601-613.
- Larter, S., Huang, H., Adams, J., Bennett, B., Jokanola, O., Oldenburg, T., & Fowler, M. (2006). The controls on the composition of biodegraded oils in the deep subsurface: Part II—Geological controls on subsurface biodegradation fluxes and constraints on reservoir-fluid property prediction1. AAPG bulletin, 90(6), 921-938.
- Lass, H.U., Schmidt, M., Mohrholz, V., & Nausch, G. (2000). Hydrographic and Current Measurements in the Area of the Angola– Benguela Front, Journal of Physical Oceanography, 30, 2589 – 2609.
- Le Quéré, C.R., Moriarty, R., Andrew, R.M., Canadell, J.G., Sitch, S., Korsbakken, J.I., Friedlingstein, P., Peters, G.P., Andres,
R.J., Boden, T.A., Houghton, R.A., House, J.I., Keeling, R.F., Tans, P., Arneth, A., Bakker, D.C.E., Barbero , L., Bopp, L., Chang, J., Chevallier, F., Chini, L.P., Ciais, P., Fader, M., Feely, R.A., Gkritzalis, T., Harris, I., Hauck, J., Ilyina, T., Jain, A.K., Kato, E., Kitidis, V., Klein Goldewijk, K., Koven, C., Landschützer, P., Lauvset, S.K., Lefèvre, N., Lenton, A., Lima, I.D., Metzl, N., Millero, F., Munro, D.R., Murata, A., Nabel, J.E.M.S., Nakaoka, S., Nojiri, Y., O'Brien, K., Olsen, A., Ono, T., Pérez, F.F., Pfeil, B., Pierrot, D., Poulter, B., Rehder, G., Rödenbeck, C., Saito, S., Schuster, U., Schwinger, J., Séférian, R., Steinhoff, T., Stocker, B.D., Sutton, A.J., Takahashi, T., Tilbrook, B., van der Laan-Luijkx, I.T., van der Werf, G.R., van Heuven, S., Vandemark, D., Viovy, N., Wiltshire, A., Zaehle S., & Zeng, N. (2015). "Global Carbon Budget 2015", Earth System Science Data, 7, 349-396, http://dx.doi.org/10.5194/essd-7-349-2015 DOI:10.5194/essd-7-349-2015.

- Le Coz, J., Larrarte, F., Saysset, G., Pierrefeu, G., Brochot, J. F., & Marchand, P. (2009). Mesures hydrologiques par profileur à effet Doppler (ADCP) en France: application aux cours d'eau et aux réseaux urbains. La Houille Blanche, (3), 115-122.
- Le Guilloux, E., Olu, K., Bourillet, J. F., Savoye, B., Iglésias, S. P., & Sibuet, M. (2009). First observations of deep-sea coral reefs along the Angola margin. Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography, 56(23), 2394-2403.
- Lee, G. H., Kim, H. J., Jou, H. T., & Cho, H. M. (2003). Opal- A/opal- CT phase boundary inferred from bottom- simulating reflectors in the southern South Korea Plateau, East Sea (Sea of Japan). Geophysical research letters, 30(24).
- Lehr, W. J. (2001). Review of modeling procedures for oil spill weathering behavior. Advances in Ecological Sciences, 9, 51-90.
- Lehner, P., & De Ruiter, P. A. C. (1977). Structural history of Atlantic margin of Africa. AAPG Bulletin, 61(7), 961-981.

- Lentini, M. R., Fraser, S. I., Sumner, H. S., & Davies, R. J. (2010). Geodynamics of the central South Atlantic conjugate margins: implications for hydrocarbon potential. Petroleum Geoscience, 16(3), 217-229.
- Lessard-Pilon, S., Porter, M. D., Cordes, E. E., MacDonald, I., & Fisher, C. R. (2010). Community composition and temporal change at deep Gulf of Mexico cold seeps. Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography, 57(21), 1891-1903.
- Leifer, I., & MacDonald, I. (2003). Dynamics of the gas flux from shallow gas hydrate deposits: interaction between oily hydrate bubbles and the oceanic environment, Earth and Planetary Science Letters 210 (2003) p 411-424.
- Leifer, I., Boles, J.R., Luyendyk, B.P., & Clark, J.F. (2004). Transient discharges from marine hydrocarbon seeps: spatial and temporal variability, Environmental Geology, 46, 1038-1052, http://dx.doi.org/10.1007/s00254-004-1091-3.
- Leifer, I., Lehr, W.J., Simecek-Beatty, D., Bradley, E., Clark, R;, Dennison, P., Hu, Y, Matheson, S., Jones, C.E., Holt, B., Reif, M., Roberts, D.A., Svejkovsky, J., Swayze, G., & Wozencraft, J. (2012). State of the art satellite and airborne marine oil spill remote sensing: Application to the BP Deepwater Horizon oil spill, Remote Sensing of Environment, 124, 185-209, http://dx.doi.org/10.1016/j.rse.2012.03.024.
- Leifer, I., Luyendyk, B. P., Boles, J., & Clark, J. F. (2006). Natural marine seepage blowout: Contribution to atmospheric methane. Global biogeochemical cycles, 20(3).
- Leifer, I., & Patro, R. K. (2002). The bubble mechanism for methane transport from the shallow sea bed to the surface: A review and sensitivity study. Continental Shelf Research, 22(16), 2409-2428.
- León, R., Somoza, L., Medialdea, T., Maestro, A., Díaz-del-Río, V., & del Carmen Fernández-Puga, M. (2006). Classification of sea-floor features associated with methane seeps

along the Gulf of Cádiz continental margin. Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography, 53(11), 1464-1481.

- León, R., Somoza, L., Medialdea, T., Hernández-Molina, F. J., Vázquez, J. T., Díaz-del-Rio, V., & González, F. J. (2010). Pockmarks, collapses and blind valleys in the Gulf of Cádiz. Geo-Marine Letters, 30(3-4), 231-247. DOI 10.1007/s00367-009-0169-z.
- Levy, E. M., & Ehrhardt, M. (1981). Natural seepage of petroleum at Buchan Gulf, Baffin Island. Marine Chemistry, 10(4), 355-364.
- Li, L., Liu, H., Zhang, X., Lei, X., & Sha, Z. (2015). BSRs, estimated heat flow, hydraterelated gas volume and their implications for methane seepage and gas hydrate in the Dongsha region, northern South China Sea. Marine and Petroleum Geology, 67, 785-794.
- Lobo, F. J., & Ridente, D. (2013). Milankovitch cyclicity in modern continental margins: stratigraphic cycles in terrigenous shelf settings. Boletín Geológico y. Minero, 124(2), 169-185.
- Loncke, L., Gaullier, V., Mascle, J., Vendeville, B., & Camera, L. (2006). The Nile deep-sea fan: an example of interacting sedimentation, salt tectonics, and inherited subsalt paleotopographic features. Marine and Petroleum Geology, 23(3), 297-315.
- Loncke, L., Mascle, J., & Fanil Scientific Parties (2004). Mud volcanoes, gas chimneys, pockmarks and mounds in the Nile deep-sea fan (Eastern Mediterranean): geophysical evidences. Marine and Petroleum Geology, 21, pp 669 – 689, doi:10.1016/j.marpetgeo.2004.02.004.
- Loseth, H., Gading, M., & Wensaas, L. (2009). Hydrocarbon leakage interpreted on seismic data. Marine and Petroleum Geology, 26(7), 1304-1319.
- Loseth, H., Wensaas, L., Arntsen, B., Hanken, N., Basire, C., & Graue, K. (2001, June). 1000 m long gas blow-out pipes. In 63rd EAGE Conference & Exhibition.

- Loseth, H., Wensaas, L., Arntsen, B., Hanken, N. M., Basire, C., & Graue, K. (2011). 1000 m long gas blow-out pipes. Marine and Petroleum Geology, 28(5), 1047-1060.
- Lu, Y., Zhou, Y., Liu, Y., Mao, Z., Qian, W., Wang, M., ... & Du, P. (2017). Using remote sensing to detect the polarized sunglint reflected from oil slicks beyond the critical angle. Journal of Geophysical Research: Oceans.
- Lucazeau, F., Brigaud, F., & Bouroullec, J-L. (2004). High-resolution heat flow density in the lower Congo basin, Geochemistry, Geophysics, Geosystems, 5, http://dx.doi.org/10.1029/2003GC000644.
- Lynn, R.J. (1971). On Potential Density in the Deep South Atlantic Ocean, Journal of Marine research, 29, 171–177.
- Lyons, W. B., & Gaudette, H. E. (1979). Sulfate reduction and the nature of organic matter in estuarine sediments. Organic Geochemistry, 1(3), 151-155.

#### M

- MacDonald, I. R., Boland, G. S., Baker, J. S., Brooks, J. M., Kennicutt, M. C., & Bidigare, R. R. (1989). Gulf of Mexico hydrocarbon seep communities. Marine Biology, 101(2), 235-247.
- MacDonald, I. R., Bohrmann, G., Escobar, E., Abegg, F., Blanchon, P., Blinova, V., ... & Heeschen, K. (2004). Asphalt volcanism and chemosynthetic life in the Campeche Knolls, Gulf of Mexico. Science, 304(5673), 999-1002.
- MacDonald, I.R., Guinasso, N.L., Ackleson, S.G., Amos, J.F., Duckworth, R., & Sassen, R. (1993). Natural oil slicks in the gulf of Mexico visible from space, Journal of Geophysical Research, 98, 16351 – 16364.
- MacDonald, I.R., Garcia-Pineda, O., Beet, A., Daneshgar Asl, S., Feng, L., Graettinger, G., French-McCay, D., Holmes, J., Hu, C., Huffer, F., Leifer, I., Muller-Karger, F., Solow, A., Silva, M., & Swayze, G. (2015). Natural and unnatural oil slicks in the Gulf

of Mexico. Journal of Geophysical Research: Oceans, 120(12), 8364-8380.

- MacDonald, I.R., Leifer, I., Sassen, R., Stine, P., Mitchell, R., & Guinasso, J.N. (2002). Transfer of hydrocarbons from natural seeps to the water column and atmosphere. Geofluids, 2, 95-107.
- MacDonald, I. R., J. F. Reilly, Jr., S. E. Best, R. Venkataramaiah, R. Sassen, N. L. Guinasso, Jr., & Amos, J. (1996). Remote sensing inventory of active oil seeps and chemosynthetic communities in the northern Gulf of Mexico, in D. Schumacher and M. A. Abrams, eds., Hydrocarbon migration and its near-surface expression: AAPG Memoir, 66, 27–37.
- MacFadyen, A., Watabayashi, G. Y., Barker, C. H., & Beegle- Krause, C. J. (2011). Tactical modeling of surface oil transport during the Deepwater Horizon spill response. Monitoring and Modeling the Deepwater Horizon Oil Spill: A Record-Breaking Enterprise, 167-178.
- Macgregor, D. S. (1993). Relationships between seepage, tectonics and subsurface petroleum reserves. Marine and Petroleum Geology, 10(6), 606-619.
- MacHargue, T.R. (1990). Stratigraphic Development of Proto-South Atlantic Rifting in Cabinda, Angola – A Petroliferous Lake Basin. In Katz, B.J. (Ed.) Lacustrine Basin Exploration Case Studies and Modern Analogs, 50. AAPG Memoir, p.307-326.
- Machel, Н. G. *(2001)*. Bacterial and thermochemical sulfate reduction in settings—old and diagenetic new insights. Sedimentary Geology, 140(1), 143-175.
- MacKay, M. E., Jarrard, R. D., Westbrook, G. K., & Hyndman, R. D. (1994). Origin of bottomsimulating reflectors: geophysical evidence from the Cascadia accretionary prism. Geology, 22(5), 459-462.
- MacLean, B., Falconer, R.K.H., & Levy, E.M. (1981). Geological, Geophysical and chemical evidence for natural seepage of petroleum off the northeast coast of Baffin

Island. Bulletin of Canadian Petroleum Geology, Vol.29 (1), pp 75 – 95.

- Macmahon, J., Pecher, I., Crutchley, G., Mountjoy, J., Krastel, S., & Henrys, S. (2014). Quantitative seismic analysis of double BSRs on the Hikurangi margin.
- Maia, A. R., Cartwright, J., & Andersen, E. (2016). Shallow plumbing systems inferred from spatial analysis of pockmark arrays. Marine and Petroleum Geology, 77, 865-881.
- Marcano, G., Anka, Z., & di Primio, R. (2013). Major controlling factors on hydrocarbon generation and leakage in South Atlantic conjugate margins: A comparative study of Colorado, Orange, Campos and Lower Congo basins, Tectonophysics 604, p 17-190.
- Marcon, Y. (2013). Seabed fluid flow-related processes: evidence and quantification based on high-resolution imaging techniques and GIS analyses (Doctoral dissertation, Bremen, Universität Bremen, Diss., 2013).
- Marcon, Y., Ondréas, H., Sahling, H., Bohrmann, G., & Olu, K. (2014). Fluid flod regimes and growth of a giant pockmark, Geology, Vol.42, Issue 1, pp.63 – 66. http://dx.doi.org/10.1130/G34801.1.
- Marinaro, G., Etiope, G., Lo Bue, N., Favali, P., Papatheodorou, G., Christodoulou, D., Furlan, F., Gasparoni, F., Fenretinos, G., Masson, M., Rolin, J.F. (2006). Monitoring of a methane-seeping pockmark by cabled benthic observatory (Patras Gulf, Greece); Geo-Marine Letters.
- Marinescu, M., Lacatusu, A., Gament, E., Plopeanu, G., Carabulea, V., & Marinescu, M. (2017). A REVIEW OF BIOLOGICAL METHODS TO REMEDIATE CRUDE OIL POLLUTED SOIL. Annals of the University of Craiova-Agriculture, Montanology, Cadastre Series, 46(1), 35-340.
- Marmorino, G. O., Smith, G. B., Toporkov, J. V., Sletten, M. A., Perkovic, D., & Frasier, S. J. (2008). Evolution of ocean slicks under a rising wind. Journal of Geophysical Research: Oceans, 113(C4).

- Marton, G.L., Tari, G. C., & Lehmann, C. T. (2000). Evolution of the Angolan Passive Margin, West Africa, With Emphasis on Post-Salt Structural Styles. Atlantic rifts and continental margins, 129-149.
- Marton, G., Carpenter, D., & Greg, S. (2004). Salt Tectonics of the Continent-Ocean Transition, Deep-Water Angola: Concepts, Applications and Case Studies for the 21st Century, 24th Annual GCSSEPM Foundation Bob F. Perkins Research Conference pp.709 – 735.
- May, P. R. (1971). Pattern of Triassic-Jurassic diabase dikes around the North Atlantic in the context of predrift position of the continents. Geological Society of America Bulletin, 82(5), 1285-1292.
- Mazeika, P. A. (1967). Thermal domes in the eastern tropical Atlantic Ocean. Limnology and Oceanography, 12(3), 537-539.
- McAuliffe, C. D. (1979). Oil and gas migration-chemical and physical constraints. AAPG Bulletin, 63(5), 761-781.
- McBride, B. C., Weimer, P., & Rowan, M. G. (1998). The effect of allochthonous salt on the petroleum systems of northern Green Canyon and Ewing Bank (offshore Louisiana), northern Gulf of Mexico. AAPG bulletin, 82(5), 1083-1112.
- McCandless, S.W., & Jackson, C.R. (2003). Principles of Synthetic Aperture Radar in Synthetic Aperture Radar Marine User's Manual, 1-24.
- McGinnis, D. F., Greinert, J., Artemov, Y., Beaubien, S. E., & Wüest, A. (2006). Fate of rising methane bubbles in stratified waters: How much methane reaches the atmosphere?, Journal of Geophysical Research, 11, 1 – 15, http://dx.doi.org/ 10.1029/2005JC003183.
- *McKelvey*, V. E. (1986). Subsea mineral resources (No. 1689). Dept. of the Interior, US Geological Survey.
- McKenna, E., & Kallio, R. E. (1965). The biology of hydrocarbons. Annual Reviews in Microbiology, 19(1), 183-208.

- Mercier, H., Arhan, M., & Lutjeharms, J. R. (2003). Upper-layer circulation in the eastern Equatorial and South Atlantic Ocean in January–March 1995. Deep Sea Research Part I: Oceanographic Research Papers, 50(7), 863-887. http://dx.doi.org/10.1016/S0967-0637(03)00071-2.
- *Milkov, A. V. (2011).* Worldwide distribution and significance of secondary microbial methane formed during petroleum biodegradation in conventional reservoirs. Organic Geochemistry, 42(2), 184-207.
- Mirajkar, H. N., Tirodkar, S., & Balasubramanian, S. (2015). Experimental study on growth and spread of dispersed particle-laden plume in a linearly stratified environment. Environmental Fluid Mechanics, 15(6), 1241-1262.
- Mishra, S., Wefers, P., Schmidt, M., Knittel, K., Krüger, M., Stagars, M. H., & Treude, T. (2017). Hydrocarbon Degradation in Caspian Sea Sediment Cores Subjected to Simulated Petroleum Seepage in a Newly Designed Sediment-Oil-Flow-Through System. Frontiers in microbiology, 8.
- Mitchell, R., MacDonald, I.R., & Kvenvolden, K.K. (2000). Estimates of total hydrocarbon seepage into the Gulf of Mexico based on satellite remote sensing images. In: Conf Proc 2000 Ocean Sciences Meet 1999, San Antonio, Texas. Am. Geophys Union, vol. OS411-02.
- Mohammedyasin, S. M., Lippard, S. J., Omosanya, K. O., Johansen, S. E., & Harishidayat, D. (2016). Deep-seated faults and hydrocarbon leakage in the Snøhvit Gas Field, Hammerfest Basin, Southwestern Barents Sea. Marine and Petroleum Geology, 77, 160-178.
- Moss, J. L., & Cartwright, J. (2010). 3D seismic expression of km scale fluid escape pipes from offshore Namibia. Basin Research, 22(4), 481-501.
- Moss. J.L., Cartwright, J., & Moore, R. (2012). Evidence for fluid migration following pockmark formation: Examples from the

Nile Deep Sea Fan, Marine Geology 303-306 (2012) 1–13.

- Moroshkin, K.V., Bunov, V.A., & Bulatov, R.P. (1970). Water circulation in the eastern South Atlantic Ocean. Oceanology, 10, 27– 34.
- Moulin, M., Aslanian, D., Olivet, J. L., Contrucci, I., Matias, L., Géli, L., ... & Unternehr, P. (2005). Geological constraints on the evolution of the Angolan margin based on reflection and refraction seismic data (ZaïAngo project). Geophysical Journal International, 162(3), 793-810.
- Moulin, M., Aslanian, D., & Unternehr, P. (2010). A new starting point for the South and Equatorial Atlantic Ocean. Earth-Science Reviews, 98(1), 1-37.
- Mourgues, R., & Cobbold, P.R. (2003). Some tectonic consequences of fluid overpressures and seepage forces as demonstrated by sandbox modelling: Tectonophysics, v. 376, p. 75–97, doi: 10.1016/S0040-1951(03)00348-2.
- *Mourgues*, R. (2003). Surpressions de fluide et décollements. Modélisations analogique et numérique : PhD Thesis, Université de Rennes 1; 264 p.
- Moucha, R., & Forte, A. M. (2011). Changes in African topography driven by mantle convection. Nature Geoscience, 4(10), 707-712.
- Mullineaux, L. S., Fisher, C. R., Peterson, C. H., & Schaeffer, S. W. (2000). Tubeworm succession at hydrothermal vents : use of biogenic cues to reduce habitat selection error? Oecologia, 123(2), 275-284.

# N

Nakajima, T., Kakuwa, Y., Yasudomi, Y., Itaki, T., Motoyama, I., Tomiyama, T., & Tanahashi, M. (2014). Formation of pockmarks and submarine canyons associated with dissociation of gas hydrates on the Joetsu Knoll, eastern margin of the Sea of Japan. Journal of Asian Earth Sciences, 90, 228-242. http://dx.doi.org/10.1016/j.jseaes.2013.10.0 11.

- Naudts, L., Greinert, J., Artemov, Y., Beaubien, S. E., Borowski, C., & De Batist, M. (2008). Anomalous sea-floor backscatter patterns in methane venting areas, Dnepr paleo-delta, NW Black Sea. Marine Geology, 251(3), 253-267.
- Naudts, L., Greinert, J., Artemov, Y., Staelens, P., Poort, J., Van Rensbergen, P., & De Batist, M. (2006). Geological and morphological setting of 2778 methane seeps in the Dnepr paleo-delta, northwestern Black Sea. Marine Geology, 227(3), 177-199. doi:10.1016/j.margeo.2005.10.005.
- Naudts, L., Greinert, J., Poort, J., Belza, J., Vangampelaere, E., Boone, D., & De Batist, M. (2010). Active venting sites on the gashydrate-bearing Hikurangi Margin, off New Zealand: Diffusive-versus bubble-released methane. Marine Geology, 272(1), 233-250. doi:10.1016/j.margeo.2009.08.002.
- National Research Council Committee on Oil in the Sea, (2003). Oil in the Sea III: Inputs, Fates and Effects. (280 pp.). The National Academies Press, Washington, D. C.
- Nemcok, M., Schamel, S., & Gayer, R. (2009). Thrustbelts: Structural architecture, thermal regimes and petroleum systems. Cambridge University Press.
- Nöthen, K., & Kasten, S. (2011). Reconstructing changes in seep activity by means of pore water and solid phase Sr/Ca and Mg/Ca ratios in pockmark sediments of the Northern Congo Fan, Marine Geology 2011, p 1-13.
- Nyblade, A. A., & Robinson, S. W. (1994). The african superswell. Geophysical research letters, 21(9), 765-768.
- Nyamapfumba, M., & McMechan, G. A. (2012). Gas hydrate and free gas petroleum system in 3D seismic data, offshore Angola. Geophysics, 77(6), 055-063.
- Nyman, S. L., Nelson, C. S., Campbell, K. A., Schellenberg, F., Pearson, M. J., Kamp, P. J., ... & King, P. R. (2006). Tubular carbonate concretions as hydrocarbon

migration pathways? Examples from North Island, New Zealand.

### <u>0</u>

- O'Brien, G. W., Lawrence, G. M., Williams, A. K., Glenn, K., Barrett, A. G., Lech, M., & Summons, R. E. (2005). Yampi Shelf, Browse Basin, North-West Shelf, Australia: a test-bed for constraining hydrocarbon migration and seepage rates using combinations of 2D and 3D seismic data and multiple, independent remote sensing technologies. Marine and Petroleum Geology. 517-549. 22(4),doi:10.1016/j.marpetgeo.2004.10.027.
- O'Brien, W. O., & Woods, P. (1994). Vulcan Subbasin, Timor Sea. Clues to the structural reactivation and migration history from the recognition of hydrocarbon seepage indicators. Austral. Geol. Surv. Org. Newsl, 21, 8-11.
- Ondreas, H., Olu, K., Fouquet, Y., Charlou, J.L., Gay, A., Dennielou, B., Donval, J.P., Fifis, A., Nadalig, T., Cochonat, P., Cauquil, E., Bourillet, J.F., Le Moigne, M., & Sibuet, M. (2005). ROV study of a giant pockmark on the Gabon continental margin, Geo-Marine Letters, 25, 281-292, http://dx.doi.org/10.1007/s00367-005-0213-6.
- Olu, K., Cordes, E. E., Fisher, C. R., Brooks, J. M., Sibuet, M., & Desbruyères, D. (2010). Biogeography and potential exchanges among the Atlantic equatorial belt cold-seep faunas. PloS one, 5(8), e11967.
- Olu le Roy, K, Caprais, J. C., Fifis, A., Fabri, M. C., Galeron, J., Budzinsky, H., ... & Sibuet, M. (2007). Cold- seep assemblages on a giant pockmark off West Africa: spatial patterns and environmental control. Marine Ecology, 28(1), 115-130.
- Oluboyo, A.P., Gawthorpe, R.L., Bakke, K., & Hadler-Jacobsen, F. (2014). Salt tectonic controls on deep-water turbidite depositional systems: Miocene, southwestern Lower Congo Basin, offshore Angola, Basin Research 26, 597–620, doi: 10.1111/bre.12051.

Orcutt, B. N., Joye, S. B., Kleindienst, S., Knittel, K., Ramette, A., Reitz, A., ... & Boetius, A. (2010). Impact of natural oil and higher hydrocarbons on microbial diversity, distribution, and activity in Gulf of Mexico cold-seep sediments. Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography, 57(21), 2008-2021.

### <u>P</u>

- Papatheodorou, G., Hasiotis, T., & Ferentinos, G. (1993). Gas-charged sediments in the Aegean and Ionian Seas, Greece. Marine Geology, 112(1-4), 171-184.
- Pattier, F. (2013). Analyse et fonctionnement des sorties de fluide et glissements de la marge transformante Guyane-Surinam (Plateau de Demerara), Couplage avec la structure. Thèse de l'Université de Perpignan Via Domitia.
- *Paull, C. K., & Ussler III, W. (2008). Reevaluating the significance of seafloor accumulations of methane-derived carbonates: seepage or erosion indicators?.*
- Pecher, I., Crutchley, G., Mountjoy, J., Gorman, J., Fraser, D., Kroeger, K., Henrys, S. (2014). Double-BSRs on the Hikurangi Margin: Link Between Gas Hydrates and Conventional Petroleum System?
- **Permanyer**, A., Gallego, J. L. R., Caja, M. A., & Dessort, D. (2010). Crude oil biodegradation and environmental factors at the Riutort oil shale mine, SE Pyrenees. Journal of Petroleum Geology, 33(2), 123-139.
- Perry, RH, & Green DW (1984). Percy's Chemical Engineers' Handbook. 6th Edition, McGraw Hill Book Co. New York, 1984. 2640.
- Perry, R. H., & Green, D. W. (1999). Perry's chemical engineers' handbook. McGraw-Hill Professional.
- Peters, K. E., Walters, C. C., & Moldowan, J. M. (2005). The biomarker guide (Vol. 1). Cambridge University Press.
- Peters, K.E., Walters, C.C., & Moldowan, J.M. (2007). The Biomarker Guide Volume 2,

Biomarkers and Isotopes in Petroleum Systems and Earth History.

- Petersen, C. J., Bünz, S., Hustoft, S., Mienert, J., & Klaeschen, D. (2010). High-resolution P-Cable 3D seismic imaging of gas chimney structures in gas hydrated sediments of an Arctic sediment drift. Marine and Petroleum Geology, 27(9), 1981-1994.
- Peterson, R.G., & Stramma, L. (1991). Upperlevel circulation in the South Atlantic Ocean, Progress in Oceanography, 26, 1-73.
- *Phillipson*, L., & Toumi, R. (2017). Impact of data assimilation on ocean current forecasts in the Angola Basin. Ocean Modelling, 114, 45-58.
- Picaut, J. (1984). Major dynamics affecting the eastern tropical Atlantic and Pacific oceans. California Cooperative Oceanic Fisheries Investigations, Progress Report, 25, 41.
- Pierre, C., & Fouquet, Y. (2007). Authigenic carbonates from methane seeps of the Congo deep-sea fan. Geo-Marine Letters, 27(2-4), 249-257.
- Piggott, N. E. I. L., & Pulham, A. (1993). Sedimentation rate as the control on hydrocarbon sourcing, generation, and migration in the deepwater Gulf of Mexico. In Rates of Geologic Processes, Gulf Coast Section, SEPM Foundation 14th Annual Research Conference (pp. 179-191).
- Pilcher, R., & Argent, J. (2007). Mega-pockmarks and linear pockmark trains on the West African continental margin. Marine Geology, 244(1), 15-32. doi:10.1016/j.margeo.2007.05.002.
- Plaza-Faverola, A., Bünz, S., Johnson, J. E., Chand, S., Knies, J., Mienert, J., & Franek, P. (2015). Role of tectonic stress in seepage evolution along the gas hydrate- charged Vestnesa Ridge, Fram Strait. Geophysical Research Letters, 42(3), 733-742.
- *Popescu*, I., Lericolais, G., Panin, N., De Batist, M., & Gillet, H. (2007). Seismic expression of gas and gas hydrates across the western Black Sea. Geo-Marine Letters, 27(2-4), 173-183.

- Posewang, J., & Mienert, J. (1999). The enigma of double BSRs: indicators for changes in the hydrate stability field?. Geo-Marine Letters, 19(1-2), 157-163.
- Posey, H. H., Kyle, J. R., Jackson, T. J., Hurst, S. D., & Price, P. E. (1987). Multiple fluid components of salt diapirs and salt dome cap rocks, Gulf Coast, USA. Applied geochemistry, 2(5-6), 523-534.
- Price, J. M., Reed, M., Howard, M. K., Johnson, W. R., Ji, Z. G., Marshall, C. F., ... & Rainey, G. B. (2006). Preliminary assessment of an oil-spill trajectory model using satellite-tracked, oil-spill-simulating drifters. Environmental Modelling & Software, 21(2), 258-270.
- Prince, R. C., McFarlin, K. M., Butler, J. D., Febbo, E. J., Wang, F. C., & Nedwed, T. J. (2013). The primary biodegradation of dispersed crude oil in the sea. Chemosphere, 90(2), 521-526.
- Prince, R. C., Lessard, R. R., & Clark, J. R. (2003). Bioremediation of marine oil spills. Oil & Gas Science and Technology, 58(4), 463-468.
- Prince, R. C., & Walters, C. C. (2007). Biodegradation of oil hydrocarbons and its implications for source identification-11.

## <u>0</u>

Qi, Y., Wu, W., Liu, Y., Xie, Y., & Chen, X. (2012). The influence of NaCl ions on hydrate structure and thermodynamic equilibrium conditions of gas hydrates. Fluid Phase Equilibria, 325, 6-10.

### <u>R</u>

Ramirez-Llodra, E., & Segonzac, M. (2006). Reproductive biology of Alvinocaris muricola (Decapoda: Caridea: Alvinocarididae) from cold seeps in the Congo Basin. Journal of the Marine Biological Association of the United Kingdom, 86(06), 1347-1356.

- Reed, M., Johansen, Ø., Brandvik, P. J., Daling, P., Lewis, A., Fiocco, R., & Prentki, R. (1999). Oil spill modeling towards the close of the 20th century: overview of the state of the art. Spill Science & Technology Bulletin, 5(1), 3-16.
- Rehder, G., Brewer., P.W., Peltzer, E.T., & Friederich, G. (2002). Enhanced lifetime of methane bubble streams within the deep ocean, Geophysical Research Letters, 29:15, 1731.
- **Riboulot**, V. (2011). Facteurs de contrôle du fonctionnement des pockmarks durant les derniers cycles climatiques, Partie orientale du delta sous-marin du Niger et Golfe du Lion. Université de Perpignan Via Domitia, Ecole Doctorale Energie Environnement, 243p.
- *Riboulot*, V., Sultan, N., Imbert, P., & Ker, S. (2016). Initiation of gas-hydrate pockmark in deep-water Nigeria: Geo-mechanical analysis and modelling. Earth And Planetary Science Letters, 434, 252-263.
- *Roberts*, A. (2001). Curvature attributes and their application to 3 D interpreted horizons. First break, 19(2), 85-100.
- Roberts, H.H. (2001). Fluid and Gas Expulsion on the Northern Gulf of Mexico Continental Slope: Mud-Prone to Mineral-Prone Responses. Natural Gas Hydrates: Occurrence, Distribution, and Detection Geophysical, Wasinhgton DC, Vol.124 pp.145-161.
- **Roberts**, H.H., Hardage, B.A., & Shedd, W.W. (2006). Seafloor reflectivity - An important seismic property for interpreting fluid/gas expulsion geology and the presence of gas hydrate. The Leading Edge, pp.620 – 628.
- Rollet, N., Logan, G.A., Kennard, J.M., O'Brien, P.E., Jones, A.T., & Sexton, M. (2006). Characterization and correlation of active hydrocarbon seepage using geophysical data sets: An example from the tropical, carbonate Yampi Shelf, Northwest Australia, Marine and Petroleum Geology, 23, 145– 164.
- Romero, I. C., Toro-Farmer, G., Diercks, A. R., Schwing, P., Muller-Karger, F., Murawski,

S., & Hollander, D. J. (**2017**). Large-scale deposition of weathered oil in the Gulf of Mexico following a deep-water oil spill. Environmental Pollution, 228, 179-189.

- *Römer*, M., Sahling, H., Pape, T., Bahr, A., Feseker, T., Wintersteller, P., & Bohrmann, G. (2012). Geological control and magnitude of methane ebullition from a high-flux seep area in the Black Sea—the Kerch seep area. Marine Geology, 319, 57-74. http://dx.doi.org/10.1016/j.margeo.2012.07. 005.
- *Römer*, M., Sahling, H., Pape, T., dos Santos Ferreira, C., Wenzhöfer, F., Boetius, A., & Bohrmann, G. (2014). Methane fluxes and carbonate deposits at a cold seep area of the Central Nile Deep Sea Fan, Eastern Mediterranean Sea. Marine Geology, 347, 27-42. http://dx.doi.org/10.1016/j.margeo.2013.10. 011.
- **Ross**, D. A. (2012). Opportunities and uses of the ocean. Springer Science & Business Media.
- Rowan, M. G., & Weimer, P. (1998). Salt-sediment interaction, northern Green Canyon and Ewing bank (offshore Louisiana), northern Gulf of Mexico. AAPG bulletin, 82(5), 1055-1082.
- *Rowe*, F., & Young, J. (**1979**). An ocean current profiler using Doppler sonar, Oceans '79 Proceedings.
- Ryan, J. P., Fischer, A. M., Kudela, R. M., McManus, M. A., Myers, J. S., Paduan, J. D., ... & Zhang, Y. (2010). Recurrent frontal slicks of a coastal ocean upwelling shadow. Journal of Geophysical Research: Oceans, 115(C12).

## S

Sager, W. W., MacDonald, I. R., & Hou, R. (2003). Geophysical signatures of mud mounds at hydrocarbon seeps on the Louisiana continental slope, northern Gulf of Mexico. Marine Geology, 198(1), 97-132.

- Sahling, H., Bohrmann, G., Spiess, V., Bialas, J., Breitzke, M., Ivaniov, I., Kasten, S., Krastel, S., & Schneider, R. (2008). Pockmarks in the Northern Congo Fan area, SW Africa: Complex seafloor features shaped by fluid flow, Marine Geology, 249, 206-225, http://dx.doi.org/10.1016/j.margeo.2007.11. 010.
- Sahling, H., Blum, M. R., Borowski, C., Escobar-Briones, E., Gaytán-Caballero, A., Hsu, C. W., ... & Römer, M. (2016). Seafloor observations at Campeche Knolls, southern Gulf of Mexico: coexistence of asphalt deposits, oil seepage, and gas venting.
- Santos, F., Gomez-Gesteira, M., & Alvarez, I. (2012). Differences in coastal and oceanic SST trends due to the strengthening of coastal upwelling along the Benguela current system. Continental Shelf Research, 34, 79-86.
- Sassen, R., Cole, G. A., Drozd, R., & Roberts, H. Н. *(1994)*. Oligocene to Holocene hydrocarbon migration and salt-dome Gulf carbonates, northern of Mexico. Marine and Petroleum Geology, 11(1), 55-65.
- Sassen, R., Sweet, S. T., Milkov, A. V., DeFreitas, D. A., Kennicutt, M. C., & Roberts, H. H. (2001). Stability of thermogenic gas hydrate in the Gulf of Mexico: Constraints on models of climate change. Natural gas hydrates: occurrence, distribution, and detection, 131-143.
- Savoye, B., Babonneau, N., Dennielou, B., & Bez, M. (2009). Geological overview of the Angola–Congo margin, the Congo deep-sea fan and its submarine valleys. Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography, 56(23), 2169-2182.
- Savoye, B., Cochonat, P., Apprioual, R., Bain, O., Baltzer, A., Bellec, V., ... & Crusson, A. (2000). Structure et évolution récente de l'éventail turbiditique du Zaïre: premiers résultats scientifiques des missions d'exploration Zaïangol & 2 (marge Congo– Angola). Comptes Rendus de l'Académie des Sciences-Series IIA-Earth and Planetary Science, 331(3), 211-220.

- Schito, A., Corrado, S., Aldega, L., & Grigo, D. (2016). Overcoming pitfalls of vitrinite reflectance measurements in the assessment of thermal maturity: the case history of the lower Congo basin. Marine and Petroleum Geology, 74, 59-70.
- Schneider, R.R., Müller, P.J., Ruhland, G., Meinecke, G., Schmidt, H., & Wefer, G. (1996). Late Quaternary Surface Temperatures and Productivity in the East-Equatorial South Atlantic: Response to Changes in Trade/ Monsoon Wind Forcing and Surface Water Advection in Wefer, G., Berger, W.H., Siedler, G., Webb, O.J., 1996, The South Atlantic: Present and Past Circulation, 527 – 551.
- Schoellkopf, N. B., & Patterson, B.A. (2000). Petroleum systems of offshore, Cabinda, Angola, in M. R. Mello and B. J. Katz, Petroleum systems of South Atlantic margins: AAPG Memoir 73, 361–376.
- Schroot, B. M., & Schüttenhelm, R. T. (2003). Shallow gas and gas seepage: expressions on seismic and otheracoustic data from the Netherlands North Sea. Journal of Geochemical Exploration, 78, 305-309.
- Seewald, J. S. (2003). Organic–inorganic interactions in petroleum-producing sedimentary basins. Nature, 426(6964), 327-333.
- Séranne M. (1999). Early Oligocene stratigraphic turnover on the west Africa continental margin: a signature of the Tertiary greenhouse-to-icehouse transition? - Terra Nova, 11, 135 - 140.
- М.. Nzé-Abeigne, C.R.(1999). Séranne. Oligocene to Holocene sediment drifts and bottom currents on the slope of Gabon continental margin (west Africa). for sedimentation Consequences and southeast Atlantic upwelling, Sedimentary Geology 128, p. 179 – 199.
- Séranne M., Séguret M. & Fauchier M. (1992). -Seismic super-units and post-rift evolution of the continental passive margin of southern Gabon. - Bulletin de la Société Géologique de France, 163, 2, 135 - 146.

- Séranne, M., & Anka, Z. (2005). South Atlantic continental margins of Africa: a comparison of the tectonic vs climate interplay on the evolution of equatorial west Africa and SW Africa margins. Journal of African Earth Sciences, 43(1), 283-300.
- Serié, C., Huuse, M., Schødt, N. H., Brooks, J. M., & Williams, A. (2016). Subsurface fluid flow in the deep-water Kwanza Basin, offshore Angola. Basin Research.
- *Shanks*, W. C. (**1995**). Mid-Ocean Ridges-Rebirth of a Sea-Floor Vent. Nature, 375(6526), 18-19.
- Shank, T. M., Fornari, D. J., Von Damm, K. L., Lilley, M. D., Haymon, R. M., & Lutz, R. A. (1998). Temporal and spatial patterns of biological community development at nascent deep-sea hydrothermal vents (9 50' N, East Pacific Rise). Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography, 45(1), 465-515.
- Shannon., L.V. (2001). Benguela Current, in Ocean Currents: a derivative of encyclopedia of Ocean Sciences, 2<sup>nd</sup> Edition, p. 23-34.
- Shillington, F.A., Reason, C., Duncombe Rae, C.M., Florenchie, P., & Penven, P. (2006). Large Scale Physical Variability of the Benguela Current Large Marine Ecosystem (BCLME), in Large Marine Ecosystems, Vol. 14 Shannon, V., Hempel, G., Malanotte-Rizzoli, P., Moloney, C., and Woods, J. (Editors).
- Shipley, T. H., Houston, H. H., & Buffler, R. T. (1979). Widespread Occurrence Of Possible Gas-Hydrate Horizons From Continental Slopes As Identified On Seismic Reflection Profiles. In Offshore Technology Conference. Offshore Technology Conference.
- Skrunes S. (2014). Characterization of Low backscatter Regions in the Marine Environment, by Multipolarization C- and X- band Synthetic Aperture Radar Data, Doctoral thesis, The Arctic University of Norway, Tromsö, Norway.

- *Sloan*, E. D. (**1990**). Clathrate Hydrates of Natural Gases, 1st ed., 641 pp., Marcel Dekker, New York.
- *Sloan*, E. D. (2003). Fundamental principles and applications of natural gas hydrates. Nature, 426(6964), pp 353-363.
- Sloan, E. D., & Koh, C. A. (2008). Clathrate Hydrates of Natural Gases Third Edition. CHEMICAL INDUSTRIES-NEW YORK THEN BOCA RATON-MARCEL DEKKER THEN CRC PRESS-, 119.
- Smith, A.J., Flemings, P.B., & Fulton, P.M. (2014). Hydrocarbon flux from natural deepwater Gulf of Mexico vents. Earth and Planetary Science Letters 395, 241-253.
- Smrzka, D., Zwicker, J., Klügel, A., Monien, P., Bach, W., Bohrmann, G., & Peckmann, J. (2016). Establishing criteria to distinguish oil-seep from methane-seep carbonates. Geology, 44(8), 667-670.
- Solomon, E. A., Kastner, M., MacDonald, I. R., & Leifer, I. (2009). Considerable methane fluxes to the atmosphere from hydrocarbon seeps in the Gulf of Mexico. Nature Geoscience, 2(8), 561-565.
- Sorheim, K. R., & Moldestad, M. Ø. (2008). Weathering properties of the Goliat Kobbe and two Goliat Blend of Kobbe and Realgrunnen crude oils. SINTEF Materials and Chemistry, Marine Environmental Technology report, (F3959).
- **Spaulding**, M. L. (1988). A state-of-the-art review of oil spill trajectory and fate modeling. Oil and Chemical Pollution, 4(1), 39-55.
- Spence, G. D., Minshull, T. A., & Fink, C. (1995). Seismic studies of methane gas hydrate, offshore Vancouver Island. In PROCEEDINGS-OCEAN DRILLING PROGRAM SCIENTIFIC RESULTS (pp. 163-174). NATIONAL SCIENCE FOUNDATION.
- Spormann, A. M., & Widdel, F. (2000). Metabolism of alkylbenzenes, alkanes, and other hydrocarbons in anaerobic bacteria. Biodegradation, 11(2-3), 85-105.

- Stalvies, C., Talukder, A., Ross, A., Grosjean, E., Carr, A., Williams, A., ... & Jablonski, D. (2017). Establishing hydrocarbon charge to the Ashmore Platform, Bonaparte Basin, Australia: A natural seeps study. Marine and Petroleum Geology, 82, 56-68.
- Stafford, K. W., Ulmer-Scholle, D., & Rosales-Lagarde, L. (2008). Hypogene calcitization: Evaporite diagenesis in the western Delaware Basin. Carbonates and evaporites, 23(2), 89.
- Stewart, S. A. (2006). Implications of passive salt diapir kinematics for reservoir segmentation by radial and concentric faults. Marine and Petroleum Geology, 23(8), 843-853.
- Stramma, L., & England M. (1999). On the water masses and mean circulation of the South Atlantic Ocean, Journal of Geophysical research, 104, 20863 – 20883.
- Stramma, L., & Schott, F. (1999). The mean flow field of the tropical Atlantic Ocean. Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography, 46(1), 279-303.
- Suess, E. (2014). Marine cold seeps and their manifestations: geological control, biogeochemical criteria and environmental conditions. International Journal of Earth Sciences, 103(7), 1889-1916. DOI 10.1007/s00531-014-1010-0.
- Sultan, N., Voisset, M., Marsset, T., Vernant, A. M., Cauquil, E., Colliat, J. L., & Curinier, V. (2007). Detection of free gas and gas hydrate based on 3D seismic data and cone penetration testing: An example from the Nigerian Continental Slope. Marine Geology, 240(1), 235-255.
- Sultan, N., Marsset, B., Ker, S., Marsset, T., Voisset, M., Vernant, A. M., ... & Drapeau, D. (2010). Hydrate dissolution as a potential mechanism for pockmark formation in the Niger delta. Journal of Geophysical Research: Solid Earth, 115(B8).
- Sumida, P. Y. G., Yoshinaga, M. Y., Madureira, L. A. S. P., & Hovland, M. (2004). Seabed pockmarks associated with deepwater corals off SE Brazilian continental slope, Santos

Basin. Marine Geology, 207(1), 159-167. doi:10.1016/j.margeo.2004.03.00.

- Suresh, G. (2015). Offshore oil seepage visible from space: A Synthetic Aperture Radar (SAR) based automatic detection, mapping and quantification system. Doctoral thesis. The University of Bremen, Germany.
- Suresh, G., Heygster, G., Bohrmann, G., Melsheimer, C., & Körber, J. H. (2013). An automatic detection system for natural oil seep origin estimation in SAR images. In 2013 IEEE International Geoscience and Remote Sensing Symposium-IGARSS (pp. 3566-3569). IEEE.

#### <u>T</u>

- *Talukder*, A. R. (2012). Review of submarine cold seep plumbing systems: leakage to seepage and venting. Terra Nova, 24(4), 255-272.
- *Taylor*, M. H., Dillon, W. P., & Pecher, I. A. (2000). Trapping and migration of methane associated with the gas hydrate stability zone at the Blake Ridge Diapir: new insights from seismic data. Marine Geology, 164(1), 79-89.
- *Teisserenc*, P., & Villemin, J. (1989). Sedimentary basin of Gabon--geology and oil systems.
- Thomas, S., Hill, A. J., Clare, M. A., Shreeve, J. W., & Unterseh, S. (2011). Understanding Engineering Challenges Posed by Natural Hydrocarbon Infiltration and the Development of Authigenic Carbonate. In Offshore Technology Conference. Offshore Technology Conference.
- *Tinker*, J., de Wit, M., & Brown, R. (2008). Linking source and sink: evaluating the balance between onshore erosion and offshore sediment accumulation since Gondwana break-up, South Africa. Tectonophysics, 455(1), 94-103.
- **Tissot**, B. P., & Welte, D. H. (**1978**). Petroleum Formation and Occurrence: A New Approach to Oil and Gas Exploration. Springer.
- *Tissot*, B., & Welte, D. (2012). Petroleum formation and occurrence: a new approach

to oil and gas exploration. Springer Science & Business Media.

- Traxler, R. W., & Bernard, J. M. (1969). UTILIZATION OF N-ALKANES BY PSEUDOMONAS AERUGINOSA UNDER CONDITIONS OF ANAEROBIOSIS. I. PRELIMINARY OBSERVATION. International Biodeterioration Bulletin, 5(1), 21.
- Trivero, P., & Biamino, W. (2010). Observing marine pollution with Synthetic Aperture Radar, Observing marine pollution with Synthetic Aperture Radar, Geosciences and Remote Sensing, New Achievements.
- Turner, J. P. (1995). Gravity-driven structures and rift basin evolution: Rio Muni Basin, offshore equatorial West Africa. AAPG bulletin, 79(8), 1138-1158.

### U

- Uchupi, E. (1992). Angola Basin: geohistory and construction of the continental rise. Geologic Evolution of Atlantic Continental Rifts. Nostrand Reinhold, New York, 77-99.
- Uenzelmann-Neben, G. (1998). Neogene sedimentation history of the Congo Fan. Marine and Petroleum Geology, 15(7), 635-650.
- Ukwe, C.N., Ibe, C.A., & Sherman, K. (2006). A sixteen-country mobilization for sustainable fisheries in the Guinea Current Large Marine Ecosystem, Ocean & Coastal Management 49, 385–412.
- Unterseh, S. (2013). Early Recognition of Seabed and Sub-Seabed Natural Hydrocarbon Seeps in Deep Offshore Angola. 2013 Offshore Technology Conference, May 06 -09, 2013, Houston, TX, USA.
- Unterseh, S. & Dan, G. (2014). Integrated characterization of deep-water natural hydrocarbon seeps: first insights, Near Surface Geosciences.

### $\underline{V}$

- Valentine, D. L., Reddy, C. M., Farwell, C., Hill, T. M., Pizarro, O., Yoerger, D. R., ... & Clarke, B. A. (2010). Asphalt volcanoes as a potential source of methane to late Pleistocene coastal waters. Nature Geoscience, 3(5), 345-348.
- Valle, P. J., Gjelberg, J. G., & Helland-Hansen, W. (2001). Tectonostratigraphic development in the eastern Lower Congo Basin, offshore Angola, west Africa. Marine and Petroleum Geology, 18(8), 909-927.
- Van Dover, C. L., German, C. R., Speer, K. G., Parson, L. M., & Vrijenhoek, R. C. (2002). Evolution and biogeography of deep-sea vent and seep invertebrates. science, 295(5558), 1253-1257.
- Van Ganse, S., LeFloch, S., Mauge, R., & Aprin, R. (2014). Influence de l'ajout de dispersant sur la remontée de gouttes de pétroles. Apports à la modélisation.
- Van Gaever, S., Galéron, J., Sibuet, M., & Vanreusel, A. (2009). Deep-sea habitat heterogeneity influence on meiofaunal communities in the Gulf of Guinea. Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography, 56(23), 2259-2269.
- Van Krevelen, D. W. (1984). Organic geochemistry—old and new. Organic Geochemistry, 6, 1-10.
- Van Weering, T. C. E., & Van Iperen, J. (1984). Fine-grained sediments of the Zaire deepsea fan, southern Atlantic Ocean. Geological Society, London, Special Publications, 15(1), 95-113.
- Vendeville, B. C., & Jackson, M. P. A. (1992a). The rise of diapirs during thin-skinned extension. Marine and Petroleum Geology, 9(4), 331-354.
- Vendeville, B. C., & Jackson, M. P. A. (1992b). The fall of diapirs during thin-skinned extension. Marine and Petroleum Geology, 9(4), 354-371.

- Vendeville, B. C. (2005). Salt tectonics driven by sediment progradation: Part I—Mechanics and kinematics. AAPG bulletin, 89(8), 1071-1079.
- Vis, G. J. (2017). Geology and seepage in the NE Atlantic region. Geological Society, London, Special Publications, 447, SP447-16.
- Voituriez, B., & Herbland, A. (1981). Primary production in the tropical Atlantic Ocean mapped from oxygen values of Equalant 1 and 2 (1963). Bulletin of Marine Science, 31(4), 853-863.
- Vrijenhoek, R. C., Schutz, S. J., Gustafson, R. G., & Lutz, R. A. (1994). Cryptic species of deep-sea clams (Mollusca: Bivalvia: Vesicomyidae) from hydrothermal vent and cold-water seep environments. Deep Sea Research Part I: Oceanographic Research Papers, 41(8), 1171-1189.

### W

- Warren, J. K. (2000). Evaporites, brines and base metals: low- temperature ore emplacement controlled by evaporite diagenesis. Australian Journal of Earth Sciences, 47(2), 179-208.
- Warren, J. K. (2016). Evaporites: A geological compendium. Springer.
- Wei, J., Pape, T., Sultan, N., Colliat, J. L., Himmler, T., Ruffine, L., ... & Peters, C. A. (2015). Gas hydrate distributions in sediments of pockmarks from the Nigerian margin–Results and interpretation from shallow drilling. Marine and Petroleum Geology, 59, 359-370.
- Weiland, R. J., Adams, G. P., McDonald, R. D., Rooney, T. C., & Wills, L. M. (2008, January). Geological and biological relationships in the Puma appraisal area: From salt diapirism to chemosynthetic communities. In Offshore Technology Conference. Offshore Technology Conference.
- Wellsbury, P., Mather, I., & Parkes, R. J. (2002). Geomicrobiology of deep, low organic carbon sediments in the Woodlark Basin,

Pacific Ocean. FEMS Microbiology Ecology, 42(1), 59-70.

- Wenau, S. (2013). Seismic and acoustic imaging of fluid seepage structures in different sedimentological and tectonic settings in the Lower Congo Basin, University of Bremen. 137p.
- Wenau, S., Spiess, V., Pape, T., & Fekete, N. (2014 a). Cold seeps at the salt front in the Lower Congo Basin I: Current methane accumulation and active seepage, Marine and Petroleum Geology, doi: 10.1016/j.marpetgeo.2014.07.032.
- Wenau, S., Spiess, V., Pape, T., & Fekete, N. (2014 b). Cold seeps at the salt front in the Lower Congo Basin II: The impact of spatial and temporal evolution of salt-tectonics on hydrocarbon seepage, Marine and Petroleum Geology pp.1 – 14, http://dx.doi.org/10.1016/j.marpetgeo.2014. 09.021
- Wenger, L. M., & Isaksen, G. H. (2002). Control of hydrocarbon seepage intensity on level of biodegradation in sea bottom sediments. Organic Geochemistry, 33(12), 1277-1292.
- Whiticar, M. J., Faber, E., & Schoell, M. (1986). Biogenic methane formation in marine and freshwater environments: CO2 reduction vs. acetate fermentation—isotope evidence. Geochimica et Cosmochimica Acta, 50(5), 693-709.
- Whiticar, M.J. (1999). Carbon and hydrogen isotope systematics of bacterial formation and oxidation of methane, Chemical Geology 161 pp. 291–314.
- Whiticar, M.J., Faber, E., Whelan, J.K., & Simoneit, B.R.T. (1994). Thermogenic and bacterial hydrocarbon gases (free and sorbed) in middle valley, Juan de Fuca Ridge, leg 139 in Mottl, M.J., Davis, E.E., Fisher, A.T., and Slack, J.F. (Eds.), 1994 Proceedings of the Ocean Drilling Program, Scientific Results, Vol. 139
- Widdel, F., & Rabus, R. (2001). Anaerobic biodegradation of saturated and aromatic hydrocarbons. Current Opinion in Biotechnology, 12(3), 259-276.

- Wilkes, H., Rabus, R., Fischer, T., Armstroff, A., Behrends, A., & Widdel, F. (2002). Anaerobic degradation of n-hexane in a denitrifying bacterium: further degradation of the initial intermediate (1-methylpentyl) succinate via C-skeleton rearrangement. Archives of Microbiology, 177(3), 235-243.
- Williams, A. & Lawrence, G. (2002). The Role of Satellite Seep Detection in exploring the South Atlantic's Ultradeep Water, in Surface exploration case histories: Applications of geochemistry, magnetic, and remote sensing, , Shumacher, D., & LeSchack, L.A., eds., AAPG Studies in geology No. 48 and SEG Geophysical References Series No. 11, 327-344.
- Williamson, S. C., Zois, N., & Hewitt, A. T. (2008, January). Integrated site investigation of seafloor features and associated fauna, Shenzi field, deepwater Gulf of Mexico. In Offshore Technology Conference. Offshore Technology Conference.
- Wilson, R. D., Monaghan, P.H., Osanik, A., Price, L., C., & Rogers, M. A. (1973). Estimate of Annual input of Petroleum to the Marine Environment from Natural Marine Seepage. Trans. Gulf Coast Assoc. Geological Societies, 23, 182-193.
- Wynn, R. B., Huvenne, V. A., Le Bas, T. P., Murton, B. J., Connelly, D. P., Bett, B. J., ... & Sumner, E. J. (2014). Autonomous Underwater Vehicles (AUVs): Their past, present and future contributions to the advancement of marine geoscience. Marine Geology, 352, 451-468.

# <u>X-Y-Z</u>

- Zatyagalova, V.V., Ivanov, A.Y., & Gobulov, B.N. (2007). Application of Envisat SAR imagery for mapping and estimation of natural oil seeps in the South Caspian Sea. In Proceedings of the Envisat Symposium 2007, 23 – 27.
- Zecchetto, S., della Valle., A., & De Biasio., F. (2015). Mitigation of ECMWF– scatterometer wind biases in view of storm surge applications in the Adriatic Sea, Advances in space Research 55,1291 – 1299, http://dx.doi.org/10.1016/j.agr.2014.12.011

http://dx.doi.org/10.1016/j.asr.2014.12.011.

- Zengler, K., Richnow, H. H., Rosselló-Mora, R., Michaelis, W., & Widdel, F. (1999). Methane formation from long-chain alkanes by anaerobic microorganisms. Nature, 401(6750), 266-269.
- Zitter, T. A., Huguen, C., ten Veen, J., & Woodside, J. M. (2006). Tectonic control on mud volcanoes and fluid seeps in the Anaximander Mountains, eastern Mediterranean Sea. Geological Society of America Special Papers, 409, 615-631.
- Zühlsdorff, L., & Spiess, V. (2005). Threedimensional seismic and acoustic imaging of gas migration and gas hydrate accumulation beneath pockmarks in hemipelagic sediments off Congo, south-west Africa. In International conference on gas hydrates, Trondheim, Norway (Vol. 5).

## Résumé

Le bassin profond du Bas-Congo est une marge passive affectée par une forte déformation salifère. Elle présente des sorties naturelles d'hydrocarbures lourds dont l'étude a des impacts : (i) sociétaux, ils apportent des composés à effet de serre vers l'hydro-atmosphère, (ii) écologiques, ils constituent des analogues pour la compréhension des marées noires, (iii) biologiques, ils constituent des oasis de vie, et (iv) économiques, ils témoignent de zones d'intérêt pétrolier. L'objectif de ce travail est de comprendre les modes de fonctionnement de ces systèmes, depuis la mobilisation des hydrocarbures dans les sédiments, jusqu'à l'exutoire en fond de mer, puis en surface mer. Cette étude combine des analyses de données issues de l'imagerie spatiale, de l'océanographie, de la géochimie et de la géophysique marine afin d'obtenir une vision intégrée multiéchelle des zones d'expulsion naturelles d'hydrocarbures dans le bassin profond du Bas-Congo. L'analyse de données issues de l'imagerie spatiale montre qu'une centaine de sites sont actifs dans la zone d'étude. Un volume de 4400 m<sup>3</sup> d'hydrocarbures est naturellement émis par an, suivant un mécanisme intermittent avec des fréquences propres d'un site à l'autre. L'intégration des données de courantométrie permet de relier les nappes d'hydrocarbures visibles à la surface de la mer avec les structures fond de mer. Celles-ci correspondent à des chapelets de dépressions de forte amplitude sismique localisés sur le pourtour des diapirs de sel et à des regroupements de monticules composés d'asphaltes en périphérie. Dans les sédiments, les anomalies géophysiques se retrouvent sous la forme de cheminées verticales de forte amplitude, délimitées par le bas par le réflecteur sismique associé à la base de stabilité des hydrates de gaz. La correspondance spatiale de ces différents critères a permis d'inventorier les sites potentiellement actifs sur les données géophysiques. La plupart de ces sites se répartissent au sommet de diapirs, sur les bordures de minibassins très sédimentés. Seulement 40% des sites regroupant l'ensemble des critères géophysiques spécifiques aux émanations d'hydrocarbures lourds sont associés à des nappes récurrentes à la surface de la mer.

<u>Mots clés :</u> Bassin du Bas-Congo, Nappes d'hydrocarbures, Fuites naturelles, Pockmark, Hydrate de gaz, Modélisation hydrodynamique.

#### Abstract

The Lower Congo Basin is a passive margin, affected by strong salt tectonics. The natural release of heavy hydrocarbons observed in the area have major impacts on the: (i) society, bringing greenhouse compounds to the hydro-atmosphere, (ii) ecology, constituting analogues for the understanding of oil spills (iii) biology, hosting deep-sea communities, and (iv) economy, testifying of zones of oil interest. The aim of this work is to understand the mechanisms of these systems, from the mobilisation in the sediments towards the seafloor outlets and subsequently towards the sea surface. This study combines data analysis from spatial imagery, oceanography, geochemistry and marine geophysics in order to get a multi-scale integrated vision of the natural seepage situation in the Lower Congo Basin. The analysis of spatial imagery data shows that in the study area, the hundred active seeps sites expel a hydrocarbons volume of 4400 m<sup>3</sup> per year, following an intermittent mechanism with miscellaneous frequencies from one site to another. We connected visible hydrocarbon slicks at the sea surface with seabed structures by integrating current measurements across the water column. Seafloor structures of mounds composed of highly degraded oil outwards. In sediments, geophysical anomalies form vertical chimneys, delimited by the seismic reflector associated with the base of gas hydrates stability downwards. The spatial correspondence of geophysical criteria enabled to inventory the potentially active sites on the geophysical data.

Most of oil seep sites are located on top of salt diapirs, at the edge of highly sedimented minibasins. Only 40% of sites containing all geophysical criteria specific to heavy hydrocarbon seeps are associated with recurring slicks at the sea surface.

<u>Key words:</u> Lower Congo Basin, Oil slicks, Natural seepages, Pockmark, Gas hydrates, Numerical modeling.