

IRSNINSTITUT
DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

Apport de la caractérisation de la variabilité des concentrations en radon-222 dans l'eau à la compréhension du fonctionnement d'un aquifère en milieu fracturé de socle : exemple du site de Ploemeur, Morbihan

Thomas Le Druillennec

Juin 2007

ISRN/IRSN - 2007/89 - FR

Laboratoire d'Etude du Radon et d'Analyse des Risques

IRSN - Siège social - 77, av. du Général-de-Gaulle - 92140 Clamart
Standard +33 (0)1 58 35 88 88 - RCS Nanterre B 440 546 018

Ecole doctorale des Sciences de la Matière de l'Information et de la Santé
Membre du Collège Doctoral de Bretagne Occidentale

THESE DE DOCTORAT
DE
L'UNIVERSITÉ DE BRETAGNE OCCIDENTALE
(U.B.O)

Mention « Géosciences »

Présentée le 26 juin 2007

par

Thomas LE DRUILLENNEC

Apport de la caractérisation de la variabilité des concentrations en radon-222
dans l'eau à la compréhension du fonctionnement d'un aquifère en milieu
fracturé de socle : exemple du site de Ploemeur.

devant le jury composé des membres ci-dessous désignés :

- | | |
|---|--------------------|
| - Jean-Luc MICHELOT , CR CNRS, UMR IDES, Université Paris-Sud-Orsay | Rapporteur |
| - Jean-Paul GAUDET , Ingénieur de Recherche, LETHE, Université Joseph Fourier Grenoble | Rapporteur |
| - Luc AQUILINA , Professeur, UMR 6118 Géosciences Rennes, Université Rennes1 | Examineur |
| - Jean-Alix BARRAT , Professeur, UMR 6538 Domaines Océaniques, UBO | Examineur |
| - Jean-Christophe SABROUX , Ingénieur de Recherche, IRSN, Fontenay-aux-Roses | Examineur |
| - Georges TYMEN , Professeur, LARAAH, UBO | Directeur de thèse |

Travail réalisé au sein des institutions suivantes : le CAREN (Université de Rennes1), l'IRSN (DEI/SARG/LERAR) ,
l'IUEM-UBO (UMR 6835), l'ERCS LARAAH-UBO, avec le soutien financier de l'IRSN et du Conseil Régional de
Bretagne (bourse co-financée)

"When the well is dry, we learn the worth of water."

Benjamin Franklin

Remerciements

Cette thèse, co-financée par la Région Bretagne dans le cadre du PRIR DATEAUX et par l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), a été effectuée à l'Université de Bretagne Occidentale (au sein du Laboratoire de Recherche Appliquées Atmosphère Hydrosphère et de l'Institut Universitaire Européen de la Mer) et à l'IRSN au sein du Laboratoire d'Etude du Radon et d'Analyse des Risques (LERAR), en collaboration avec l'université de Rennes 1 (CAREN UMR 6118 « Géosciences Rennes »).

Mes remerciements s'adressent en tout premier lieu au Professeur Georges TYMEN (UBO, LARAAH), qui a consacré du temps à diriger mon travail, et avec qui j'ai eu de nombreuses discussions constructives et fructueuses.

Toute ma reconnaissance va également à Corinne TARITS (UMR 6538) et Géraldine IELSCH (IRSN, LERAR), qui m'ont activement encadré, à la fois au laboratoire et sur le terrain, et aidé durant ces trois années de thèse.

Je remercie vivement le Professeur Luc AQUILINA (Université de Rennes 1) pour ses conseils avisés et toujours constructifs et pour l'honneur qu'il me fait en participant à mon jury de thèse.

J'adresse mes sincères remerciements à MM. Jean-Luc MICHELOT, Chargé de Recherche CNRS (UMR IDES, Université Paris-Sud Orsay) et Jean-Paul GAUDET, Ingénieur de Recherche (Laboratoire d'Etudes des Transferts en Hydrogéologie et Environnement, Université Joseph Fourier Grenoble), pour avoir accepté d'être rapporteurs de ma thèse.

Mes remerciements s'adressent également au Professeur Jean-Alix BARRAT (UBO, IUEM) et à M. Jean-Christophe SABROUX (Ingénieur de Recherche à l'IRSN) pour leur participation à mon jury.

Je souhaite également remercier Bruno CESSAC, chef du LERAR, pour m'avoir accueilli dans son équipe et pour l'intérêt qu'il a porté à mon travail.

Je tiens aussi à faire part de ma gratitude à Olivier BOUR pour son aide précieuse et sa collaboration fructueuse.

J'exprime ma reconnaissance à Virginie AYRAUD, pour m'avoir guidé lors de ma découverte de l'hydrogéologie du site de Ploemeur ainsi que pour le partage de ses connaissances concernant ce dernier.

Les campagnes de terrains ont été grandement facilitées par la présence de Gilles ALCALDE (IRSN, LERAR) toujours de bonne humeur indépendamment des conditions météorologiques. Je le remercie très sincèrement pour sa disponibilité.

Je suis également extrêmement reconnaissant à Sylvain BASSOT et Sylvain LEMIUS (IRSN, LETS), Mathieu DUPUIS (IRSN, LERAR), Thierry LABASQUE et Anne-Catherine PIERSON-WICKMANN (Geosciences Rennes), Christophe HEMOND et Claire BASSOULET (UBO, IUEM), pour leurs appuis techniques en toutes circonstances.

Un grand merci à Marie-Paule FRIOCOURT (UBO) pour ses nombreuses relectures de ma « prose » en langue shakespearienne.

J'exprime toute ma sympathie aux personnes du département des Sciences de la Terre de l'UBO, que j'ai eu la chance de croiser pendant mes deux premières années de thèse : Martial CAROFF, Jo COTTEN, Sylvie MILON, Alain COUTELLE et Remy GOURVENNEC.

Bien entendu, je n'oublie pas ceux qui ont rendu agréable mon quotidien au LERAR, qui m'ont aidé par leurs sourires, fou-rires et bonne humeur : Anne-Christine, Charlotte, Florence, Géraldine, Jacqueline, Karine, Marie-Odile, Karine, Bruno, Gilles, Mathieu, Nicolas et tous ceux que j'oublie. Merci à tous.

Un grand merci également aux autres doctorants, avec qui j'ai eu de nombreuses discussions agréables : Pierre, Noëlle, Béatrice, Javier, Christophe, Cécile, Cédric, Carole, Antoine.

A ma famille, qui m'a toujours encouragé, soutenu et, surtout, supporté tout
au long de ces trois années.

A la mémoire de mes grands-parents, Jeanne et Pierre, dont les sourires
bienveillants m'ont accompagné à chaque instant.

A la Louve, dont les empreintes, marquées dans la neige, m'ont guidé hors
de la tempête. Merci d'avoir supporté mes humeurs et mes doutes.

Merci de ton soutien.

Tables des Matières

INTRODUCTION.....	1
CHAPITRE I : ETAT DE L'ART : AQUIFERES EN MILIEU FRACTURE ET RADON-222.....	5
I Les aquifères en milieu discontinu : caractéristiques.....	7
I.1 Introduction.....	7
I.2 Modélisation des aquifères en milieu fracturé : les différentes approches existantes.....	9
I.3 Représentation et propriétés hydrauliques d'une fracture unique.....	11
II. Le radon : propriétés, origine et migration.....	14
II.1 Propriétés.....	14
II.1.1. Généralités.....	14
II.1.2. Propriétés physico-chimiques du radon.....	14
II.2 Exhalation du radon : émanation et transport dans l'environnement.....	16
II.2.1. Emission.....	17
II.2.1.1. Définition.....	17
II.2.1.2. Mécanismes de l'émanation.....	18
II.2.1.3. Paramètres influençant l'émanation.....	18
II.2.2. Le transport du radon.....	20
II.2.2.1. La diffusion.....	20
II.2.2.2. L'advection.....	21
III. Le radon dans les eaux souterraines.....	22
III.1. Facteurs influençant la concentration du radon dans les eaux souterraines..	22
III.1.1. Caractéristiques chimiques et physiques de la roche.....	22
III.1.2. Caractéristiques hydrogéologiques de l'aquifère – temps de résidence de l'eau dans l'aquifère.....	26
III.2.3 Le radon en milieu homogène, traceur des échanges entre réservoirs hydrologiques.....	28
III.2.4 Le radon dans les aquifères en milieu fracturé granitique.....	31
III.2.4.1 Compréhension des concentrations du radon dans l'eau aquifères fracturés : contextes et apports des études.....	31
III.2.4.2 Modélisation des concentrations en radon dans les eaux souterraines.....	33
III.2.4.2.1 Modélisation du radon dans l'eau à l'échelle microscopique : le volume élémentaire représentatif.....	34
III.2.4.2.2. Modélisation du radon dans l'eau à l'échelle macroscopique : le réseau de fractures.....	36
Le radon dans les eaux souterraines : outil de caractérisation des milieux fracturés ?.....	38

CHAPITRE II : SITE ETUDIE ET METHODES D'ACQUISITION DES DONNEES EXPERIMENTALES..... 41

I. Présentation de l'aquifère étudié et des connaissances déjà acquises sur son fonctionnement..... 43

I.1. Introduction générale de l'aquifère de Ploemeur	43
I.1.1. Localisation des sites étudiés	43
I.1.2. Contexte géologique général du secteur étudié	45
I.2. Le Site de Kermadoye.....	47
I.2.1 Localisation des forages	48
I.2.2 Géologie des forages	50
I.2.3. Hydrogéologie du site de Kermadoye : profondeurs des arrivées d'eau et circulations verticales.....	52
I.3. Le Site de Stang-er-Brune	56
I.3.1. Localisation des forages.....	56
I.3.2. Géologie des forages	58
I.3.3. Hydrogéologie du site de Stang-er-Brune : profondeurs des arrivées d'eau et circulations verticales.....	59
I.4. Les sites de Loyan et de la fontaine St-Maudé.	60
I.4.1. Le site de Loyan	60
I.4.1. Le site de la fontaine St-Maudé.....	60

II. Méthodes d'acquisition des données expérimentales..... 61

II.1. Méthode d'échantillonnage des eaux souterraines	61
II.1.1. Stratégie d'échantillonnage	61
II.1.2 Echantillonnage à l'aide d'un préleveur manuel	62
II.1.3 Echantillonnage à l'aide d'une pompe immergée	64
II.2. Méthodes de mesure de l'activité volumique du radon dans l'eau.....	66
II.2.1. Méthode de mesure utilisant une chambre d'ionisation couplée à un système de dégazage.....	67
II.2.2. Méthode de mesure utilisant une fiole scintillante	68
II.3. Méthode de mesure du flux d'exhalation du radon des roches	69
II.4. Méthodes d'analyses chimiques des eaux	71
II.4.1. Mesure de l'activité volumique en radium 226 dans l'eau par émanométrie radon.....	71
II.4.2. Mesure des ions et des éléments traces dissous dans l'eau	72
II.5. Méthodes d'analyses chimiques des roches	72
II.5.1. Mesure de l'activité massique du radium 226 dans la roche par spectrométrie gamma	73
II.5.2. Mesure des éléments majeurs et traces des roches.....	74

CHAPITRE III : RESULTATS EXPERIMENTAUX : CARACTERISATION DE LA VARIABILITE ET DE L'ORIGINE DU RADON DANS LES EAUX SOUTERRAINES DE L'AQUIFERE DE PLOEMEUR. 77

I. Caractérisation de la variabilité spatiale des activités volumiques du radon-222 dans l'eau 79

I.1. Variabilité spatiale des activités volumiques du radon dans l'eau de l'aquifère de Ploemeur.	79
I.1.1 Sites de Kermadoye et lieu-dit "la fontaine St-Maudé"	80
I.1.2. Site de Stang-er-Brune	81
I.1.3. Site de Loyan	83
I.2. Variabilité des activités volumiques du radon dans l'eau des forages en fonction de la profondeur.	83

I.2.1	Site de Kermadoye	84
I.2.2	Site de Stang-er-Brune	87
I.3.	Variabilité temporelle des activités volumique du radon dans l'eau de l'aquifère de Ploemeur.	88
I.3.1	Site de Kermadoye	90
I.3.2	Site de Stang-er-Brune	93
II.	Origine du radon dans les eaux souterraines : caractérisation du terme source du radon	96
II.1.	Terme source du radon dans la roche	96
II.1.1.	Activité massique du radium-226 de la roche	96
II.1.2.	Flux d'exhalation du radon de la roche	98
II.2.	Terme source du radon dans l'eau : activités volumiques du radium	102
III.	Discussion : relation entre la variabilité des concentrations en radon dans l'eau de l'aquifère, le terme source du radon et les arrivées d'eau des forages.....	105

CHAPITRE IV : INFLUENCE DES PROPRIETES HYDRAULIQUES DE L'AQUIFERE SUR LA VARIABILITE DES ACTIVITES VOLUMIQUES DU ²²²Rn DANS L'EAU : INTERPRETATION ET MODELISATION

I.	Conditions de flux "naturels" : site de Stang-er-Brune.....	113
I.1.	Aquifère en conditions de flux ambiants : modélisation des concentrations du radon dans l'eau des forages.	113
I.1.1.	Rappels des caractéristiques du site de Stang-er-Brune : hydrogéologie, géologie et activités volumiques du radon mesurées dans l'eau en conditions de flux ambiants.	113
I.1.2.	Modèle à fracture unique : modèle de Nelson et al. (1983).....	116
I.1.2.1.	<i>Détermination des valeurs des paramètres du modèle.</i>	<i>119</i>
I.1.2.2.	<i>Comparaison des activités volumiques du ²²²Rn avec les prévisions du modèle.</i>	<i>121</i>
I.1.2.3.	<i>Synthèse et discussion</i>	<i>124</i>
I.2.	Aquifère en conditions de flux imposés : essais de pompages.	127
I.2.1.	Evolution temporelle de la concentration en radon dans l'eau d'un forage au cours de son pompage. ...	127
I.2.2.	Evolution temporelle de la concentration en radon dans les eaux souterraines pendant les pompages... ..	130
I.2.3.	Rôle et influence de la matrice.	132
I.2.3.1	<i>Les échanges fracture-matrice sont-ils une source potentielle de radon de l'eau ?</i>	<i>132</i>
I.2.3.2.	<i>Estimation de la concentration en radon de l'eau porale de la roche encaissante:.....</i>	<i>134</i>
II.	Conditions de flux "anthropiques" : site de Kermadoye.....	138
II.1.	Rappels des caractéristiques du site de Kermadoye : hydrogéologie, géologie et activités volumiques du radon mesurées dans l'eau.	140
II.2.	Application du modèle à fracture unique	143
II.2.1.	Détermination des valeurs des paramètres du modèle pour les forages du site de Kermadoye.	143
II.2.2.	Comparaison des activités volumiques du ²²² Rn mesurées <i>in situ</i> avec les prévisions du modèle.....	145
II.2.3.	Synthèse et discussion sur l'application du modèle de Nelson à un site pompé.	149
III.	Discussion	152

**CHAPITRE V : ANALYSE MULTI TRACEURS ET PROPOSITION D'UN MODELE
CONCEPTUEL DE FLUX HYDRAULIQUES DANS L'AQUIFERE..... 157**

I. Introduction..... 159

**II. Concentrations en nitrates et en sulfates des eaux de l'aquifère de Ploemeur
..... 160**

**II.1. Caractérisation de l'évolution chimique des eaux du site de Kermadoye : influence
d'un pompage à long terme..... 160**

II.1.1. Différenciation chimique des forages 160

II.1.2. Relation entre les réactions biogéochimiques et les flux hydrauliques 163

**II.2. Hydrochimie et activités volumiques du radon dans l'eau de l'aquifère de
Ploemeur 166**

II.2.1. Comparaison des activités volumiques du radon et des teneurs en nitrates et sulfates des eaux..... 167

II.2.1.1. Site de Kermadoye 167

II.2.1.2. Site de Stang-er-Brune 168

II.2.2. Formulation d'un modèle de flux hydrauliques dans l'aquifère : apport des concentrations en radon, en
nitrates et en sulfates..... 170

**III. Formulation d'un modèle de flux hydrauliques dans l'aquifère : apport des
activités volumiques du radon et des teneurs en SF₆ des eaux..... 172**

III.1. Origine du SF₆..... 172

III.1.1. Concentration en SF₆ dans l'air atmosphérique : une origine anthropique. 172

III.1.2. Concentration en SF₆ dans les eaux souterraines : une origine anthropique et géologique ? 173

**III.2. Concentration en SF₆ et activité volumique du radon dans les eaux de l'aquifère
de Ploemeur. 174**

III.2.1. Concentrations en SF₆ mesurées dans les eaux souterraines de Ploemeur 174

III.2.2. Consolidation du modèle hydrogéologique proposé : comparaison des concentrations en SF₆ et en ²²²Rn
dans l'eau..... 175

**IV. Proposition d'un modèle de fonctionnement hydrochimique de l'aquifère de
Ploemeur : apport de la chimie des eaux et du radon-222 179**

Annexe 1 : Analyse minéralogique des roches du site de Ploemeur 198

A1.1. Echantillons de roches 198

Figure A-1 : Localisation des forages carottés 198

A1.2. Echantillon C4-4 200

A1.3. Echantillon C5-13 201

A1.4. Echantillon C13-7 203

A1.5. Echantillon C17-9 205

A1.6. Echantillon C20-19 206

A1.7. Echantillon C23-20 208

**Annexe 2 : Méthode de mesure du radon dans l'eau en utilisant une chambre
d'ionisation 210**

A2.1. Fonctionnement de la chambre d'ionisation..... 210

A2.2. Principe de la mesure du radon dans l'eau en utilisant une chambre d'ionisation
couplée à un système de dégazage du radon dissous dans l'eau. 210

A2.3. Expression des résultats : 211

A2.4. Calcul d'incertitude.....	213
Annexe 3 : Méthode de mesure du radon dans l'eau en utilisant une fiole scintillante : méthode "coton"	215
A3.1. Principe de la mesure par scintillation :.....	215
A3.2. Principe de la mesure du radon dans l'eau en utilisant une fiole scintillante : ..	215
A3.3. Expression des résultats :	216
A3.3. Calcul d'incertitude.....	218
Annexe 4 : Mesure du flux d'exhalation du radon des roches.....	220
A4.1. Expression des résultats :	220
A4.2. Calcul d'incertitude.....	222
Annexe 5 : Activités volumiques du radon mesurées dans l'eau	224
Annexe 6: Article "Hydrogeological and geochemical control of the variations of ²²²Rn concentrations in a hard rock aquifer: insights about the possible role of fracture-matrix exchanges"	228

Liste des Figures

Figure i.1 : Carte hydrogéologique simplifiée de la France (source : Institut Français de l'Environnement)...	1
Figure I.1: Modèles conceptuels représentant la géométrie des fractures et des flux d'eaux à différentes échelles, d'après (Mazurek et al., 2003).....	8
Figure I.2 : Effet de la résolution sur la caractérisation d'une surface fracturée. Avec la diminution de la résolution et l'augmentation de la hauteur d'observation H, les petites fractures ne sont plus visibles et les structures complexes de fractures en échelons ne forment plus qu'une fracture unique, d'après (Odling, 1997).....	10
Figure I.3 : Concentration des flux d'eau dans un réseau de fractures. a) Cartographie d'un réseau de fractures dans le bassin de Hornelen (Norvège) et flux d'eau principaux dans ce réseau d'après Odling (1997). b) Carte des fractures dans la galerie de Stripa (Suède) et la zone H où est localisée la majeure partie des arrivées d'eau. La flèche situe la fracture qui fournit 80% du flux de la zone, d'après (Olsson, 1992)... ..	11
Figure I.4 : Représentation schématique d'une fracture d'épaisseur e sous la forme de deux plans parallèles lisses de longueur L entre lesquels circule un flux d'eau avec un débit Q.....	11
Figure I.5 : Fracture d'épaisseur e et de perméabilité K.....	12
Figure I.6 : Schéma d'une fracture sous la forme de plans rugueux (d'après Hakami and Larsson, 1996)....	13
Figure I.7 : Familles radioactives de l'uranium-238, de l'uranium-235 et du thorium-232.....	16
Figure I.8 : Schéma descriptif de l'exhalation : (1) les scénarios de formation du ²²² Rn ; A : émanation par recul direct ; B : émanation par diffusion ; C : l'atome reste piégé dans les minéraux de la roche. (2) Transport du radon dans la matrice rocheuse.....	17
Figure I.9 : Comparaisons entre transmissivités et concentrations en radon dans l'eau. a) Etude d'un aquifère dans le Colorado, Lawrence et al. (1991) : corrélation inverse b) Etude d'un aquifère dans le New Hampshire, Wood et al., (2004) : absence de corrélation.....	27
Figure I.10 : Carte des concentrations du radon dans des eaux souterraines de Norvège (d'après Banks et al., 1999).....	28
Figure I.11 : a) Schéma d'un profil du site de River Glatt, b) Temps de résidence de l'eau de l'aquifère calculé à partir de la concentration en radon mesurée dans l'eau de l'aquifère, d'après Hoehn and von Gunten, (1989).....	29
Figure I.12 : Diminution de la concentration du radon dans l'eau d'un aquifère karstique après un événement pluvieux, d'après Pane (1995).....	30
Figure I.13 : Carte de la Norvège localisant les mesures de la concentration en radon dans l'eau réalisées dans des aquifères exploités pour l'alimentation en eau potable de villes de plus de 1000 habitants d'après (Morland et al., 1998).....	32
Figure I.14 : Schéma représentatif des deux approches de la modélisation de la concentration du ²²² Rn dans l'eau d'une fracture.....	33
Figure I.15 : Schéma d'une fracture assimilée à deux disques parallèles et interceptant un forage, d'après Nelson et al. (1983).....	37
Figure II.1 : Photo panoramique du site de Ploemeur et de la station de pompage de Kermadoye. (En arrière plan, la ville de Lorient.)	43
Figure II.2: Carte du secteur étudié et localisation des quatre sites équipés de forages : Kermadoye, Stang-Er-Brune, Loyan et lieu-dit la fontaine St-Maudé.....	44
Figure II.3: Carte géologique simplifiée du secteur étudié et localisation des forages carottés (d'après carte géologique au 1/50000e de Lorient (N°383)).....	46
Figure II.4: Modèle géologique 3D du site de Kermadoye (d'après Touchard, 1999).....	47

Figure II.5: Carte de localisation des forages du site de Kermadoye : le symbole carré représente un forage équipé d'un système de pompage.....	48
Figure II.6 :Photos du site de Kermadoye : a) périmètre de protection immédiat autour de la zone de pompage, b) forage F28 à l'intérieur du périmètre, c) au premier plan : forage F29 équipé d'un système de pompage, en arrière plan : hangar contenant le système d'exploitation du captage AEP et le forage Pe, d) piézomètre mF2 et prairies attenantes e) forage F9 localisé entre la route départementale et une surface agricole cultivée f) "tête de puits" du forage F9.....	49
Figure II.7: Représentation de la topographie et de la géologie des forages de Kermadoye. La position des coupes est indiquée sur la carte de localisation des forages (en haut à gauche).....	51
Figure II.8: Schéma simplifié illustrant le principe d'interprétation des diagraphies de débit d'après Le Borgne (2004).....	53
Figure II.9: Localisation des arrivées d'eau et des circulations verticales dans les forages du site de Kermadoye	54
Figure II.10: Résultats de la diagraphie chimique réalisée sur le puits F28 (Ploemeur). L'indice sp représente les données sans pompage, ap celles avec pompage, d'après Ayraud (2005).	55
Figure II.11 : Localisation des forages du site de Stang-er-Brune	57
Figure II.12: Photos du site de Stang-er-Brune : a) forage B3 (au premier plan) et du piézomètre P3 (en arrière plan) b) Vue générale du site (à l'exception du forage F22) c) A gauche : lisière de la forêt à proximité des forages ; à droite : zone marécageuse.	57
Figure II.13: Géologie des forages du site de Stang-er-Brune	58
Figure II.14: Profondeur des arrivées d'eau et circulations verticales dans les forages du site de Stang-er-Brune.	59
Figure II.15: Schéma des différents cas rencontrés lors de l'échantillonnage de l'eau des forages.....	61
Figure II.16: Prélèveur manuel : 1) Photo du matériel utilisé 2) Prélèveur en position ouverte pendant la descente dans le forage 3) Prélèveur en position fermée pendant la remontée de l'échantillon d'eau.....	63
Figure II.17: Photos d'utilisation in situ du préleveur manuel dans les forages lors des campagnes de mesure du radon dans l'eau, a) descente du préleveur b) remontée de l'échantillon d'eau c) et d) transfert de l'échantillon d'eau dans une fiole.....	64
Figure II.18: Prélèvement en utilisant une pompe : 1) Schéma du dispositif 2) Photo de la pompe MPI (Grundfos®).	65
Figure II.19: Photos d'utilisation in situ du système de pompage dans les forages de Stang-er-Brune ; a) premier plan : pompe de prélèvement, arrière plan : pompe utilisée pour l'essai de pompage, b) Tuyaux des pompes rentrant dans le forage.....	66
Figure II.20: Système de mesure par chambre d'ionisation	67
Figure II.21: a) Fiole scintillante et bouchon évidé b) Chambres de comptage équipées d'un photomultiplicateur c) Photomultiplicateur d) Fiole scintillante dans la chambre de comptage.....	69
Figure II.22: Photos d'échantillons de roches pour lesquels le flux d'exhalation surfacique du radon a été mesuré : a) micaschistes sains (Ech. C5), b) granite sain (Ech. C17) c) granite altéré et fracturé (Ech. C20) d) micaschistes altérés (Ech. C9).	70
Figure II.23: Système de mesure du flux d'exhalation des roches : 1) Mise en place du système 2) Schéma du système en fonctionnement 3) Photo du système pendant une mesure.	71
Figure III-1 : Activités volumiques du radon-222 mesurées dans l'aquifère de Ploemeur en Juin 2004 (sites de Kermadoye, la Fontaine St Maudé,, Stang-er-Brune et Loyan).Les points blancs correspondent aux forages non mesurés en juin 2004.	79

Figure III-2 : Activités volumiques du radon-222 mesurées dans l'aquifère de Ploemeur sur le site de Kermadoye. C'est la moyenne arithmétique des concentrations mesurées dans l'eau aux différentes profondeurs des forages qui a été considérée à l'exception des forages échantillonnés à une profondeur unique. Toutes les concentrations représentées sont celles mesurées en avril 2005 sauf celles des forages F17 et F32 (mai 2005).	80
Figure III-3 : Activités volumiques du radon-222 mesurées dans l'aquifère de Ploemeur en décembre 2004 sur le site de Stang-er-Brune. Les valeurs représentées correspondent à la moyenne des concentrations mesurées dans chaque forage.	82
Figure III-4 : Concentrations en radon dans l'eau en fonction de la profondeur pour les forages du site de Kermadoye (résultats de juin 2004).	84
Figure III-5 : Concentrations en radon dans l'eau en fonction de la profondeur dans le forage F28, mesurées en octobre 2001 par l'IRSN.	85
Figure III-6 : Variabilité des concentrations en radon dans l'eau des forages du site de Kermadoye. Les concentrations ont été mesurées en avril 2005 et en mai 2005 pour les forages F17 et F32.	86
Figure III-7 : Concentrations en radon dans l'eau en fonction de la profondeur dans les forages du site de Stang-er-Brune (résultats de décembre 2004).	87
Figure III-8 : Evolution du niveau piézométrique dans les forages F9 et F19 entre août 2003 et février 2006. La même tendance est observée dans la majorité des autres forages des sites de Kermadoye et Stang-er-Brune.	89
Figure III-9 : Evolution de la concentration en radon dans l'eau dans les forages du site de Kermadoye entre juin 2004 et avril 2005.	91
Figure III-10 : Comparaison des résultats de mesure de la concentration en radon dans l'eau du forage F28 du site de Kermadoye obtenus en octobre 2001, mars et juin 2004 et mai 2005.	92
Figure III-11 : Comparaison de la concentration en radon mesurée dans l'eau des forages du site de Stang-er-Brune en décembre 2004 et mai 2006.	95
Figure III-12 : Evolution de l'activité massique du radium dans la roche en fonction de la profondeur et de la géologie. Les échantillons de roches sont extraits des forages carottés B1 (Stang-er-Brune) et D2 (Le Couregant).	97
Figure III-13 : Comparaison de l'évolution de l'activité massique du radium et du flux d'exhalation du radon de la roche en fonction de la profondeur.	100
Figure III-14 : Comparaison de l'activité massique du radium et de la porosité de la roche avec le flux d'exhalation du radon de la roche.	101
Figure III-15 : Représentation schématique des conditions d'altération à proximité de l'interface fracture-matrice rocheuse dans le cas d'une fracture à l'intérieur de laquelle l'eau ne circule pas et dans le celui d'une fracture où un flux d'eau existe.	102
Figure III-16 : Activités volumiques du radon-222 et du radium-226 dans l'eau des forages des sites de Ploemeur. Les prélèvements des échantillons d'eau pour la mesure du radium-226 ont été réalisés lors de la campagne de mesure du radon d'avril 2004.	103
Figure III-17 : Influence du pompage de Kermadoye sur les activités volumiques du radium-226 mesurées dans l'aquifère de Ploemeur en Avril 2004 (Sites de Kermadoye, Stang-er-Brune et Loyan).	104
Figure III-18 : Résultats des mesures de débits réalisées dans les forages F34 et F28 en conditions de flux ambiantes et pompées. (Le Borgne et al. 2006)	106
Figure III-19 : Activités volumiques du radon dans l'eau des forages F34 et F28 en fonction de la profondeur (campagne de mesure de mai 2005) en conditions de flux ambiants.	107
Figure III-20 : Résultats de la diagraphie chimique réalisée sur le puits F28 et des concentrations en radon mesurées dans l'eau en mai 2005.	108

Figure III-21 : Résultats de la diagraphie chimique réalisée sur le puits F34 et des concentrations en radon mesurées dans l'eau en mai 2005.	108
Figure IV.1 : Evolution de la géologie et de l'activité volumique du radon dans l'eau en fonction de la profondeur dans les forages du site de Stang-er-Brune. Les caractéristiques hydrogéologiques de chaque forage (arrivées d'eau et flux verticaux) ont aussi été reportées.	114
Figure IV.2 : Schéma du modèle de fracture unique. L'eau converge radialement avec un débit Q à travers une fine fracture d'épaisseur h vers le forage.	117
Figure IV.3 : Photo de l'échantillon de granite C23 considéré comme représentatif de la lithologie d'une fracture connectée au réseau hydrogéologique.	119
Figure IV.4 : Représentation schématique du flux convergeant dans la fracture majeure induite par le flux vertical résultant de la différence de charge hydraulique entre la fracture 1 et la fracture 2.	122
Figure IV.5 : Evolution théorique de la concentration en radon dans l'eau en fonction du débit de l'eau de la fracture et comparaison avec la concentration mesurée in situ dans l'eau du forage. Les points rouges correspondent aux concentrations mesurées dans l'eau de la fracture majeure de chaque forage (campagne de décembre 2004).	123
Figure IV.6 : Evolution de la concentration en radon dans l'eau des forages B1, B2 et B3 pendant les tests réalisés en mai 2006. Les concentrations ont été mesurées pendant la durée du pompage dans le forage concerné.	129
Figure IV.7 : Variation globale de la concentration en radon dans l'eau des forages du site de Stang-er-Brune, au cours de la durée totale des essais de pompages effectués en mai 2006. La concentration a été mesurée dans le forage pompé ainsi que dans les 3 autres forages afin d'étudier l'influence globale du pompage sur la concentration en radon dans les eaux souterraines du site. Les barres verticales colorées indiquent le forage pompé et la durée du pompage.	130
Figure IV.8 : Variations du niveau piézométrique dans les forages F22, B1 et B3 ainsi que dans le piézomètre P1 durant les essais de pompage. Les lignes en pointillé indiquent la durée des pompages dans les différents forages.	132
Figure IV.9 : Représentation schématique des notions de matrice et de réseau de fracture dans l'aquifère.	135
Figure IV.10 : Evolution de l'activité volumique du radon dans l'eau porale de la matrice rocheuse en fonction du coefficient d'émanation pour différentes valeurs de porosité de la roche.	136
Figure IV.11 : Surfaces 3D du niveau piézométrique de la nappe à 3 dates différentes depuis la mise en exploitation de l'aquifère : a) 27/05/91, b) 25/02/94 et c) 27/02/97. (Touchard, 1999)	139
Figure IV.12 : Evolution de la géologie et de l'activité volumique du radon mesurée dans l'eau en fonction de la profondeur dans les forages du site de Kermadoye. Les caractéristiques hydrogéologiques de chaque forage (arrivées d'eau et flux verticaux) sont également reportées.	141
Figure IV.13 : Résultats des mesures de débits réalisées dans les forages F11, F19, F28, F32, F34 et F35 en conditions de flux ambiantes et pompées. (Le Borgne , 2006)	142
Figure IV.14 : Evolution théorique de la concentration en radon dans l'eau en fonction du débit de l'eau de la fracture et comparaison avec la concentration mesurée dans l'eau du forage. Les courbes ont été calculées en utilisant l'équation (3). Les points correspondent aux concentrations mesurées dans l'eau de la fracture principale de chaque forage.	147
Figure IV.15 : Représentation schématique d'un mélange entre une eau circulant dans le réseau de fractures et une eau issue des pores de la matrice rocheuse.	154
Figure V.1 : Evolution des concentrations en nitrates, sulfates et chlorures (en mg.L ⁻¹) dans le puits exploité, Pe (Ayraud, 2006, Tarits et al. 2006)	160
Figure V.2 : Localisation des trois groupes d'eau mis en évidence sur le site de Ploemeur par l'analyse hydrochimique globale. La ligne pointillée indique la direction de la faille N20° présente sur le site. (Ayraud, 2006)	161

Figure V.3 : Modèle hydrochimique du site de Kermadoye (Tarits et al. 2006).....	162
Figure V.4 : Représentations des conditions de flux hydrauliques, a) sans influence du pompage, b) le pompage entraîne la diminution de la vitesse de circulation de l'eau et une augmentation du nombre de zones où l'eau circule, c) le pompage provoque l'augmentation de la vitesse de circulation de l'eau.	165
Figure V.5 : Activité volumique du radon en fonction du rapport $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ dans les eaux analysées à Kermadoye (avril 2004 et juin 2005).	167
Figure V.6 : Activité volumique du radon en fonction du rapport $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ dans les eaux du groupe I identifié à Kermadoye (avril 2004 et juin 2005). A noter, la différence d'échelle pour le rapport $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ par rapport au graphique de la figure V.5.....	168
Figure V.7 : Activité volumique du radon en fonction du rapport $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ dans les eaux prélevées à Stanger-Brune en décembre 2004.....	169
Figure V.8 : Evolution de la concentration dans l'air atmosphérique du SF ₆	173
Figure V.9 : Concentration en SF ₆ en fonction de l'activité volumique du radon dans l'eau. La ligne rouge en pointillés indique la concentration en SF ₆ d'une eau de pluie actuelle en équilibre avec l'air atmosphérique. Les concentrations en radon ont été mesurées en avril 2005, à l'exception de celles des forages B1, B3 et F22, mesurées en décembre 2004.....	176
Figure V.10 : Représentation schématique de l'influence de l'épaisseur des fractures sur les concentration en SF ₆ et ²²² Rn dans l'eau.....	178
Figure V.11 : Schéma conceptuel illustrant l'influence des flux hydrauliques sur les concentrations en SF ₆ et ²²² Rn ainsi que sur la dénitrification.....	180
Figure A-V.14 : Exemple de graphique donnant l'évolution de la concentration de radon dans l'air du système.	211
Figure A-V.15 : Exemple de graphique donnant l'évolution de la concentration de radon dans l'air du système au cours de la phase d'accumulation.	221

Liste des Tableaux

Tableau I.1 : Principales propriétés physico-chimiques du radon (en italique : ordres de grandeur).....	15
Tableau I.2 : Coefficient de diffusion du ²²² Rn dans différents milieux.....	20
Tableau I.3 : Teneurs en uranium des grands types de roche.....	23
Tableau I.4 : Activités massiques du radium 226 dans les roches.....	24
Tableau I.5 : Densités et porosités dans les grands types de roches.....	25
Tableau I.6 : Ordre de grandeur des concentrations en radon dans les eaux souterraines pour différents types de roches.....	25
Tableau II.1 : Caractéristiques des préleveurs de la société ISMA® utilisés.....	62
Tableau II.2 : Echantillons de roches sélectionnés sur la carotte extraite du forage B1.	70
Tableau III.1 : Activités massiques du radium-226 mesurées dans les échantillons de roches des carottes extraites des forages B1 (Stang-er-Brune) et D2 (Le Couregant).	96
Tableau III.2 : Flux d'exhalation mesurés sur les échantillons de roches sélectionnés sur la carotte extraite du forage B1 : les échantillons C20 et C23 sont composés de plusieurs sous-échantillons provenant d'une zone fracturée.	98
Tableau III.3 : Activités volumiques du radium-226 mesurées dans l'aquifère de Ploemeur en Avril 2004 (Sites de Kermadoye, Stang-er-Brune et Loyan).....	103

Tableau IV.1 : Epaisseurs équivalentes calculées pour les fractures des forages du site à partir des transmissivités en utilisant la loi cubique.....	121
Tableau IV.2 : Valeurs de transmissivité T, d'épaisseur équivalente h, de débit Q et de flux d'exhalation E utilisées pour modéliser les concentrations en radon dans l'eau des fractures principales des 4 forages du site. Les concentrations en radon mesurées in situ dans l'eau, aux profondeurs correspondantes, sont également reportées.	122
Tableau IV.3 : Débit et durée des pompages réalisés dans les forages B2 B3, F22 et B1 en mai 2006.....	128
Tableau IV.4 : Propriétés hydrauliques des forages F11, F19, F28, F32, F34 et F35 : débit de l'eau dans les fractures (Q), transmissivité (T) et coefficient d'emménagement (S).	143
Tableau IV.5 : Epaisseurs équivalentes (h) calculées pour les fractures des forages du site à partir des transmissivités (T) en utilisant la loi cubique.....	144
Tableau IV.6 : Estimation des rayons d'influence calculés pour les forages du site de Kermadoye.	145
Tableau IV.7 : Valeurs de transmissivité T, d'épaisseur équivalente h, de débit Q, de rayon du disque source b et de flux d'exhalation E utilisées pour modéliser les concentrations en radon dans l'eau des fractures. Les concentrations en radon mesurées sur site sont également mentionnées.....	145
Tableau V.1 : concentrations en SF ₆ mesurées dans l'eau de l'aquifère de Ploemeur.	175
Tableau V.2 : âges de l'eau dans les forages estimés par la méthode CFC, concentration en SF ₆ mesurées dans l'eau, concentration en SF ₆ théorique calculée à partir de l'âge de l'eau et écart entre concentrations en SF ₆ mesurées et théoriques.	177

Résumé :

Les aquifères fracturés hétérogènes se développant dans les roches cristallines, telles que les schistes et les granites, assurent 20% de l'alimentation en eau potable de la Bretagne. Ces milieux fracturés présentent une large gamme de perméabilités. Dans ces aquifères, les circulations de fluides et le transport des éléments dissous dans l'eau sont fortement dépendants de la géométrie du réseau de fractures. Une meilleure compréhension du fonctionnement hydrogéologique de ces systèmes est essentielle pour la gestion et la protection de ces ressources en eaux souterraines. Le radon-222 est un gaz rare radioactif dissous dans l'eau et issu de la chaîne de désintégration de l'uranium-238 contenu dans la roche encaissante de l'aquifère. Les concentrations en radon dans les eaux souterraines sont donc susceptibles d'apporter des informations sur la surface de contact entre l'eau et la roche ainsi que d'être utilisés comme un traceur des échanges hydrauliques entre les différentes zones de l'aquifère.

Trois résultats principaux ont été obtenus dans cette étude :

1. Une caractérisation détaillée des activités volumiques du radon dans l'eau de l'aquifère de Ploemeur (Morbihan) a été réalisée. Une variabilité spatiale importante des concentrations en radon dans l'eau a été mise en évidence dans l'aquifère, la gamme de concentrations mesurées s'étendant de 0 à 1500 Bq.L⁻¹.

2. L'influence de l'épaisseur des fractures sur la quantité de radon dissous dans l'eau a été mise en évidence lors de la modélisation des activités volumiques du radon dans l'aquifère. En effet, les résultats satisfaisants obtenus lors de l'utilisation d'un modèle considérant le réseau de fractures sous la forme d'une fracture unique semble souligner le rôle prépondérant joué par les propriétés géométriques des fractures.

3. La mesure de la concentration en radon dans l'eau de l'aquifère pendant des essais de pompages a mis en évidence une augmentation de l'activité volumique en radon lorsque les ressources en eau souterraines sont sollicitées. Cette évolution semble liée à l'existence de flux hydrauliques entre les zones très perméables du système, constituées des fractures principales d'épaisseur importante, et les zones beaucoup moins perméables, telles que la matrice rocheuse peu altérée et le réseau de fractures secondaires. La comparaison de la variabilité des activités volumiques du radon dans l'eau avec celle d'autres traceurs a permis de conforter cette hypothèse. En effet, des corrélations ont été établies entre la concentration en radon dans l'eau et le rapport $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ ainsi que la teneur en SF_6 des eaux souterraines. Les résultats obtenus à l'aide de ces

traceurs semblent confirmer une contribution de l'eau contenue dans la matrice rocheuse au flux d'eau circulant dans le réseau de fractures.

Mots clés : Radon, eaux souterraines, milieu fracturé, granite, exhalation, gaz, radioactivité.

Abstract:

Heterogeneous fractured aquifers which developed in crystalline rocks, such as schist or granite, supply 20% of tap water production of Brittany. These fractured media present a large range of permeability. In these aquifers, fluid flow and transport of elements dissolved in water are strongly related on the geometry of the fractured network. Increasing the knowledge of the hydrogeological behaviour of the aquifer is fundamental for the management and the protection of the groundwater resources. Radon-222 is a radioactive noble gas produced from radium-226 further to the radioactive decay of uranium-238; it occurs naturally in ground waters and derives primarily from U-rich rocks and minerals that have been in contact with water. Radon-222 concentrations in waters are liable to provide significant and relevant information on both the geometry of a fracture network and the flow distribution. Furthermore, radon may also be used as a tracer in the aquifer of water exchanges between zones of variable permeability.

Three main results were obtained in this study:

1. An accurate characterisation of the radon concentrations in water was carried out in the Ploemeur aquifer (Brittany, France). These results highlight the variability in the spatial and vertical distributions of ^{222}Rn activity in groundwater together with a wide range of concentrations extending from 0 to 1 500 Bq.L⁻¹.
2. The influence of fracture aperture on radon content in groundwater has been demonstrated with the modelling of radon concentration. Indeed, the satisfactory results obtained with a simple crack model highlight that the geometry of the fracture network controls the radon activity in groundwater.
3. Thus, the results of pumping tests performed in the boreholes improved our understanding of the system. After the pumping test, an increase of the radon content in groundwater occurred and evidenced a contribution of a radon-rich water to supply the flow rate that seems to come from the low-permeability rock matrix. Indeed, a water flow seems to occur between the most permeable zones of the aquifer, made up of the main flow pathways, and the zones with low permeability, consisted of the unfractured rock matrix and secondary fractures of lower permeability. Then, we compared the variability of radon volume activity with the evolution of the $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ ratio and the SF_6 content of groundwater. The results obtained with these tracers seem to allow the hypothesis of a water flux from the rock matrix to the fractured network.

Key words: Radon, groundwater, fractured media, granite, exhalation, gas, radioactivity.

Introduction

La majorité des aquifères exploités en France sont localisés dans les grands bassins sédimentaires : le Bassin parisien et le Bassin aquitain. Les ressources sont contenues dans des milieux poreux continus, tels que des sables, calcaires ou grès. Jusqu'à la sécheresse de 1976, les massifs anciens, comme par exemple le Massif armoricain ou le Massif central, n'étaient pas considérés comme des réservoirs en eaux souterraines car les roches les composant, telles que les granites, basaltes ou schistes, sont caractérisées par des perméabilités très faibles (Figure i.1).

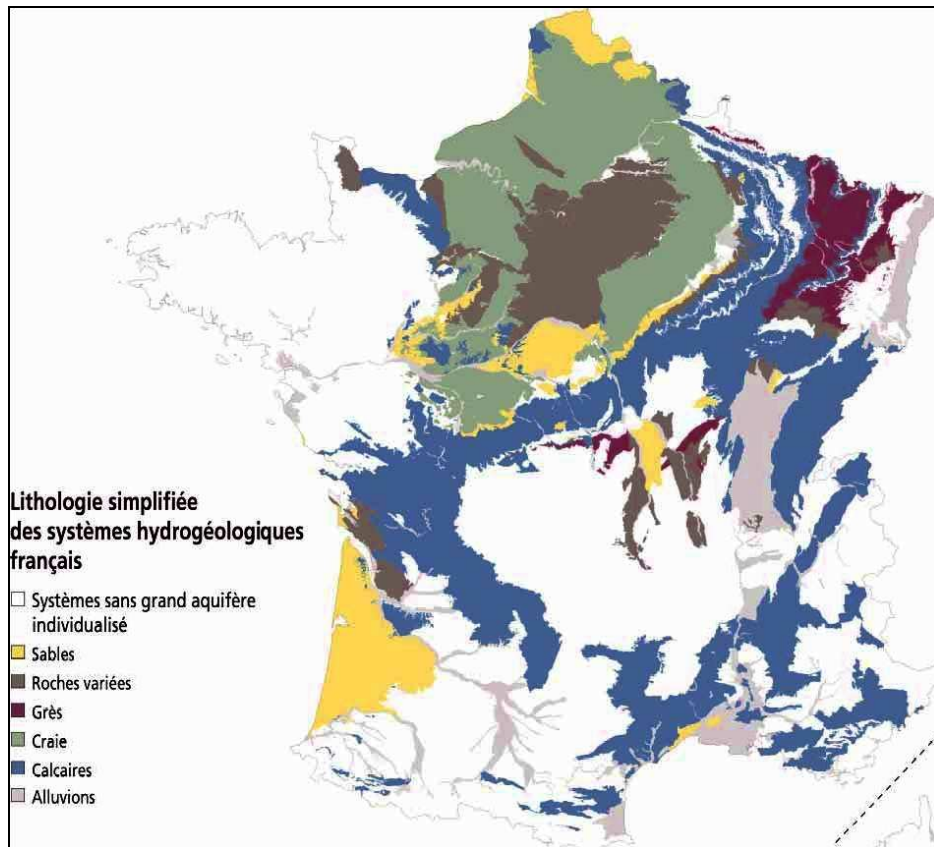


Figure i.1 : Carte hydrogéologique simplifiée de la France (source : Institut Français de l'Environnement)

Avec le développement des techniques de forages, notamment la technique de marteau fond de trou, la prospection des ressources en eaux dans ces milieux s'est accrue. La présence de fractures conductrices, dans lesquelles circulent des quantités d'eau suffisamment importantes pour être exploitées ont ainsi pu être mises en évidence dans les zones de socle. Ainsi, pour la région Bretagne, 20% des ressources en eau potable sont des eaux souterraines. Il s'agit très souvent de petits aquifères qui permettent l'alimentation en eau potable de petites et moyennes communes.

Dans la plupart des cas, les eaux souterraines sont une solution à un problème de pollution des eaux de surface qui constituent la principale source en eau potable.

L'existence de ressources en eaux importantes dans certaines formations géologiques du massif armoricain a conduit à la mise en exploitation de puits profonds (100 m) dans certaines parties de la Bretagne. Les ressources en eaux souterraines de la commune de Ploemeur appartiennent à cette catégorie. Afin d'avoir une bonne gestion de ces réserves en eaux, la compréhension des mécanismes qui gouvernent les flux et la chimie de ce type de réservoir est essentielle.

Le radon-222 est un gaz radioactif d'origine naturelle, produit par la désintégration du radium-226, descendant lui-même de l'uranium-238 présent dans les roches. Ce gaz est ensuite dissous dans l'eau en contact avec la roche dont il est issu. En 1988, le caractère cancérigène du radon a été reconnu par l'Agence Internationale de Recherche sur le Cancer (NRC, 1988), et en 2001, dans le cadre d'une réflexion globale sur l'eau, la commission européenne a émis une recommandation concernant la protection de la population contre l'exposition au radon dans l'eau potable (CEE, 2001).

L'objectif de ce travail de thèse est, d'une part, d'acquérir des données sur la concentration en radon dans les eaux souterraines exploitées en France et, d'autre part, d'utiliser le radon comme traceur afin de préciser les propriétés hydrogéologiques des réseaux de fractures. La méthode employée consiste, dans un premier temps, à caractériser précisément les activités volumiques du radon dans l'eau de l'aquifère de Ploemeur. Dans un deuxième temps, l'identification et l'estimation des paramètres contrôlant la concentration en radon dans l'eau doivent nous permettre d'interpréter d'éventuelles variations de cette dernière dans l'aquifère de Ploemeur et de préciser le fonctionnement hydrogéologique du système.

Le chapitre I est tout d'abord une présentation des caractéristiques et de la problématique des aquifères en milieu fracturé de socle. Ensuite, les propriétés du radon et les mécanismes impliqués dans sa formation et sa migration sont rappelés. Dans cette première partie, nous examinons également la distribution du radon dans les eaux souterraines ainsi que les facteurs influençant sa concentration dans l'eau. Enfin, à partir d'une étude bibliographique, nous dressons un bilan des différentes approches suivies pour modéliser l'activité volumique du radon dans une eau souterraine.

La démarche choisie pour mener à bien ce travail de recherche est ensuite décrite dans le chapitre II. La localisation et les caractéristiques géologiques et hydrogéologiques des sites sont présentées. Dans cette partie, les méthodes d'acquisition des données expérimentales sont également explicitées.

La première étape de ce travail a consisté en une caractérisation détaillée des activités volumiques du radon dans les eaux souterraines de Ploemeur. Le chapitre 3 s'attache tout d'abord à présenter les variations spatiales et temporelles mises en évidence dans l'aquifère à partir des résultats expérimentaux obtenus au cours des différentes campagnes de mesures. La suite de cette partie porte sur la caractérisation du terme source du radon, réalisée afin de déterminer l'origine du radon dans l'eau de l'aquifère. Les résultats des mesures des flux d'exhalation du radon des roches ainsi que des concentrations en radium et uranium dans la roche et dans l'eau sont présentés.

Afin d'expliquer les variations observées dans l'aquifère de Ploemeur, nous confrontons dans le chapitre IV, les résultats obtenus lors de la modélisation des activités volumiques du radon dans les eaux souterraines des deux sites principaux de l'étude : Stang-er-Brune et Kermadoye. Le modèle utilisé simplifie le réseau de fracture en l'assimilant à une unique fracture, de propriétés hydrauliques équivalentes. En complément de cette étape de modélisation, des essais de pompages ont été réalisés afin de tester l'influence des conditions de circulation de l'eau sur la concentration en radon dans l'eau afin d'étudier les échanges hydrauliques entre la matrice et le réseau de fractures.

Enfin dans le dernier chapitre, l'apport de traceurs supplémentaires, la concentration en nitrates et la teneur en gaz SF₆ de l'eau, est examinée afin de préciser les relations hydrogéologiques susceptibles d'exister entre la matrice rocheuse et les fractures. La comparaison des différents éléments, nous permet de proposer un modèle conceptuel de fonctionnement hydrogéologique de l'aquifère de Ploemeur.

Cette thèse s'inscrit dans le cadre du Projet de Recherche d'Intérêt Régional DATEAU pilotée par le Centre Armoricaïn de Recherche en Environnement (CAREN, Université de Rennes 1). Elle est financée par la région Bretagne et par l'IRSN. Cette étude a permis la collaboration scientifique de l'IRSN, des universités de Bretagne Occidentale et de Rennes 1.

Chapitre I : Etat de l'art : aquifères en milieu fracturé et radon-222

Le chapitre I est tout d'abord une présentation des caractéristiques et de la problématique des aquifères en milieu fracturé de socle. Ensuite, les propriétés du radon et les mécanismes impliqués dans sa formation et sa migration sont rappelés. Dans cette première partie, nous examinons également la distribution du radon dans les eaux souterraines ainsi que les facteurs influençant sa concentration dans l'eau. Enfin, à partir d'une étude bibliographique, nous dressons un bilan des différentes approches suivies pour modéliser l'activité volumique du radon dans une eau souterraine.

I LES AQUIFERES EN MILIEU DISCONTINU : CARACTERISTIQUES

I.1 Introduction

La majorité des aquifères exploités sont localisés dans des milieux poreux continus, tels que des sables, calcaires ou grès. On peut considérer que la perméabilité de ces milieux est identique en tout point de l'aquifère. Si l'intérêt pour les milieux poreux continus date de plus d'un siècle (Darcy, 1856), l'étude des aquifères en milieu fracturé est plus récente.

Les milieux fracturés sont des milieux hétérogènes aux perméabilités multiples. Dans ce type de milieu, le réseau de fractures constitue un premier système, à forte perméabilité et les blocs de matrice entourant les fractures représentent un second système, à faible perméabilité. Le milieu fracturé peut ainsi être assimilé à une superposition de milieux poreux classiques, avec des porosités à différentes échelles (notamment la matrice de faible porosité et le réseau de fractures principal).

Les différents types de discontinuité rencontrés dans ces milieux (failles, fractures, alternance de roches sédimentaires perméables et imperméables) s'étalent sur plusieurs ordres de grandeurs, du micron à la dizaine de kilomètres (Figure I.1).

L'étude des milieux fracturés est liée principalement à quatre grandes problématiques :

(1) Le choix de site naturels pour le **stockage profond des déchets nucléaires** (Backblom et al., 1997; Kojima and Ohno, 1987; Mazurek et al., 2000; Widestrand et al., 2001). Le milieu le plus imperméable possible est recherché pour former une barrière à la circulation de fluides (Neuman, 2005). Il serait alors envisageable d'y stocker des éléments radioactifs à vie longue et de minimiser ainsi leur risque de fuite vers l'environnement. En France, les flux hydrauliques dans un réseau de fracture du site granitique de Fanay-Augères (Massif Central) ont été modélisés afin de développer une méthodologie d'investigation des réseaux fracturés applicable à de futurs sites de stockage de déchets nucléaires (Cacas, 1990a; Cacas, 1990b). Au niveau international, des projets de recherche de grande envergure ont été développés en Suède, à Stripa (Neretnieks, 1993) et Äspö (Mazurek et al., 2003). Ces études ont permis d'approfondir la connaissance du transfert et de la migration des radionucléides dans des aquifères en milieu cristallin fracturé (Andrews et al., 1989a; Andrews et al., 1989b; Andrews et al., 1982; Andrews et al., 1989c; Backblom et al., 1997; Fabryka-Martin et al., 1989; Loosli et al., 1989; Widestrand et al., 2001).

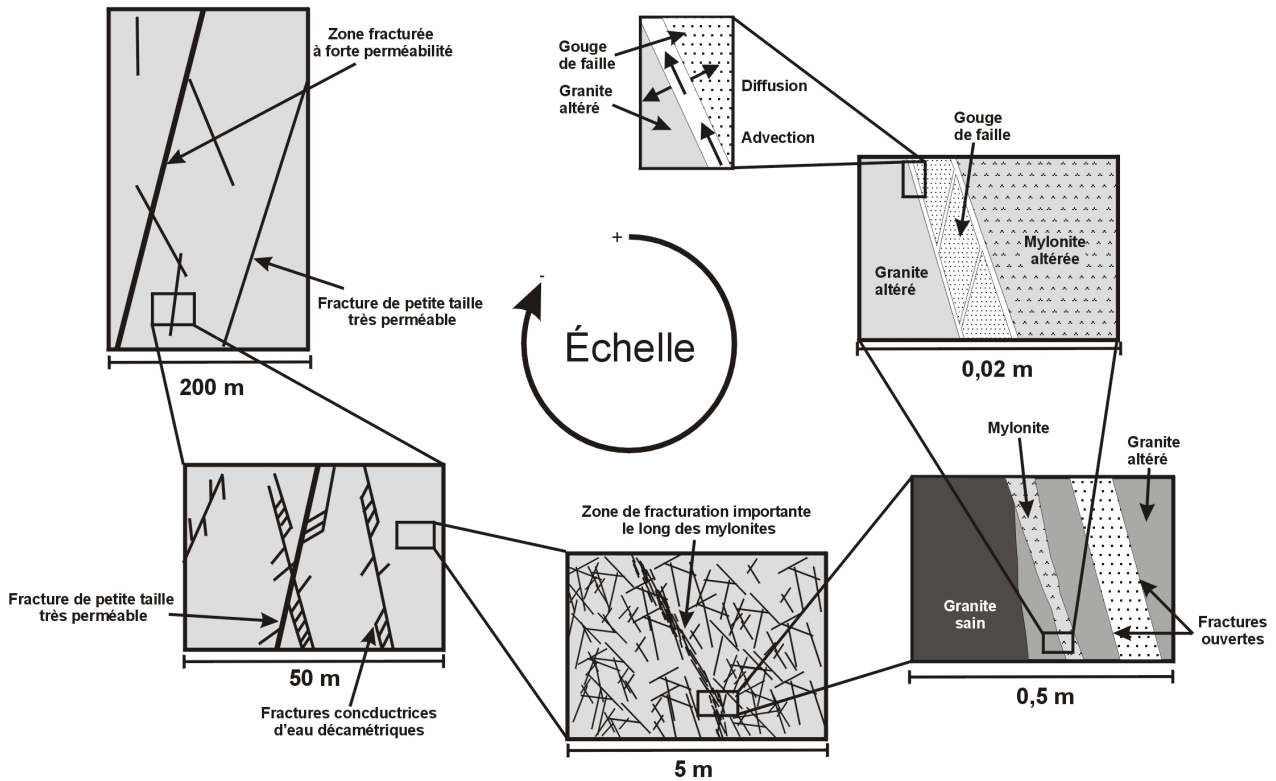


Figure I.1: Modèles conceptuels représentant la géométrie des fractures et des flux d'eaux à différentes échelles, d'après (Mazurek et al., 2003).

(2) La recherche et l'étude des **réserves en eau souterraine** dans des milieux fracturés cristallins (Fritz, 1997; Stober and Bucher, 1999a; Stober and Bucher, 1999b; Stober and Bucher, 2005). Bien que la porosité de la matrice soit faible, de 1 à 5 %, la présence d'une fracturation importante dans les roches cristallines rend possible l'existence de ressources en eau non négligeables.

(3) L'exploration et la gestion des **ressources pétrolières** (Howard and Nolen-Hoeksema, 1990; Will et al., 2004; Wilson, 1975). Une bonne connaissance du rôle joué par les failles dans le piégeage de l'huile et dans les écoulements est nécessaire pour déterminer si les fractures servent plutôt de drains ou de barrières. En effet, ces fractures peuvent représenter un volume de vide important, accroissant ainsi la perméabilité de la roche et drainant les fluides, ou au contraire constituer de véritables barrières au flux global lorsque des recristallisations de minéraux ou des argiles remplissent cet espace (de Marsily, 1986).

(4) L'étude et l'exploitation de **champs géothermaux** (Kato et al., 1998; Ruggieri and Gianelli, 1999) pour une utilisation dans le domaine de l'énergie.

I.2 Modélisation des aquifères en milieu fracturé : les différentes approches existantes

La modélisation des écoulements souterrains dans les roches cristallines ou les milieux karstiques, nécessite l'évaluation du rôle de la fracturation. En grande partie nettement plus perméables que le milieu environnant, les fractures forment, en effet, des chemins d'écoulement préférentiels. Suivant leur densité, leur taille, leur organisation dans le milieu environnant et leurs propriétés physiques, elles modifient significativement les propriétés hydrauliques du milieu sain (non fracturé). La modélisation des écoulements de fluides dans les milieux fracturés se heurte à la complexité géométrique des réseaux de failles dont les effets d'échelle sont encore mal maîtrisés.

Trois types d'approches sont employés pour la modélisation des milieux fracturés :

- L'**approche continue**, fréquemment utilisée pour la description des milieux poreux, consiste à définir un volume élémentaire représentatif (VER) du milieu. Ce VER est le plus petit volume qui possède les propriétés physiques représentatives du milieu étudié à l'échelle macroscopique (de Marsily, 1986). Cependant cette approche est très mal adaptée au traitement des discontinuités du milieu. La longueur des fractures ainsi que les corrélations spatiales entre fractures ne sont pas limitées, si bien que les milieux fracturés ne sont pas généralement assimilables à des milieux poreux équivalents.

- L'**approche discrète** propose d'établir, comme alternative à cette approche continue, un modèle discret de réseau de fractures aussi proche que possible du réseau fracturé naturel et d'en étudier les propriétés hydrauliques. Dans cette méthode, la qualité de la modélisation hydraulique dépend de la précision de la caractérisation de la géométrie du réseau de fractures et des propriétés physiques des fractures. Les forages, qui sont quasiment les seuls moyens d'observation directe du sous-sol, ne représentent qu'une très faible portion du milieu. De ce fait, même avec l'instrumentation la plus détaillée, l'hétérogénéité des flux et du milieu ne peut pas être connue dans son intégralité. Ainsi les méthodes d'investigation géologique, géophysique, géochimique et hydraulique ne permettent-elles pas d'obtenir une image complète du réseau de fractures mais conduisent au mieux à des informations limitées à certaines fractures majeures et à une caractérisation statistique de la fracturation. Il est alors nécessaire d'employer des modèles physiques qui prennent en compte l'effet de l'hétérogénéité, paramètre inaccessible par la mesure.

L'approche discrète se heurte ainsi au manque de données sur le milieu fracturé. En effet, selon l'échelle d'investigation du réseau de fracture, le nombre de fractures et leur extension varie de plusieurs ordres de grandeur (Figure I.2).

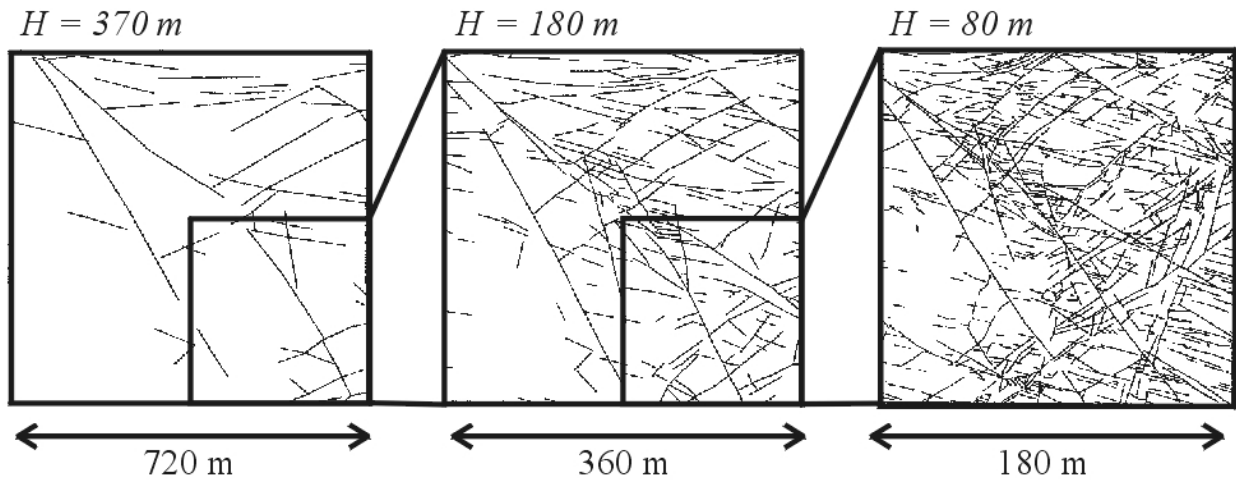


Figure I.2 : Effet de la résolution sur la caractérisation d'une surface fracturée. Avec la diminution de la résolution et l'augmentation de la hauteur d'observation H , les petites fractures ne sont plus visibles et les structures complexes de fractures en échelons ne forment plus qu'une fracture unique, d'après (Odling, 1997).

D'un côté, l'approche continue est définie par un nombre limité de paramètres mais ne peut être validée *a priori*, et de l'autre côté, l'approche discrète procure un modèle plus réaliste de milieu fracturé mais nécessite une connaissance précise de la fracturation qui demeure difficilement accessible.

- **L'approche hybride** combine les avantages respectifs des approches discrète et continue. Cette approche définit, à partir de modèles de réseaux de fractures discrets, des modèles de milieux simplifiés dont les paramètres peuvent être directement déterminés sur le terrain. Son utilisation est facilitée par la concentration des flux hydrauliques dans un nombre limité de fractures (Figure I.3a), ce qui permet de restreindre le nombre de fractures à étudier. La Figure I.3b représente une cartographie des fractures de la galerie du site de Stripa (Suède) : l'une des fractures (localisée dans la zone H) fournit à elle seule 80 % des flux d'eau de la zone.

L'une des difficultés majeures rencontrée dans l'approche hybride tient à la précision de l'influence des distributions de longueurs et d'ouvertures de fracture dans le choix des modèles d'écoulement simplifiés pertinents (de Dreuzy, 2000).

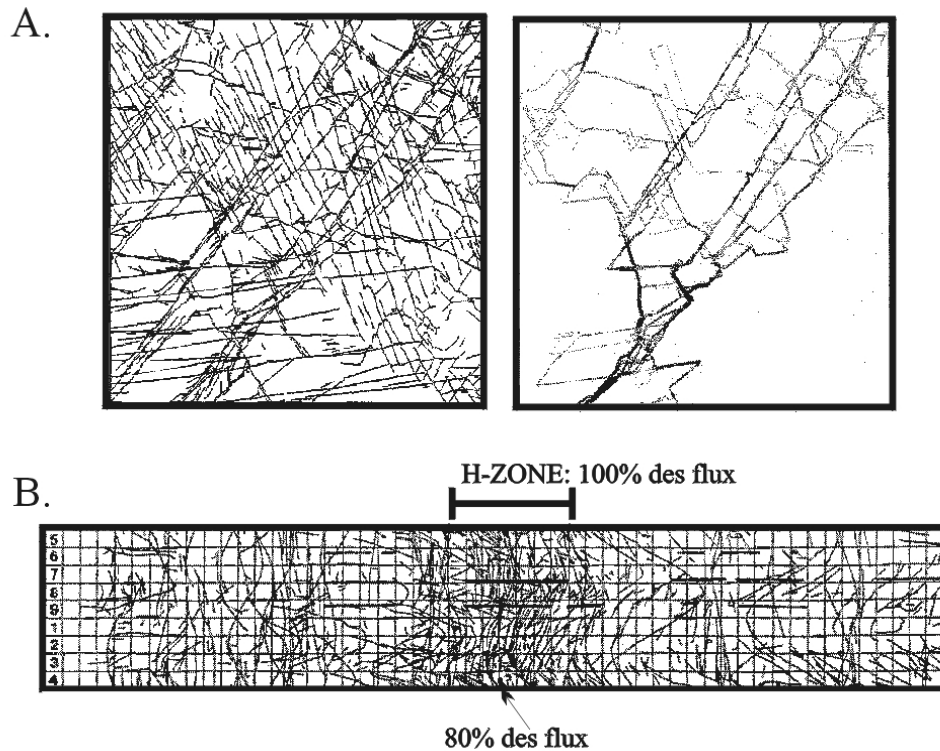


Figure I.3 : Concentration des flux d'eau dans un réseau de fractures. a) Cartographie d'un réseau de fractures dans le bassin de Hornelen (Norvège) et flux d'eau principaux dans ce réseau d'après Odling (1997). b) Carte des fractures dans la galerie de Stripa (Suède) et la zone H où est localisée la majeure partie des arrivées d'eau. La flèche situe la fracture qui fournit 80% du flux de la zone, d'après (Olsson, 1992).

I.3 Représentation et propriétés hydrauliques d'une fracture unique

Une fracture est fréquemment représentée par une paire de **plans lisses parallèles** entre lesquels circule un flux d'eau (Figure I.4).

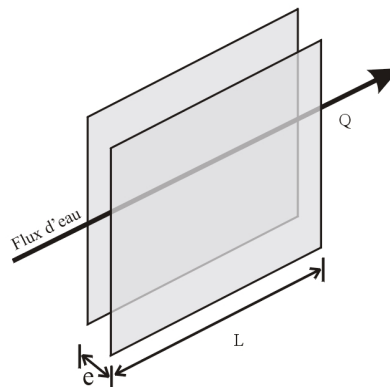


Figure I.4 : Représentation schématique d'une fracture d'épaisseur e sous la forme de deux plans parallèles lisses de longueur L entre lesquels circule un flux d'eau avec un débit Q .

Cette représentation est fréquemment utilisée pour la modélisation des fractures car elle permet d'exprimer la transmissivité d'une fracture, T ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$) en fonction de son ouverture, e (m) selon l'expression, couramment appelée loi cubique (de Marsily, 1986) :

$$T = \frac{e^3 \cdot \rho}{12 \cdot \mu}$$

Avec ρ , la masse volumique de l'eau et μ , la viscosité dynamique de l'eau.

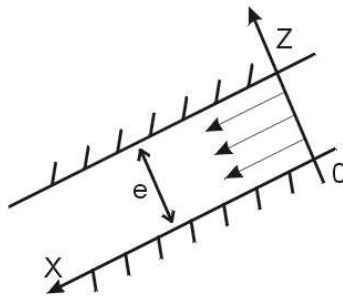


Figure I.5 : Fracture d'épaisseur e et de perméabilité K

Dans un milieu où la perméabilité K ($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$) est isotrope et constante suivant une direction orthogonale à la direction de l'écoulement de l'eau dans la fracture (Figure I.5), la transmissivité dépend de la perméabilité K et de l'épaisseur du milieu e (m) :

$$T = K \cdot e$$

Cependant la loi cubique a été remise en question et de nombreux inconvénients sont évoqués dans la littérature (Tsang, 1992). Il est désormais communément admis que les parois des fractures possèdent une certaine rugosité (Figure I.6) avec une organisation proche d'une géométrie fractale. Il se crée une hétérogénéité des flux à l'intérieur même de la fracture et des zones d'échanges privilégiées avec la matrice où les flux sont ralentis (Berkowitz, 2002; Hakami and Larsson, 1996; Tsang and Neretnieks, 1998).

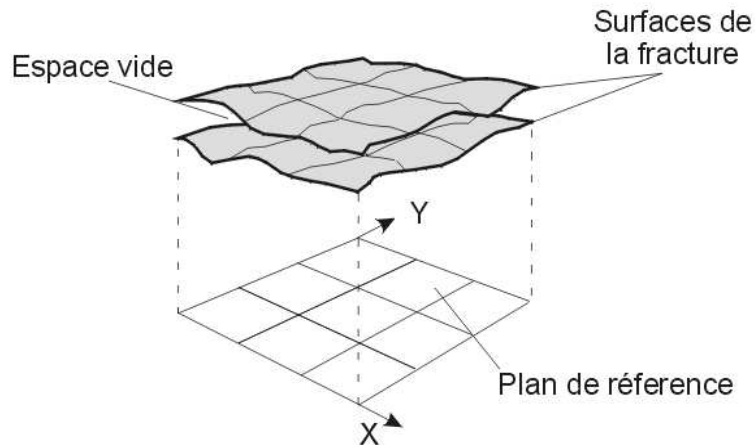


Figure I.6 : Schéma d'une fracture sous la forme de plans rugueux (d'après Hakami and Larsson, 1996).

Lors de l'étude de la géochimie des aquifères en milieu fracturé, le choix de la géométrie utilisée pour représenter la fracture a une influence à ne pas négliger. En effet, le choix de l'une ou l'autre des représentations va déterminer directement la surface de contact entre l'eau et la roche. Cette surface est l'un des paramètres importants à prendre en compte dans la modélisation du transfert des éléments chimiques de la roche encaissante vers l'eau circulant dans la fracture.

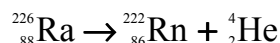
II. LE RADON : PROPRIETES, ORIGINE ET MIGRATION

II.1 Propriétés

II.1.1. Généralités

L'uranium-235, le thorium-232 et l'uranium-238 font partie des radionucléides primordiaux, éléments radioactifs présents dans la croûte terrestre depuis sa formation. Leur période radioactive leur a permis d'être encore présents aujourd'hui à l'état de traces (1 à 10 ppm). Chacun d'eux conduit, par désintégrations successives, à une dizaine de radionucléides puis à un isotope stable du plomb (Figure I.7). Ils forment ainsi les trois grandes familles radioactives naturelles. Chacune contient un isotope du radon, produit de filiation gazeux : le radon-219, le radon-220 et le radon-222. Ils sont formés par la désintégration α du radium parent.

Si l'on considère la désintégration d'un noyau instable de radium-226, elle conduit à la formation d'un atome de radon-222, accompagnée de l'émission d'un noyau d'hélium (ou particule α) :



Le radon-222 est l'isotope du radon le plus abondant dans l'atmosphère, du fait de sa période radioactive relativement longue par rapport à celle des autres isotopes et de l'abondance de son précurseur, l'uranium-238. Dans le cadre de ce travail le terme radon désignera désormais l'isotope 222.

II.1.2. Propriétés physico-chimiques du radon

Le radon ($Z = 86$) appartient à la famille des gaz nobles de la classification périodique de Mendeleïev. Il est incolore, inodore et dans les conditions environnementales usuelles, inerte. Ses principales propriétés physico-chimiques sont résumées dans le tableau I-1.

La solubilité du radon dans l'eau est plus importante que celle des autres gaz inertes. Le coefficient de solubilité (L) sert à mesurer sa solubilité et est défini comme :

$$L = C_w / C_g$$

Avec C_w , la concentration du radon dans l'eau (en Bq.L^{-1})

C_g , la concentration du radon dans la phase gazeuse (Bq.L^{-1})

La solubilité dans l'eau dépend de la température et suit la loi empirique de Meyer :

$$L = 0,105 + 0,405 \cdot e^{-0,0502 \cdot T}$$

Avec T , la température de l'eau en °C

Par conséquent, l'eau dissout environ deux fois plus de radon à 0°C qu'à température ambiante.

Tableau I.1 : Principales propriétés physico-chimiques du radon (en italique : ordres de grandeur)

Radon	
Numéro atomique (Z)	86
Gamme isotopique (A)	200-226
Potentiel d'ionisation (eV)	10,7
Température de fusion (°C)	-71
Température d'ébullition (°C)	-62
Densité à 18°C et 1 bar (kg.m ⁻³)	9,96
Solubilité dans l'eau à 20°C (m ³ .m ⁻³ d'eau)	0,23
Coefficient de sorption (m ³ .kg ⁻³)	
<i>charbon (20°C)</i>	2 à 6
<i>granite (roche, 0°C, 0 % eau)</i>	10 ⁻⁴
<i>quartz (sable, 0°C, 0 % eau)</i>	< 3.10 ⁻⁵
Coefficient de diffusion (m ² .s ⁻¹)	
<i>Air</i>	10 ⁻⁵
<i>Eau</i>	10 ⁻⁹

La diffusion du radon dans l'eau est beaucoup moins rapide que dans l'air. Si le radon est adsorbé très facilement sur certains solides comme le charbon, la capacité de sorption des matériaux constitutifs de la croûte terrestre est souvent négligeable, à 20°C et pour des teneurs en eau supérieures à 10% massiques. Il faut cependant tenir compte de l'effet d'adsorption lors de calculs de transport du radon dans des sédiments riches en matière organique (Wong et al., 1992).

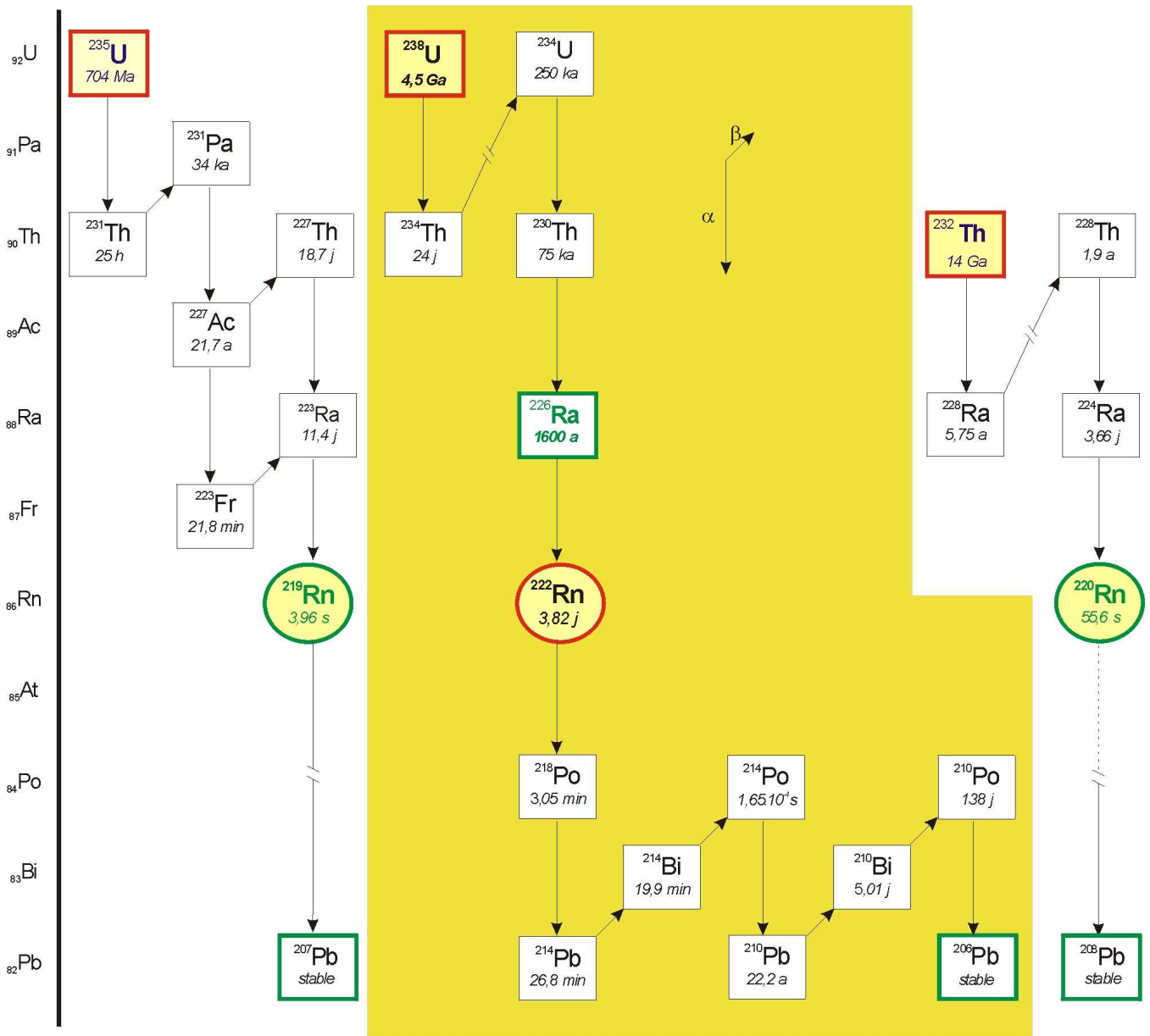


Figure I.7 : Familles radioactives de l'uranium-238, de l'uranium-235 et du thorium-232.

II.2 Exhalation du radon : émanation et transport dans l'environnement.

Les processus qui conduisent à l'exhalation, c'est-à-dire à l'émission du radon à la surface du milieu étudié, se divisent en deux étapes majeures : La première est la phase de production du radon dans les pores du matériau. C'est l'émanation (Figure I.8.1). La seconde correspond à son transport dans le milieu (Figure I.8.2).

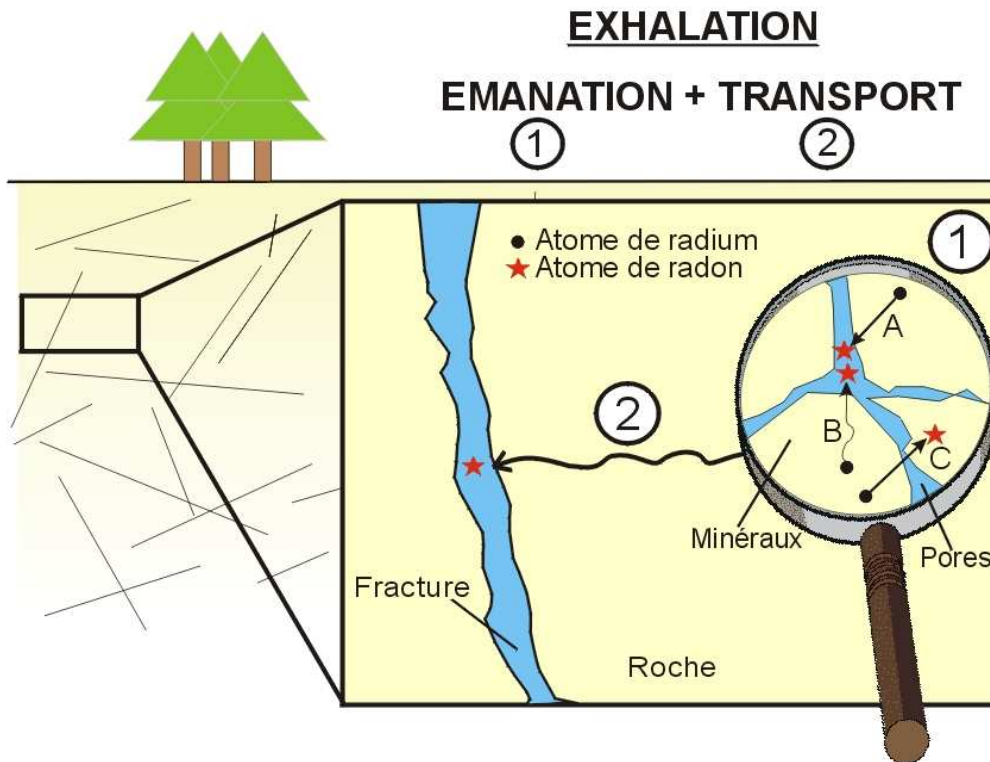


Figure I.8 : Schéma descriptif de l'exhalation : (1) les scénarios de formation du ^{222}Rn ; A : émanation par recul direct ; B : émanation par diffusion ; C : l'atome reste piégé dans les minéraux de la roche. (2) Transport du radon dans la matrice rocheuse.

II.2.1. Emanation

II.2.1.1 Définition

Le radon-222 est produit par la désintégration radioactive du radium-226. L'énergie libérée au cours de cette réaction est transférée sous forme d'énergie cinétique à la particule alpha émise et à l'atome de radon formé. Le mouvement ainsi initié conduit une partie des atomes de radon à quitter le réseau cristallin du matériau dans lequel ils se sont formés pour rejoindre l'espace libre des pores. On parle alors d'émanation.

On définit le coefficient d'émanation comme le rapport du nombre d'atomes de radon parvenant dans l'espace des pores par unité de volume et de temps, sur le nombre total d'atomes de radon formés par unité de volume et de temps. C'est une grandeur sans dimension comprise entre 0 et 1 qui peut également être exprimée en pourcentage.

II.2.1.2 Mécanismes de l'émanation

- Le recul direct :

Au moment de sa formation, l'atome de radon est doté d'une énergie cinétique de 86 keV (énergie de recul) qui lui permet de parcourir une distance finie (distance de recul) dépendant de la nature du milieu traversé (composition et densité).

Dans un minéral de densité moyenne ($2,7 \text{ g.cm}^{-3}$), la distance de recul est de l'ordre de 20 à 70 nm. L'atome de radon peut ainsi être éjecté à l'extérieur du grain (Figure I.8.2, cas A). La distance de recul étant de probabilité égale dans toutes les directions, (Andrews and Wood, 1972) ont calculé que le pourcentage d'atomes de radon émanant d'un minéral d' $1 \text{ }\mu\text{m}$ de diamètre est de 49%. Il chute à 0,049% pour un minéral de $100 \text{ }\mu\text{m}$ de diamètre. Quand la distance entre l'atome de radium parent et les pores devient trop importante, l'émanation par recul direct devient un mécanisme négligeable.

- La diffusion :

Un atome de radon resté « piégé » dans un grain peut ensuite rejoindre les pores de la roche par diffusion à travers la phase solide (Figure I.8.2, cas B). Le coefficient de diffusion moyen dans un matériau cristallin à 20°C est de $10^{-24} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$ (Tanner, 1980).

- La dissolution :

La dissolution des minéraux constitutifs d'une roche joue un rôle important dans la composition chimique des fluides des pores. En revanche, elle joue un rôle très négligeable dans l'émanation du radon, la période radioactive de ce radioélément étant beaucoup trop courte par rapport aux cinétiques des réactions de dissolution des minéraux. Il ne faut cependant pas négliger ce mécanisme qui participe à la déstabilisation des réseaux cristallins des minéraux et facilite ainsi la diffusion des atomes de radon dans le milieu solide.

II.2.1.3 Paramètres influençant l'émanation.

En fonction des différents mécanismes d'émanation décrits précédemment, on peut considérer que le facteur d'émanation d'un milieu poreux dépend des caractéristiques de la matrice solide : la localisation du radium dans les minéraux, la nature des minéraux, la porosité et la granulométrie du matériau.

Lors de la description des mécanismes contribuant à l'émanation, nous avons introduit la distance de recul d'un atome de radon et sa longueur de diffusion dans une phase solide. Si ces grandeurs sont petites devant la taille des particules, seul le radon formé en surface des dernières a une probabilité non négligeable d'émaner. Pour une même activité massique en radium, l'émanation est alors plus importante lorsque le **radium** est réparti en surface des particules que dans le cas d'une distribution homogène dans tout le volume de la phase solide (Morawska and Phillips, 1993). La précipitation en surface d'un matériau d'oxydes et hydroxydes de fer sera donc un paramètre à prendre en considération dans l'étude de l'émanation du radon d'une roche. En effet, l'adsorption du radium sur ces minéraux peut entraîner l'augmentation de la concentration de cet élément en surface de la roche.

La **composition et la structure du matériau** radifère jouent un rôle important dans le contrôle de l'émanation puisqu'elles influencent directement la distance de recul et le coefficient de diffusion du radon dans la matrice solide. Le degré d'altération du matériau est un paramètre à examiner car il affecte directement les propriétés de diffusion du minéral. L'altération peut être d'origine externe (dissolution) ou interne, déstabilisation du réseau cristallin provoquée par l'émission des particules alpha (Fleischer, 1982).

L'influence de la **granulométrie** sur l'émanation du radon est fortement liée à la localisation du radium dans les minéraux. Une distribution homogène du radium conduit à une émanation inversement proportionnelle au rayon de la particule. Une distribution surfacique du radium atténue cette influence de la granulométrie, qui devient inexistante pour des particules de diamètre supérieur à quelques micromètres.

La **porosité** a surtout une influence sur l'émanation par recul direct. En effet, plus les pores sont larges, plus la distance que peut parcourir l'atome de radon sans s'insérer à nouveau dans la phase solide est grande, et plus la probabilité que le radon émane est grande. L'influence du fluide remplissant les pores du matériau sur le coefficient d'émanation est importante. En effet, la distance de recul d'un atome de radon est moins grande dans l'eau (0,1 μm) que dans l'air (50-65 μm), ce qui implique que l'émanation augmente proportionnellement à la saturation en eau des pores du matériau.

II.2.2. Le transport du radon

Dans un milieu naturel, les mouvements des gaz sont contrôlés par les gradients de concentration et les gradients de pression. Dans le cas d'un gradient de concentrations, un mouvement de molécules gazeuses se crée afin d'égaliser les concentrations dans tout le système : c'est la **diffusion** gazeuse. Dans le cas d'un gradient de pression, les molécules gazeuses se déplacent des zones de haute pression vers les zones de basse pression (pressions d'air ou pressions hydrauliques selon le fluide dans lequel se trouvent les molécules de gaz) : c'est l'**advection**.

Néanmoins, les vitesses et les échelles de distances des mouvements d'advection sont plus grandes que celles des mouvements de diffusion. La diffusion est importante dans les capillaires ou dans les roches à pores très petits alors que l'advection joue un rôle prédominant dans les pores plus larges et/ou dans les zones très perméables des milieux fracturés (Etiopie et Martinelli, 2002)

II.2.2.1 La diffusion

Dans un milieu supposé homogène et isotrope, le flux des atomes de radon qui migrent par diffusion s'exprime d'après la loi de Fick:

$$\vec{J}_{Rn} = -D \vec{grad} C_{Rn}$$

Avec, J_{Rn} : le flux de radon ($Bq.m^{-2}.s^{-1}$),

C_{Rn} : l'activité volumique du radon dans le milieu ($Bq.m^{-3}$),

D : le coefficient de diffusion du radon dans le milieu ($m^2.s^{-1}$).

A 25°C, le coefficient de diffusion moléculaire dans l'air du radon est de $0,12 m^2.s^{-1}$ alors que dans l'eau il n'est que de $1,37.10^{-5} m^2.s^{-1}$ (Etiopie and Martinelli, 2002).

Tableau I.2 : Coefficient de diffusion du ^{222}Rn dans différents milieux.

Milieu	Coefficient de diffusion ($cm^2.s^{-1}$)
Air	0,1
Eau	10^{-5}
Milieu cristallin	10^{-20}
Granite	$10^{-10}-10^{-7}$

D'après (Andrews et al., 1986)

II.2.2.2. L'advection.

Le terme advection réfère à un mouvement de matière sous l'effet de gradients de pressions. Le flux d'atomes de radon migrant par advection s'exprime :

$$\vec{J}_A = C_{Rn(s)} \cdot \vec{v}$$

Avec, J_A : le flux de radon migrant par advection ($Bq \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$),
 C_{Rn} : l'activité volumique du radon ($Bq \cdot m^{-3}$),
 v : vitesse du radon ($m \cdot s^{-1}$).

La vitesse v dépend du gradient de pression et du coefficient de mobilité lié directement à la géométrie du milieu et à la viscosité du gaz. Dans le cas de l'advection dans un milieu poreux sec, le coefficient de mobilité dépend de la perméabilité intrinsèque du milieu et de la viscosité du fluide. En accord avec la loi de Darcy, l'expression de la vitesse v ($m \cdot s^{-1}$) est :

$$v = -\frac{k \cdot \nabla P}{\mu}$$

Avec, k : perméabilité intrinsèque du milieu (m^2),
 μ : coefficient de viscosité dynamique du gaz ($kg \cdot m^{-1} \cdot s^{-1}$).
 P : pression du fluide

En milieu poreux saturé en eau, les gaz sont dissous et transportés par l'eau (advection en phase liquide). Le gaz se déplace selon les mouvements et à la vitesse de l'eau. L'équation de Darcy est donc de la forme de celle utilisée en hydrogéologie :

$$\vec{v} = K \cdot \vec{i}$$

Avec, K : conductivité hydraulique du milieu ($m \cdot s^{-1}$),
 i : gradient hydraulique (-).

III. LE RADON DANS LES EAUX SOUTERRAINES

Les études menées depuis plusieurs années ont montré que l'apport du radon à la connaissance des mécanismes de transport et d'échange dans la lithosphère, l'atmosphère et l'hydrosphère est substantiel. En effet, il est notamment utilisé comme traceur des mouvements des masses d'air dans l'atmosphère (Renoux et al., 1980; Tymen et al., 1996) et contribue à l'étude des échanges gazeux entre l'océan et l'atmosphère (Queirraza et al., 1991). En outre, des mesures de l'activité du radon dans l'air du sol ou dans les eaux souterraines réalisées avant et pendant des événements sismiques ou volcaniques ont donné des résultats tangibles pour la prévision des séismes et des éruptions volcaniques (Kharatian et al., 2002; King et al., 1995). Les eaux souterraines de certains sites volcaniques ont ainsi fait l'objet de mesures en continu de l'activité du radon dans l'eau (Segovia et al., 2003; Zimmer and Erzinger, 2003).

Si on excepte le cas particulier des eaux souterraines localisées dans des régions volcaniques ou à forte activité sismique, **la concentration du radon dans l'eau d'un aquifère est contrôlée** par deux facteurs. D'une part, elle est influencée par **les caractéristiques lithologiques de la roche encaissante** (concentration en uranium et en radium, porosité et densité) et d'autre part, elle est contrôlée par **le temps de résidence de l'eau dans l'aquifère**. L'association de ces facteurs conduit à l'existence d'une très large gamme des concentrations du radon dans les eaux souterraines.

III.1. Facteurs influençant la concentration du radon dans les eaux souterraines

III.1.1 Caractéristiques chimiques et physiques de la roche

La concentration du radon dans l'eau d'un aquifère est fortement dépendante de la teneur en uranium et en radium, ainsi que des caractéristiques physiques de la roche encaissante. Ces paramètres influencent directement l'émanation et l'exhalation du radon.

- **Composition chimique de la roche : teneurs en uranium et en radium**

La concentration en radon dépend tout d'abord de la source du radon dans la roche : la teneur de la roche en uranium et en radium, éléments parents du radon. Ces éléments sont présents dans toutes

les roches de la croûte terrestre, mais à des concentrations variables suivant la nature de la roche. L'uranium et le radium sont généralement présents à l'état de traces dans l'environnement.

La teneur en uranium dépend des processus de formation de la roche. Le tableau I.3 résume les teneurs en uranium des principales lithologies. Les roches sédimentaires (calcaires, sables, grès...) ont des teneurs moyennes en uranium en général assez faibles, de l'ordre de 1 à 4 ppm. Cependant, l'uranium présent initialement dans ces roches peut être remobilisé, concentré et redéposé. On observe de tels enrichissements lorsque des roches sédimentaires sont soumis à des conditions physico-chimiques spécifiques dans des environnements particuliers, présentant notamment des conditions oxydo-réductrices variables (Vogel et al., 1999). La teneur moyenne en uranium des roches magmatiques est fortement variable car elle dépend du degré de différenciation du magma à l'origine de la roche. Dans une série magmatique, la teneur en uranium augmente avec la différenciation car le comportement de l'uranium est influencé par son caractère d'élément lithophile. Ainsi, les roches magmatiques basiques (basaltes par exemple), peu différenciées, sont pauvres en uranium (1 à 2 ppm environ) alors que les termes évolués d'une série magmatique (granites, leucogranites et pegmatites) ont des concentrations en uranium beaucoup plus importantes (jusqu'à 20 ppm voire plus dans certains cas). Les roches métamorphiques, quant à elles, présentent des teneurs en uranium variables, généralement semblables à celles du protolithe dont elles dérivent.

Tableau I.3 : Teneurs en uranium des grands types de roche

Types pétrologiques		Teneur moyenne en U (ppm)	Gamme des teneurs (ppm)
Roches sédimentaires	Grès		
	Quartzite	0,45	0,2-0,6
	Calcaire	2	0,5-6
Roches magmatiques	<i>roches basiques</i>	0,9	0,2-3,4
	basaltes		0,1-2,3
	<i>roches évoluées</i>	4,6	2,2-21
	granite	3,5	2,2-15
	leucogranite	8	6-21
	pegmatite		10-1000
Roches métamorphiques	Schiste	2	0,1-10
	Gneiss	3	0,1-10

D'après Dahlkamp F.J. (1993)

En raison de sa formation par désintégration radioactive, le radium dans la nature a une distribution moyenne globalement similaire à celle de ses précurseurs. Il est ainsi présent dans toutes les roches contenant de l'uranium. Le comportement géochimique du radium diffère cependant de celui de l'uranium. Généralement moins mobile que l'uranium, des déviations par rapport à l'équilibre séculaire du radium avec l'uranium sont ainsi observées dans les zones d'altération.

L'activité massique du radium-226 est très variable dans les granitoïdes : elle est comprise entre 1 et 500 Bq.kg⁻¹, avec une moyenne d'environ 80 Bq.kg⁻¹. Elle est plus faible dans les basaltes : elle varie entre 0,4 et 41 Bq.kg⁻¹, avec une moyenne de 11 Bq.kg⁻¹. Dans les roches sédimentaires, la concentration moyenne du radium-226 est de 45 Bq.kg⁻¹ pour les carbonates et de 60 Bq.kg⁻¹ pour les roches détritiques (Tableau 4).

Tableau I.4 : Activités massiques du radium 226 dans les roches.

Types pétrologiques	Activité moyenne en ²²⁶ Ra (Bq.kg ⁻¹)	Gamme des activités (Bq.kg ⁻¹)
Granitoïdes	78	1-500
Basaltes	11	0,4-41
Orthogneiss	50	1-1800
Métasédiments	40	1-660
Carbonates	45	0,4-340
Roches sédimentaires détritiques	60	1-990
Schistes alumineux		120-4500

D'après Wollenberg (1984) et Christensen et al (1990).

- **Caractéristiques physiques de la roche**

La densité et la porosité d'une roche sont également deux paramètres qui influencent directement l'émanation et l'exhalation du radon du matériau.

La densité est plus grande dans les roches ignées (2,65-3 g.cm⁻³) que dans les roches sédimentaires (2,3-2,6 g.cm⁻³). En revanche, la porosité totale des roches ignées (0,02-1,8%) est plus faible que celle des roches sédimentaires (0,5-38%). Quelques valeurs indicatives de porosité et de densité des roches sont données dans le tableau 5.

Tableau I.5 : Densités et porosités dans les grands types de roches

Type de roche	Densité		Type de roche	Porosité totale (%)
	Intervalle	Moyenne (g.cm ⁻³)		
Granite	2,5-2,8	2,65	Granite et gneiss non altérés	0,02-1,8
Basalte	2,7-3,3	3	Micaschistes	0,5-7,5
Quartzite	2,5-2,7	2,9	Quartzite	0,8
Gneiss	2,6-3,1	2,8	Calcaire	0,5-12,5
Calcaire	1,9-2,9	2,6	Grès	3,5-38
Grès	1,8-2,1	2,3	Sables	15-48

Densités d'après Birch (1966), porosités d'après De Marsily (1986)

La teneur en radon d'une eau souterraine est conditionnée par les caractéristiques structurales, géochimiques et lithologiques de l'aquifère, et en particulier par l'activité massique du radium 226 de la roche encaissante et de sa porosité. La concentration du radon dans l'eau est donc variable selon la nature de la roche. Le tableau 6 fournit quelques ordres de grandeurs des concentrations du radon dans les eaux souterraines.

Tableau I.6 : Ordre de grandeur des concentrations en radon dans les eaux souterraines pour différents types de roches.

Lithologie de l'aquifère	²²² Rn dans l'eau (Bq.L ⁻¹)
Granites	500
Basaltes	15
Roches métamorphiques	150
Roches sédimentaires	10

La concentration du radon dans les aquifères constitués de **roches sédimentaires** varie entre 10 et 150 Bq.L⁻¹ (Choubey and Ramola, 1997; Kafri, 2001; Przylibski et al., 2002; Choubey et al., 2003). Exceptionnellement, la teneur en radon dans des aquifères karstiques peut augmenter jusqu'à atteindre des valeurs proches de 500 Bq.L⁻¹. La concentration du radon dans l'eau est alors localement enrichie par des zones de fractures remplies par du matériel argileux présentant une forte concentration en radium 226 (Tadolini and Spizzico, 1998).

Lorsque les roches qui composent l'aquifère sont d'**origine métamorphique**, la concentration du radon dans l'eau peut atteindre 50 Bq.L⁻¹ pour les micaschistes et 100 Bq.L⁻¹ pour les gneiss (Morland et al., 1998). Des valeurs exceptionnelles atteignant 1300 Bq.L⁻¹ ont été rapportées dans certains aquifères où la roche encaissante est constituée de gneiss (Przylibski and Zebrowski, 1999; Przylibski, 2000).

La gamme des concentrations en radon dans l'eau dans les aquifères en **milieu granitique** est comprise entre 500 et 1000 Bq.L⁻¹. Des concentrations beaucoup plus grandes sont parfois mesurées dans des aquifères localisés dans des granites très riches en uranium et très peu fracturés où les vitesses de circulation de l'eau sont très faibles. Dans ces milieux, l'activité volumique du radon dans l'eau peut atteindre des valeurs supérieures à 10 000 Bq.L⁻¹ (Nelson et al., 1983; Banks et al., 1998a; Banks et al., 1998b; Voronov, 2004). Des concentrations très importantes atteignant 70 000 Bq.L⁻¹ ont ainsi été mesurées dans l'un des puits du site de Stripa en Suède (Nelson et al., 1983).

III.1.2 Caractéristiques hydrogéologiques de l'aquifère – temps de résidence de l'eau dans l'aquifère

Dans un aquifère, l'eau est plus ou moins mobile. Soumise aux gradients de pressions hydrauliques, elle se déplace par advection. La transmissivité de l'aquifère est le paramètre qui régit le flux d'eau qui s'écoule par unité de largeur de la zone saturée d'un aquifère continu (mesurée selon une direction orthogonale à celle de l'écoulement) et par unité de gradient hydraulique. En milieu isotrope, la transmissivité est le produit de la perméabilité K par la puissance aquifère e . en milieu anisotrope, c'est le produit de la composante du tenseur de perméabilité parallèle à la direction d'écoulement par la puissance aquifère (orthogonale à cette direction).

La concentration du radon dans l'eau est influencée par la durée et la surface du contact entre la roche et l'eau qui circule dans l'aquifère. Le temps de résidence de l'eau dans l'aquifère est lié au débit de l'eau qui circule dans l'aquifère, le débit maximum étant contrôlé par la transmissivité de l'aquifère. Cette dernière, qui peut être reliée à l'épaisseur des fractures, donne également une information sur la géométrie de la surface de contact entre l'eau et la roche. Ces paramètres vont jouer un rôle prépondérant dans la dilution du radon émis par la roche dans l'eau de l'aquifère. Cependant il est difficile de distinguer l'influence de chacun de ces paramètres sur la concentration en radon mesurée dans l'eau. Dans leur étude, réalisée dans un aquifère du Colorado (Etats-Unis), Lawrence et al. (1991) ont établi l'existence d'une relation inverse entre la concentration du radon dans l'eau et la transmissivité (Figure I.9a). Selon les auteurs, si la source du radon est localisée dans une zone de grande transmissivité, l'eau ne pourra pas avoir des concentrations élevées en radon en raison de la faible surface et du temps limité du contact entre l'eau et la roche. En revanche, dans l'étude menée par Wood et al. (2004) dans un aquifère du New Hampshire (Etats-Unis), aucune corrélation n'a été mise en évidence entre la transmissivité et les concentrations en

radon dans l'eau (Figure I.9b). Cette observation peut être expliquée par un effet cumulé de la transmissivité et du débit d'eau dans la fracture. Ces deux exemples illustrent la difficulté de différencier l'influence d'un seul paramètre par rapport à tout ceux qui contrôlent la concentration en radon dans l'eau d'un aquifère.

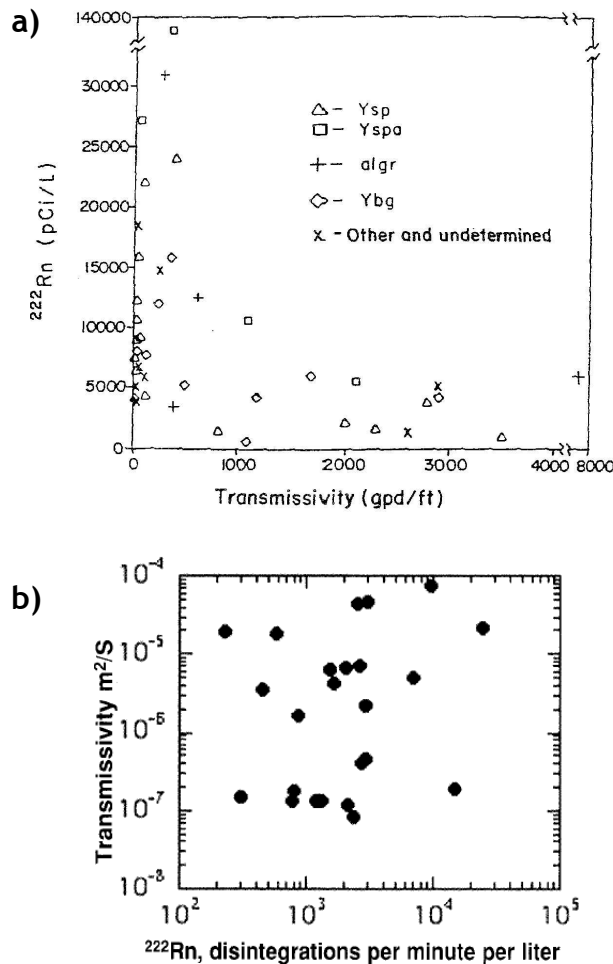


Figure I.9 : Comparaisons entre transmissivités et concentrations en radon dans l'eau. a) Étude d'un aquifère dans le Colorado, Lawrence et al. (1991) : corrélation inverse b) Étude d'un aquifère dans le New Hampshire, Wood et al., (2004) : absence de corrélation.

La carte de la Figure I.10 est extraite d'une étude réalisée sur l'ensemble de la Norvège et illustre parfaitement la variabilité spatiale des concentrations du radon dans les eaux souterraines. Plus de 90% des eaux pour lesquelles l'activité volumique du radon a été mesurée sont localisées dans des aquifères en milieu fracturé de socle. La variabilité des concentrations en uranium dans les roches plutoniques associée à des temps de résidences plus ou moins long dans les aquifères a pour conséquence une gamme de concentration très étendue à l'échelle d'un territoire comme la Norvège ($<10 \text{ Bq.L}^{-1}$ à $19\,900 \text{ Bq.L}^{-1}$) et une variabilité spatiale très importante.

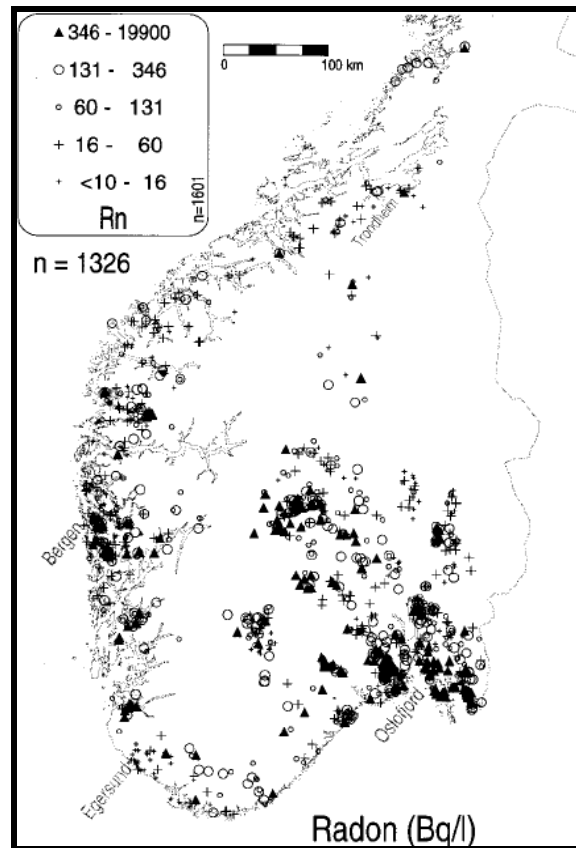


Figure I.10 : Carte des concentrations du radon dans des eaux souterraines de Norvège (d'après Banks et al., 1999)

III.2.3 Le radon en milieu homogène, traceur des échanges entre réservoirs hydrologiques

En hydrologie de surface et en hydrogéologie en milieu sédimentaire, l'utilisation du radon 222 repose principalement sur le contraste des teneurs en radon 222 entre les eaux libres (eaux de surface) et les eaux souterraines. La concentration en radon des eaux souterraines est conditionnée par les caractéristiques structurales, géochimiques et lithologiques de l'aquifère, et en particulier de la teneur en radium 226 des roches encaissantes (Andrews and Wood, 1972). En revanche, l'activité volumique du radon 222 des eaux de surface s'établit à une valeur située entre la concentration à leur source et celle en équilibre avec l'activité volumique du radon 222 de l'atmosphère. Si l'on retient une activité volumique atmosphérique moyenne du radon de 4 Bq.m⁻³ au-dessus des eaux continentales et un coefficient de solubilité dans l'eau de 0,3 (à 15°C), l'eau ne peut retenir plus de 1,2 Bq.m⁻³. Le contraste élevé entre la concentration en radon dans les eaux de surface et les eaux souterraines permet de quantifier les échanges entre les réseaux hydrologiques de surface (rivières,

réseaux d'irrigation, lacs) et les eaux souterraines. Hoehn et von Gunten (1989) et Hoehn et al. (1992) ont ainsi pu estimer la vitesse d'infiltration de l'eau d'une rivière dans un aquifère. La méthode est basée sur l'augmentation de la teneur en radon d'une eau de surface, de concentration proche de zéro, au cours de son infiltration dans l'aquifère. Au cours de l'infiltration de l'eau, l'activité du radon au temps t , A_t (Bq.L^{-1}) est exprimée par la formule suivante :

$$A_t = A_e(1 - e^{-\lambda t})$$

Avec, A_e : activité du radon en équilibre séculaire avec le radium (Bq.L^{-1})

λ : constante de désintégration du radon ($2,1 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$)

En utilisant cette équation, Hoehn et von Gunten (1989) ont calculé le temps de résidence de l'eau dans l'aquifère à partir de la concentration du radon mesurée dans l'eau (Figure I.11).

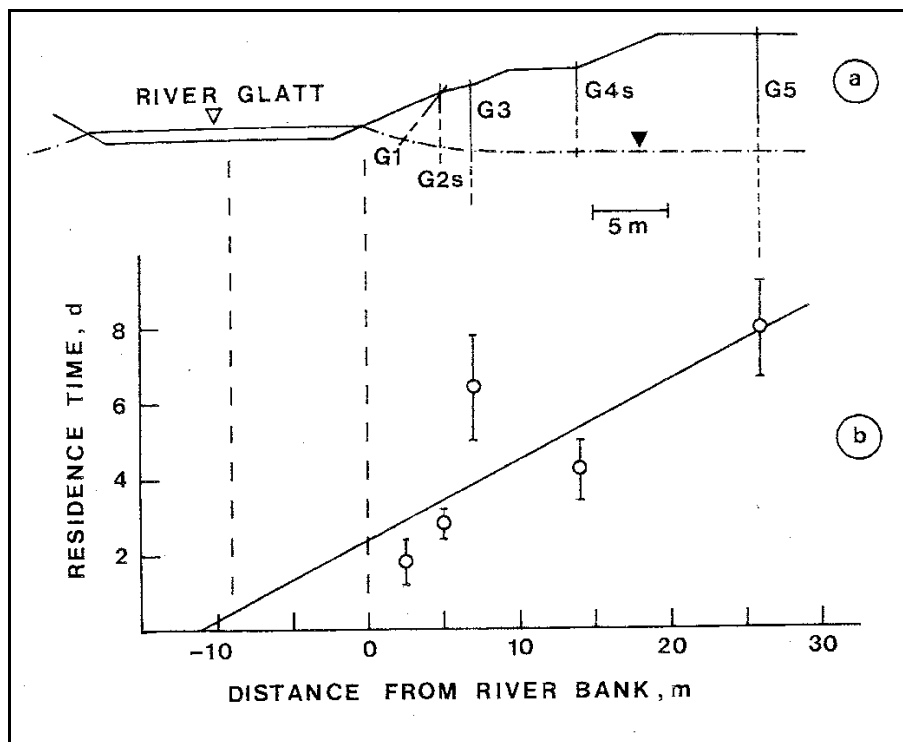


Figure I.11 : a) Schéma d'un profil du site de River Glatt, b) Temps de résidence de l'eau de l'aquifère calculé à partir de la concentration en radon mesurée dans l'eau de l'aquifère, d'après Hoehn and von Gunten, (1989).

En se basant sur la même méthode, Hamada (2000) et Kafri (2001) ont pu calculer la vitesse de circulation de l'eau dans un aquifère en milieu poreux au Japon et en Israël.

La grande différence de concentration en radon entre les eaux de surface et les eaux souterraines a aussi été utilisé afin de déterminer la contribution des eaux souterraines au débit d'une rivière (Ellins et al., 1990; Cook et al., 1999) ou pour quantifier la décharge d'un aquifère dans l'océan au niveau d'une zone côtière (Cable et al., 1996; Burnett et al., 2006).

Le contraste entre la concentration en radon de l'eau de pluie et celle de l'aquifère a permis à Pane (1995) et Eisenlohr et Heinz (1995) d'étudier l'influence des précipitations sur le niveau piézométrique d'un aquifère karstique. La dilution de l'eau de l'aquifère par un apport massif d'eau de pluie ayant de faibles teneurs en radon induit une diminution de la concentration du radon de l'eau de l'aquifère (Figure I.12).

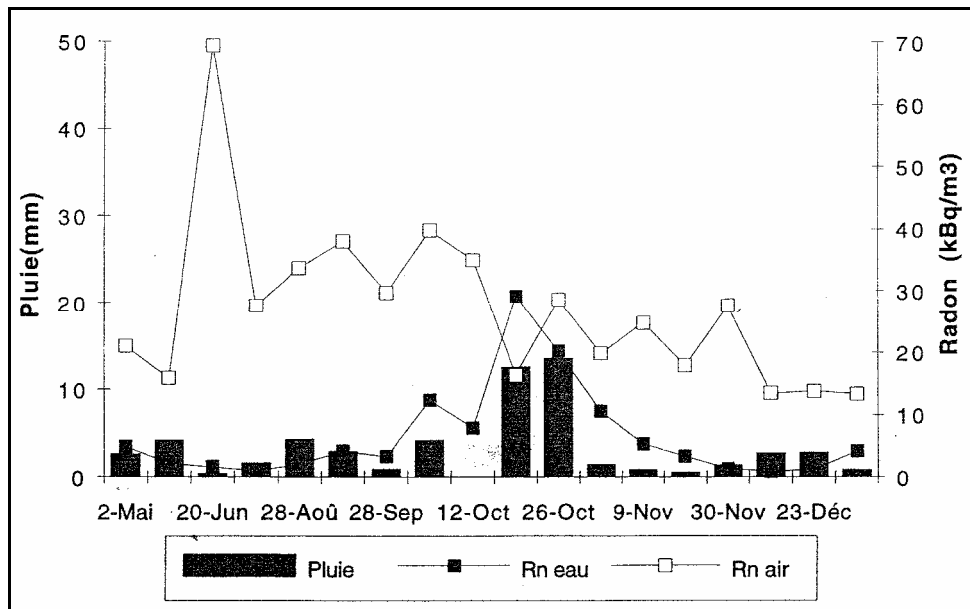


Figure I.12 : Diminution de la concentration du radon dans l'eau d'un aquifère karstique après un événement pluvieux, d'après Pane (1995).

III.2.4 Le radon dans les aquifères en milieu fracturé granitique

III.2.4.1 Compréhension des concentrations du radon dans l'eau aquifères fracturés : contextes et apports des études.

Les motivations de l'étude des concentrations du radon dans l'eau des aquifères en milieu granitique viennent essentiellement du stockage des déchets nucléaires, de l'exploitation de réservoirs géothermaux et de la radioprotection de l'homme.

De nombreuses informations sur la concentration du radon dans l'eau en milieu granitique ont été acquises dans le cadre d'études comme celle menée à Stripa (Suède) à la fin des années 70. L'objectif était de définir le potentiel des roches granitiques à faible perméabilité à servir de site de stockage pour des déchets nucléaires (Witherspoon, 2000). Dans cette perspective, il est primordial d'étudier la circulation des eaux souterraines et la migration des radionucléides dans ce type de système. Des études ont été menées afin de caractériser les concentrations du radon dans l'eau du site de Stripa Andrews et al. (1989b) et Nelson et al. (1983) ont mis en évidence et modélisé une relation entre la concentration en radon dans l'eau et l'épaisseur des fractures.

Dans un contexte différent, les études menées sur des réservoirs géothermaux en milieu granitique fracturé ont aussi fortement amélioré la compréhension des activités volumiques du radon en milieu fracturé et de leur origine. Les concentrations mesurées permettent notamment d'évaluer la capacité des réservoirs géothermaux (Andrews et al., 1986; Gregory and Durrance, 1987) car les teneurs en radon dans les fluides sont liées à la surface de contact entre l'eau et la roche. Cette surface est un paramètre important à prendre en compte pour estimer les ressources géothermiques puisque c'est par elle que se fait le transfert de chaleur de la roche vers l'eau. L'étude des concentrations en radon dans l'eau et des données hydrogéologiques (niveaux piézométriques et flux d'eau) permet de mieux contraindre les modèles hydrogéologiques proposés pour ce type de système fracturés.

Plus récemment, depuis la reconnaissance du caractère cancérigène du radon (NRC, 1988), des efforts supplémentaires ont été réalisés afin de caractériser les activités volumiques du radon dans les eaux souterraines et mieux comprendre l'origine de ces concentrations. Il a été mis en évidence que le radon dissous dans l'eau potable peut avoir une influence significative sur la concentration en radon dans l'air d'une habitation (Folger et al., 1994). Ainsi, une grande partie des études réalisées

sur le radon dans l'eau des aquifères en milieu granitique fracturé a pour cadre la surveillance des eaux souterraines utilisées pour l'alimentation en eau potable. La carte de la Figure I.13 présente les résultats d'une étude menée en Norvège sur des aquifères exploités pour l'alimentation en eau potable de villes de plus de 1000 habitants.

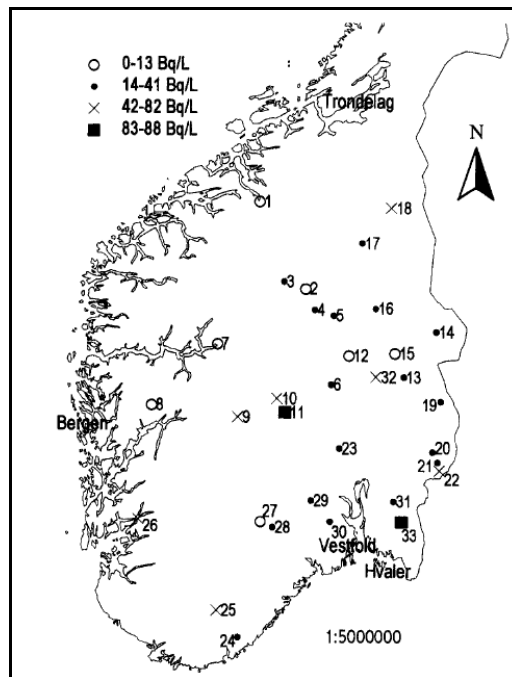


Figure I.13 : Carte de la Norvège localisant les mesures de la concentration en radon dans l'eau réalisées dans des aquifères exploités pour l'alimentation en eau potable de villes de plus de 1000 habitants d'après (Morland et al., 1998).

En outre, des aquifères en milieu granitique ont été étudiés aux États-Unis (Lawrence et al., 1991; Wanty et al., 1992; Folger et al., 1996; Folger et al., 1997; Wood et al., 2004) et en Scandinavie (Banks et al., 1998; Morland et al., 1998) afin de comprendre l'influence des différents facteurs contrôlant la concentration en radon dans l'eau. Des essais de pompage sur un aquifère exploité pour l'alimentation en eau potable ont été réalisés par Folger et al. (1996, 1997) afin d'étudier les relations existant entre la concentration en radon dans l'eau et l'épaisseur des fractures. Les connexions entre puits ont aussi été examinées dans cette étude et la concentration dans l'eau d'une des fractures a été modélisée « numériquement » (Folger et al., 1997). Les auteurs concluent qu'il est difficile de calculer l'activité volumique dans l'eau d'une fracture dont les propriétés géométriques et hydrauliques ne sont pas connues au préalable.

III.2.4.2 Modélisation des concentrations en radon dans les eaux souterraines

Deux approches sont utilisées pour modéliser les activités volumiques du radon dans l'eau d'un aquifère (Figure I.14). Elles sont comparables à celles développées en hydrogéologie pour l'étude des milieux fracturés.

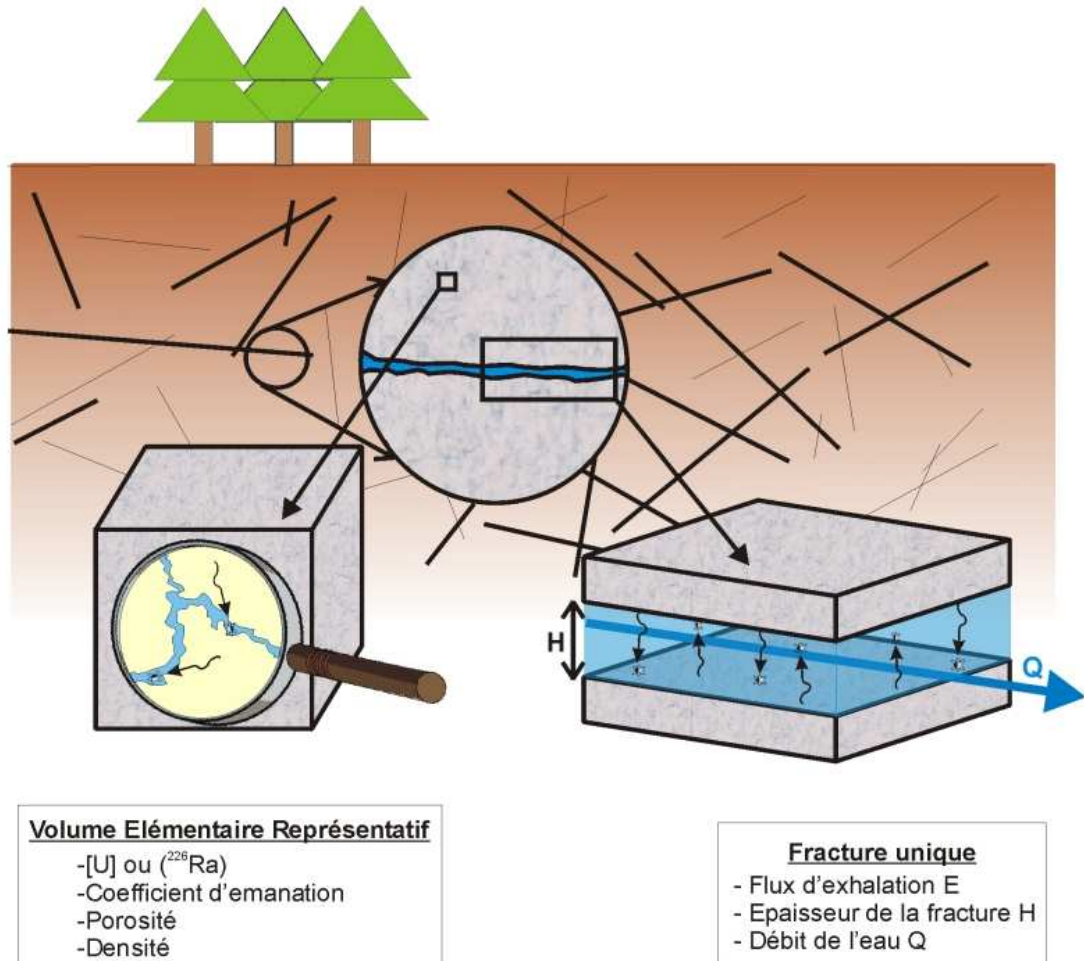


Figure I.14 : Schéma représentatif des deux approches de la modélisation de la concentration du ^{222}Rn dans l'eau d'une fracture

La première consiste à considérer l'aquifère sous la forme d'un milieu poreux continu dont les propriétés physiques sont isotropes. Dans cette approche, on définit un **volume élémentaire représentatif** de l'ensemble de la roche encaissante de l'aquifère qui permet d'étudier l'aquifère à une **échelle microscopique**. La concentration du radon dans l'eau modélisée est celle de l'eau contenue dans les pores de la roche.

En revanche, dans la seconde approche, **le réseau de fracture** de la matrice rocheuse est pris en considération. Dans ce cas, les propriétés de l'aquifère sont étudiées à l'échelle **macroscopique** et on examine la concentration en radon dans l'eau qui circule dans le réseau de fracture de la roche.

III.2.4.2.1 Modélisation du radon dans l'eau à l'échelle microscopique : le volume élémentaire représentatif.

Cette approche est basée sur la définition d'un volume de roche représentatif du milieu. Dans les différents modèles proposés, deux paramètres sont toujours pris en compte : la teneur en uranium ou en radium de la roche et le coefficient d'émanation du radon de la roche. Il est possible de mesurer facilement la concentration en uranium ou en radium d'une roche. En revanche, il est plus difficile d'estimer le coefficient d'émanation du radon d'une roche granitique.

Parmi les modèles proposés, on peut citer celui d'Hammond et al. (1988). Considérant une roche pour laquelle l'équilibre séculaire entre l'uranium 238 et le radium 226 est atteint, l'activité volumique du radon dans l'eau contenue dans les pores de la roche, A_{Rn} , est exprimée par l'équation:

$$A_{Rn} = A_U \times R_S \times E \times \hat{s}$$

Avec, A_U , la concentration en uranium de la roche encaissante ($\text{dpm.L}^{-1}_{\text{roche}}$) ;

R_S , la distance de recul de l'atome de radon 222 dans le minéral (μm) ;

E , coefficient d'émanation de la roche (-) ;

\hat{s} , surface spécifique de la roche ($\text{cm}^2_{\text{roche}} \cdot \text{L}^{-1}_{\text{H}_2\text{O}}$).

Ce modèle est assez simple en théorie mais sa mise en application est compliquée. En effet, la surface spécifique d'une roche est un paramètre qu'il est difficile d'estimer.

Par ailleurs, Wanty et al. (1992) ont proposé un modèle permettant le calcul de l'activité volumique du radon de l'eau porale à partir de paramètres plus facilement mesurables, tels que la porosité et la masse volumique de la roche. Ce modèle peut ainsi être appliqué à un système naturel. La concentration en radon dans l'eau C_{Rn} (Bq.L^{-1}) d'un système eau/roche où tous les éléments de la chaîne de désintégration de l'uranium 238 sont à l'équilibre séculaire est exprimée par l'équation :

$$C_{Rn} = 12,47 \times \rho \times V_t \times (1-\Phi/\Phi) \times E \times C_U$$

- Avec,
- ρ , masse volumique de la roche (kg.dm^{-3}) ;
 - V_t , volume unitaire de roche (dm^3) ;
 - Φ , porosité de la roche (-) ;
 - E , coefficient d'émanation de la roche (-) ;
 - C_U , concentration en uranium de la roche (ppm).

Un modèle équivalent a été proposé par Gudzenko (1992) puis Przylibski (2000). La concentration en radon dans l'eau, C_{Rn} (Bq.L^{-1}), est exprimée en fonction de la concentration en radium et des propriétés physiques de la roche:

$$C_{Rn} = K_{em} \times C_{Ra} \times \left(\frac{1-\phi}{\phi} \right) \times d \times (1 - e^{-\lambda t})$$

- Avec,
- K_{em} , coefficient d'émanation de la roche (-) ;
 - C_{Ra} , concentration en radium de la roche (Bq.kg^{-1}) ;
 - ρ , masse volumique de la roche (kg.dm^{-3}) ;
 - V_t , volume de roche (dm^3) ;
 - ϕ , porosité de la roche (-) ;
 - λ , constante de désintégration du radon ($2,1.10^{-6} \text{ s}^{-1}$) ;
 - t , temps de contact entre l'eau et la roche (s).

Les auteurs base leur réflexion sur l'hypothèse que la saturation en eau de la roche w est égale à sa porosité Φ dans la zone saturée d'un aquifère. De plus, ils supposent que le temps de contact entre l'eau et la roche est supérieur à 10 demi-vies du radon 222 (soit 32,8 jours), durée au terme de laquelle ne subsiste plus que 0,098 % de la quantité de radon initialement présent.

III.2.4.2.2. Modélisation du radon dans l'eau à l'échelle macroscopique : le réseau de fractures

Tous les modèles cités précédemment considèrent la concentration en radon dans l'eau des pores d'une roche cristalline. L'intérêt d'étudier le système à l'échelle macroscopique est de prendre en compte le déplacement de l'eau dans l'aquifère et les caractéristiques géométriques du réseau de fractures de la matrice rocheuse.

Rumbaugh, (1983) puis Banwell et Parizek (1988) ont modélisé la concentration en radon dans l'eau d'un aquifère où toutes les fractures auraient la même orientation. La teneur en radon de l'eau est alors fonction de la transmissivité hydraulique de l'aquifère T ($\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$) et du nombre de fractures N et de leur inclinaison α par rapport à l'horizontale :

$$C_{Rn} = 74 \times E (N g \cos^2 \alpha / 12 \nu T)^{1/n}$$

Avec, E , flux d'exhalation du radon de la roche ($\text{Bq} \cdot \text{cm}^{-2}$) ;
 g , la constante d'accélération gravitationnelle ($\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$) ;
 α , l'inclinaison des fractures par rapport à l'horizontale ;
 ν , la viscosité cinématique de l'eau ($\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$) ;
 T , la transmissivité hydraulique de l'aquifère ($\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$) ;

n , le coefficient de rugosité de la surface de la fracture ($n=3$ pour les fractures planes et $1,2 < n < 3$ pour les systèmes naturels).

Cependant, les résultats expérimentaux obtenus dans cette étude ne permettent pas de mettre en évidence une corrélation particulière entre la concentration en radon dans l'eau et la transmissivité de la zone fracturée de l'aquifère.

Un autre modèle propose de calculer la concentration du radon dans l'eau d'une fracture en assimilant la fracture à une paire de plans parallèles entre lesquels circule le flux d'eau. La concentration en radon dans l'eau C_{Rn} est alors fonction du flux d'exhalation du radon de la roche F ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2}$) et de l'épaisseur de la fracture w (m) (Andrews et al., 1986):

$$C_{Rn} = 2F/w \times [1 - \exp(-\lambda t)]$$

Avec t le temps de résidence de l'eau dans la fracture (s) ;

F , le flux d'exhalation du radon de la roche ($Bq.m^{-2}$) ;

w , l'épaisseur de la fracture (m).

La plupart des eaux ayant un temps de résidence supérieur au temps nécessaire au radon pour être à l'équilibre dans le système eau-roche, la formule précédente peut être simplifiée:

$$C_{Rn} = 2F/w$$

En outre, en plus des caractéristiques géométriques de la fracture, il est important de prendre en compte le débit de l'eau dans la fracture. Le débit est l'un des paramètres qui contrôle le temps de résidence de l'eau dans l'aquifère. La durée du contact entre l'eau et la roche influence directement la concentration du radon dans l'eau. Dans la modélisation proposée par Nelson et al. (1983) une fracture est assimilée à deux disques parallèles. Cette fracture est traversée verticalement par un forage (Figure I.15).

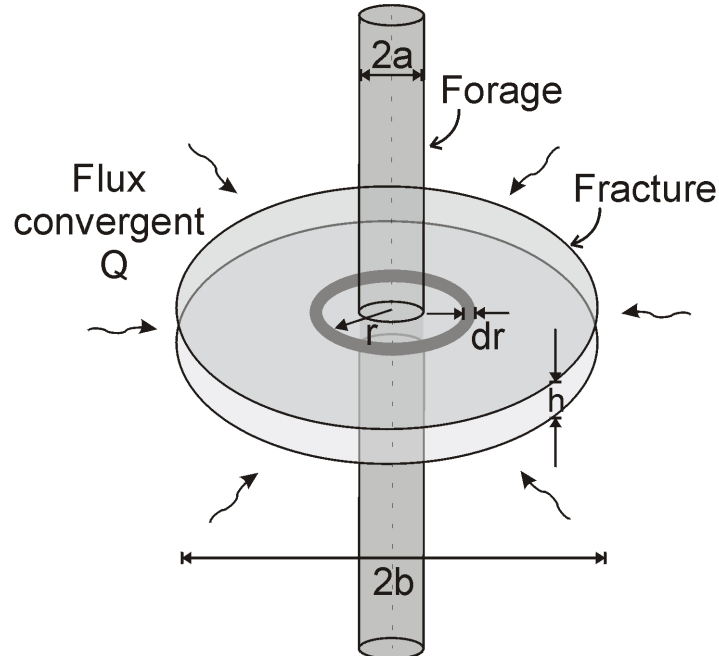


Figure I.15 : Schéma d'une fracture assimilée à deux disques parallèles et interceptant un forage, d'après Nelson et al. (1983).

Dans ce système, l'eau converge radialement dans la fracture en direction du forage.

$$C_{Rn} = (E / \lambda h) \times [1 - \exp(-\lambda \pi h (b^2 - a^2) / Q)]$$

Avec E , le flux d'exhalation du radon de la roche ($Bq.m^{-2}.s^{-1}$),
 b , le rayon du disque source en ^{222}Rn (m),
 a , le rayon du forage (m),
 Q , le débit de l'eau dans la fracture ($m^{-3}.s^{-1}$).

Ce modèle est le plus satisfaisant car il prend en compte deux données importantes : la géométrie de la surface de la fracture et le mouvement de l'eau dans l'aquifère. Ces deux paramètres contrôlent le transfert du radon de la roche vers l'eau car ils représentent la surface d'exhalation du radon de la roche vers l'eau ainsi que le temps de contact entre la roche et l'eau.

LE RADON DANS LES EAUX SOUTERRAINES : OUTIL DE CARACTERISATION DES MILIEUX FRACTURES ?

Au vu de ces études, il apparaît tout d'abord que la gamme des concentrations du radon mesurées dans les eaux souterraines est très étendue et qu'une grande variabilité spatiale est mise en évidence dans les aquifères en milieu de socle fracturé. Ces deux observations sont liées d'une part aux contrastes lithologiques existants entre les aquifères et d'autre part aux différences de fonctionnement hydrogéologique des eaux souterraines.

Cependant, les études réalisées pour caractériser en détail les concentrations en radon dans l'eau d'aquifères en milieu granitique fracturé sont peu nombreuses. Celles qui existent mettent en évidence la grande difficulté rencontrée pour différencier l'influence respective des paramètres qui contrôlent l'activité volumique du radon dans l'eau. Si l'importance des variations des concentrations en uranium et radium dans la roche est bien documentée, peu de modèles prennent en compte la mobilité de l'eau dans le milieu souterrain dans le calcul des activités volumiques du radon dans l'eau. Les résultats fournis par l'utilisation de ces modèles ne sont pas entièrement satisfaisants. Cette observation pose donc la question de savoir si le réseau de fractures peut être considéré indépendamment du reste de l'aquifère. Le contraste de concentration du radon dans l'eau existant entre la matrice rocheuse et les fractures peut ainsi fournir des informations sur les relations entre ces deux milieux possédant des perméabilités différentes.

Les problèmes rencontrés pour la modélisation des concentrations du radon dans l'eau d'un aquifère en milieu de socle fracturé rejoignent donc ceux liés à l'étude hydrogéologique des milieux fracturés. En effet, la compréhension de la variabilité spatiale des concentrations du radon dans l'eau est liée à une bonne prise en compte de l'influence de la géométrie des fractures et du débit de l'eau dans ces fractures. Dans cette étude nous allons chercher à caractériser les concentrations du radon dans un aquifère en milieu fracturé granitique et les paramètres qui contrôlent leur variabilité. L'objectif est de définir dans quelle mesure le radon peut-être un outil permettant de mieux appréhender l'hétérogénéité des fractures et l'influence de l'eau porale de la matrice sur les flux d'eau circulants dans le réseau de fractures.

Chapitre II : Site étudié et méthodes d'acquisition des données expérimentales

Dans ce chapitre la démarche choisie pour mener à bien ce travail de recherche est décrite. La localisation et les caractéristiques géologiques et hydrogéologiques des sites sont présentées. Dans cette partie, les méthodes d'acquisition des données expérimentales sont également explicitées.

I. PRESENTATION DE L'AQUIFERE ETUDIE ET DES CONNAISSANCES DEJA ACQUISES SUR SON FONCTIONNEMENT

I.1. Introduction générale de l'aquifère de Ploemeur

Le programme de recherche, ORE H⁺¹, a pour objectif l'étude du transfert et de la réactivité des eaux dans les aquifères hétérogènes. Dans le cadre plus large de la protection, de la gestion et de l'exploitation des ressources en eaux souterraines, l'ORE H⁺ assure le maintien et la coordination d'un réseau de cinq sites hydrogéologiques expérimentaux. Le site de Ploemeur (Morbihan) est l'un de ces sites, Cadarache (Bouches-du-Rhône), Poitiers (Vienne), Beaulieu (à proximité de Rennes, Ille-et-Vilaine) et Lavalette (à proximité de Carcassonne, Aude) étant les quatre autres.

I.1.1. Localisation des sites étudiés

Le site expérimental est localisé à proximité de la commune de Ploemeur (Morbihan), à l'ouest de la ville de Lorient (.Figure II.1).



Figure II.1 : Photo panoramique du site de Ploemeur et de la station de pompage de Kermadoye. (En arrière plan, la ville de Lorient.)

¹ ORE H⁺ : Observatoire de Recherche en Environnement – Réseau national de sites Hydrogéologiques. Ce programme est piloté par Philippe Davy (IFR CAREN, UMR Géosciences Rennes)

Cette commune est bordée au sud et à l'ouest par l'Océan Atlantique. Les forages étudiés dans ce travail sont situés en quatre lieux distincts dont la position géographique est indiquée en rouge sur la carte de la Figure II.2.

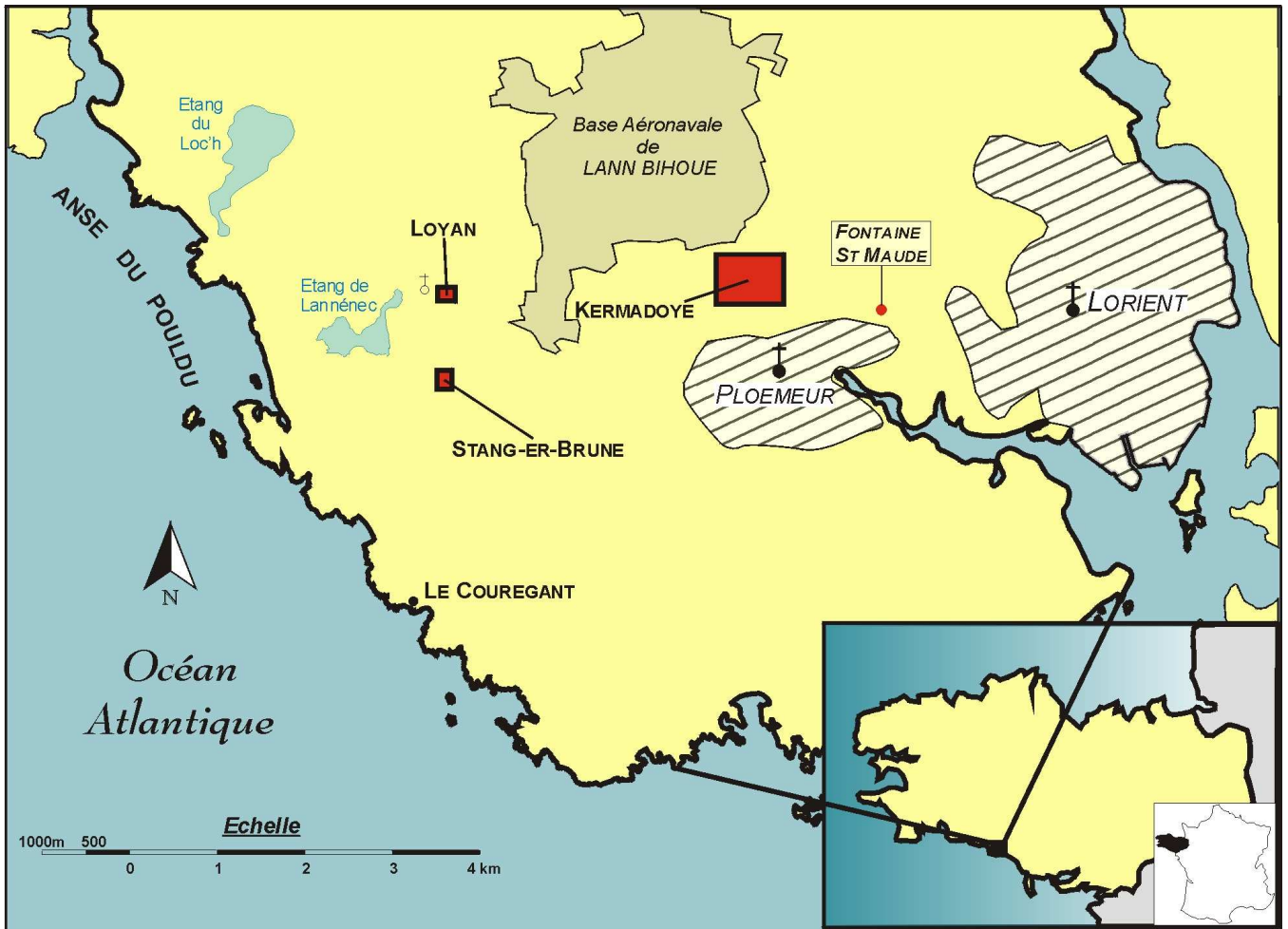


Figure II.2: Carte du secteur étudié et localisation des quatre sites équipés de forages : Kermadoye, Stang-Er-Brune, Loyan et lieu-dit la fontaine St-Maudé

- **Le site de Kermadoye** est localisé au nord de la ville de Ploemeur à proximité de la base aéronavale de Lann Bihoué. Il est situé à 5 km à l'est de l'étang de Lannec dans un contexte principalement agricole. Il est équipé de 20 forages.
- **Le site de Stang-Er-Brune** s'étend à l'ouest du site de Kermadoye, en bordure d'une zone marécageuse entourant l'étang de Lannec. L'ensemble des 7 forages du site se trouve à la lisière de la forêt contiguë à la zone humide.
- **Le site de Loyan** est voisin du site de Stang-er-Brune. Il est localisé de l'autre côté de la zone marécageuse et est équipé de 3 forages.

- **Le site du lieu-dit “ la fontaine St-Maudé ”** est situé à environ 1,2 km à l'est du site de Kermadoye. Un seul forage équipe ce site au milieu d'une étendue boisée à proximité d'une zone urbaine.

Les relevés topographiques de la zone mettent en évidence des contrastes d'altitude assez importants avec des maxima allant jusqu'à 40 m, délimitant ainsi de petits bassins versants de quelques centaines d'hectares. Malgré ces différences d'altitude, on peut localiser au nord du site une grande étendue subhorizontale de plusieurs centaines d'hectares, située à une altitude moyenne de 35 m sur laquelle se trouve la base aéronavale de Lann Bihoué.

Le bassin versant topographique associé au site de Kermadoye s'étend sur une superficie d'environ 275 ha englobant au nord une partie de la base de Lann Bihoué.

I.1.2. Contexte géologique général du secteur étudié

La région étudiée appartient au Domaine Sud-Armoricain et se situe sur la limite entre, au nord les micaschistes du Pouldu et au sud le leucogranite de Ploemeur (Figure II.3). De plus, on observe la présence d'altérites recouvrant les formations citées précédemment. Leur épaisseur est plus importante au niveau de la zone de contact (environ 30-40 m), et diminue jusqu'à une dizaine de mètres, au fur et à mesure que l'on s'éloigne du contact.

Le granite à deux micas de Ploemeur fait partie de la ceinture métamorphique de haute température de la Bretagne Méridionale. Ce granite a été décrit comme étant un leucogranite alcalin à calco-alcalin peu calcique. Il correspond à un granite à grain moyen, souvent recoupé par des filons d'aprites et quelques filons de pegmatites, résultant de la cristallisation fractionnée d'un magma différencié. On constate sur la carte géologique de la zone (Figure II.3) que de nombreux filons de quartz, de directions préférentielles N20-40 recourent ce massif. La mise en place du granite est liée directement au développement de la tectonique cisailante hercynienne au dévonien, par le jeu d'accidents tangentiels qui ont affecté la région. Son enracinement est faible. (Vignerresse, 1983; Vignerresse, 1987), en utilisant l'analyse gravimétrique, a montré que l'épaisseur de ce granite pouvait atteindre $0,8 \text{ km} \pm 20\%$. Les datations radiométriques réalisées par la méthode Rb/Sr ont donné un âge de $304 \pm 6 \text{ Ma}$ (Bernard-Griffiths et al., 1985). Ce granite serait issu de la fusion de matériaux protérozoïques principalement sédimentaires ou plus probablement métasédimentaires (Bernard-Griffiths et al., 1985; Peucat et al., 1988). Son origine apparaît comme syntectonique. Une analyse minéralogique du granite de Ploemeur a été effectuée,, à partir de l'observation de lames

minces réalisées à partir d'échantillons de roche provenant du site de Stang-er-Brune. Ces observations sont présentées dans l'annexe 1.

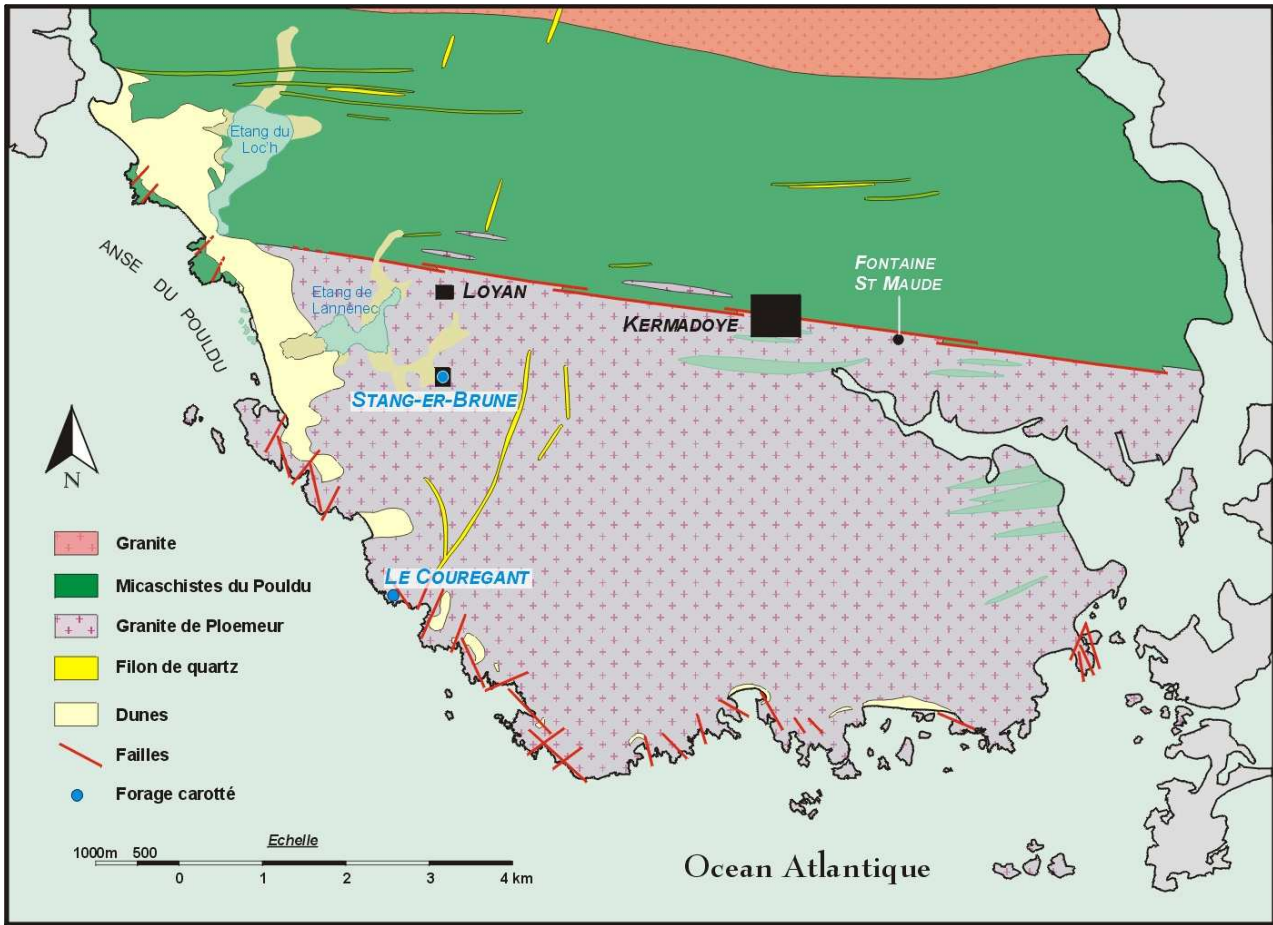


Figure II.3: Carte géologique simplifiée du secteur étudié et localisation des forages carottés (d'après carte géologique au 1/50000e de Lorient (N°383))

La zone de forages de Kermadoye se situe dans la zone de transition entre les micaschistes au nord et le granite au sud. Cette zone est caractérisée par l'injection de nombreux filons granitiques (issus du pluton) au sein des micaschistes.

Selon Touchard (1999), ce contact n'a pas le caractère rectiligne N100 figuré sur la carte géologique au 1/50000^e, mais une direction moyenne N50-60° à pendage N-W, systématiquement décalée par des failles normales N20 avec abaissement du compartiment Est. Dans sa position actuelle, le contact apparaît décro-chevauchant. Le modèle géologique 3D du site proposé par Touchard (1999), pour la zone de Kermadoye, est présenté sur la Figure II.4. La zone de contact, composée de micaschistes fortement injectés de filons de granite, pegmatite et quartz, est large d'un kilomètre et très fracturée. L'importance du réservoir hydrogéologique au niveau de Kermadoye semble être liée à ce contexte géologique particulier unique en Bretagne du sud.

Sur l'ensemble du site de Ploemeur, seuls deux forages ont été carottés. Leur localisation est indiquée sur la carte géologique de la Figure II.3 : le premier est situé à Stang-er-Brune, le second au Couregant, au sud de la ville de Ploemeur.

Ce travail de thèse porte principalement sur les sites de Kermadoye et de Stang-er-Brune. Ces deux sites sont décrits de manière plus détaillée dans les chapitres suivants.

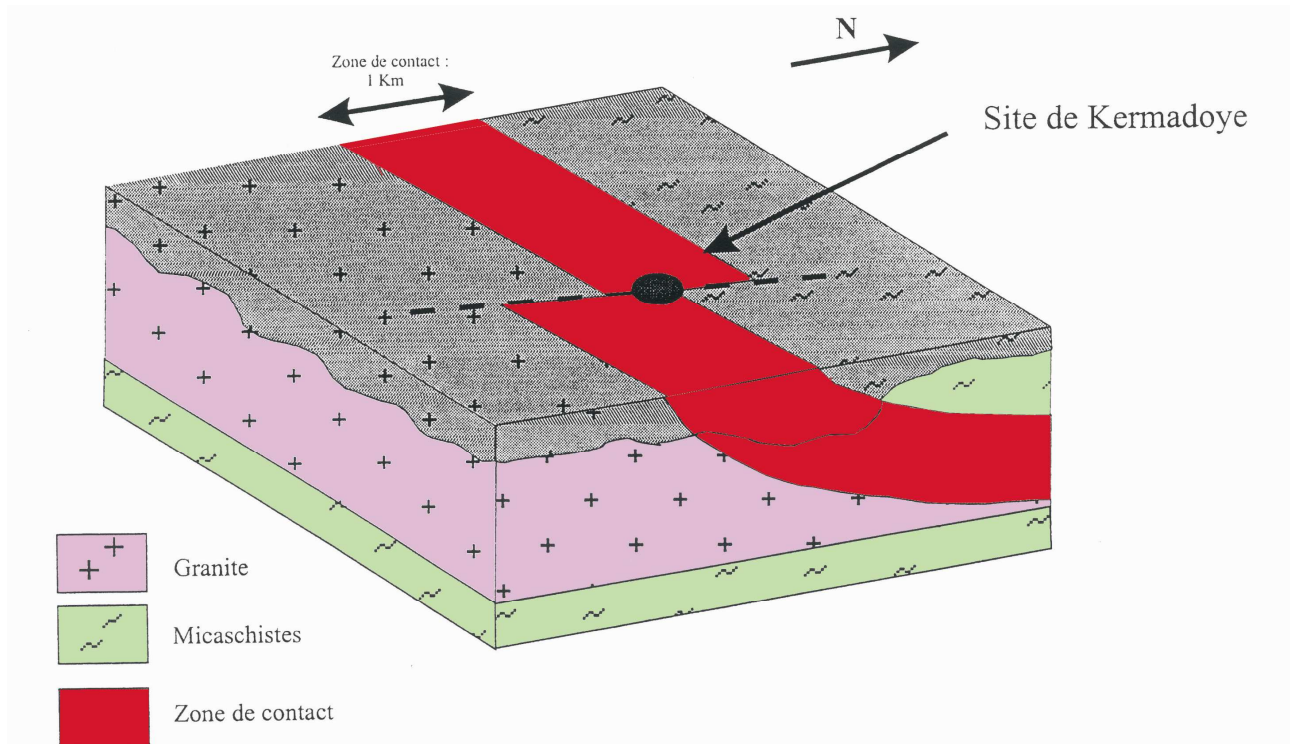


Figure II.4: Modèle géologique 3D du site de Kermadoye (d'après Touchard, 1999)

I.2. Le Site de Kermadoye

En 1990, le conseil municipal de la ville de Ploemeur (15 000 habitants) a décidé d'entreprendre une campagne de prospection des ressources en eaux souterraines, suite à la dégradation progressive de la qualité des eaux pompées dans l'étang de Lannenec, qui était alors la seule source en eau potable de la commune. Une étude a donc été demandée au bureau d'étude Géoarmor pour évaluer les ressources en eaux souterraines contenues dans le sous-sol de la région. Dans le cadre de cette prospection, 33 forages ont été réalisés sur l'ensemble du territoire communal. Ceux du site de Kermadoye ont été réalisés en dernier et ont permis de mettre en évidence d'importantes réserves en eau à cet endroit. La ville de Ploemeur a pris la décision d'implanter une station de pompage sur ce

site. Environ 10^6 m^3 d'eau y sont pompés chaque année afin d'alimenter en eau potable les habitants de la commune.

Dans le cadre des premiers travaux scientifiques, menés sur le site de Kermadoye (Touchard, 1999), 5 forages supplémentaires ont été réalisés à cet endroit (F34, F35, F36, MF1 et MF2) afin d'étudier le fonctionnement hydrogéologique de l'aquifère de Ploemeur.

I.2.1 Localisation des forages

Parmi tous les sites de cette étude, Kermadoye est le plus équipé en forages (20 forages). Ce travail de thèse a porté sur une partie de ces forages, la carte de la Figure II.5 indiquant la localisation des 16 forages étudiés.

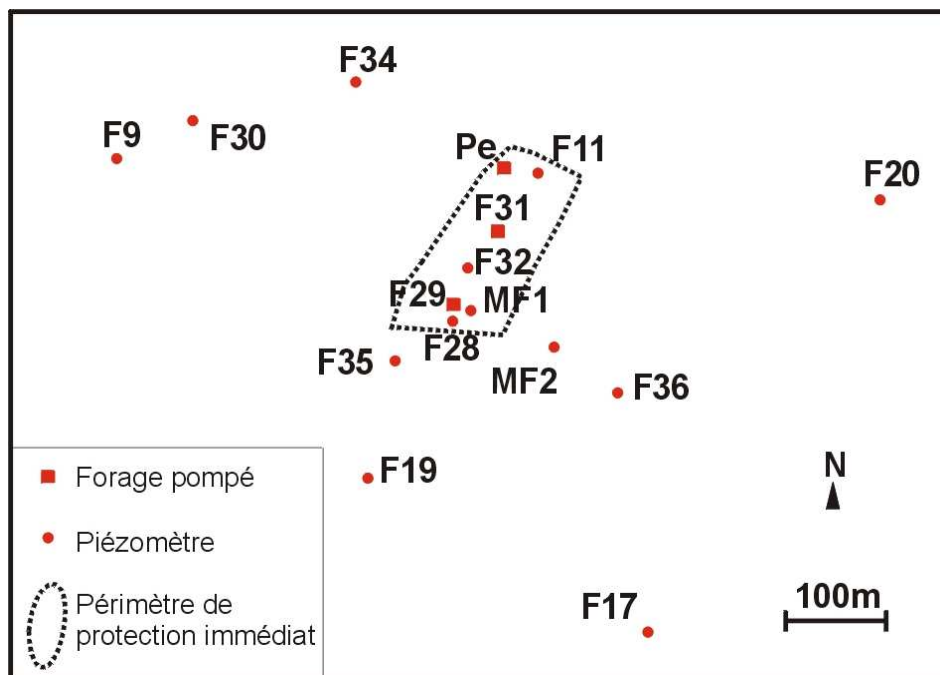


Figure II.5: Carte de localisation des forages du site de Kermadoye : le symbole carré représente un forage équipé d'un système de pompage

C'est l'exploitation de l'aquifère par la mairie de la ville de Ploemeur qui fait la particularité de ce site. En 1991, une station de pompage a été mise en place au niveau du forage Pe. Des pompes ont été installées dans les forages Pe, F29 et F31 pour extraire l'eau de l'aquifère. A l'intérieur du périmètre de protection immédiat (environ $100 \times 200 \text{ m}$) de la zone de pompage, on dénombre 7 forages (Figure II.6).



Figure II.6 :Photos du site de Kermadoye : a) périmètre de protection immédiat autour de la zone de pompage, b) forage F28 à l'intérieur du périmètre, c) au premier plan : forage F29 équipé d'un système de pompage, en arrière plan : hangar contenant le système d'exploitation du captage AEP et le forage Pe, d) piézomètre mF2 et prairies attenantes e) forage F9 localisé entre la route départementale et une surface agricole cultivée f) "tête de puits" du forage F9.

Parmi eux, le forage MF1 est superficiel (20 m) tandis que les autres atteignent des profondeurs comprises entre 67 et 90 m. A l'extérieur de ce périmètre, la profondeur des 9 autres forages varie entre 80 et 135 m. Le piézomètre mF2 est profond d'environ 20 m. Il est à noter que les forages F29 et F31 sont inaccessibles, en raison des équipements de pompage qui y sont installés (Figure II.6c) et le tubage du forage F36 est cassé à une certaine profondeur, empêchant ainsi le passage de tout instrument dans celui-ci.

I.2.2 Géologie des forages

Le site de Kermadoye est localisé au niveau de la zone de contact entre les micaschistes et le granite. La géologie des forages du site (Figure II.7) traduit directement cette relation entre ces deux lithologies. Hormis les forages F20 et F30, qui sont constitués uniquement de granite sur toute leur profondeur, la géologie des autres forages est caractérisée par des intercalations de granite dans des micaschistes. La distinction de ces deux lithologies est donc difficile dans certaines parties des logs géologiques.

Dans plusieurs forages (Pe, F11, F31, F28, F19 et F36), des filons de pegmatite (non représentés sur la Figure II.7) sont présents à une profondeur d'environ -30m par rapport au niveau de la mer.

En surface, on retrouve dans tous les forages, un niveau de roches altérées composé, suivant la localisation, soit d'arène granitique, soit de micaschistes altérés, soit d'une alternance des deux. On observe ce niveau depuis la surface jusqu'à une profondeur variant de 15 à 40 m selon les forages. Les piézomètres MF1 et MF2 ont été forés jusqu'à la limite de cette zone de roches altérées.

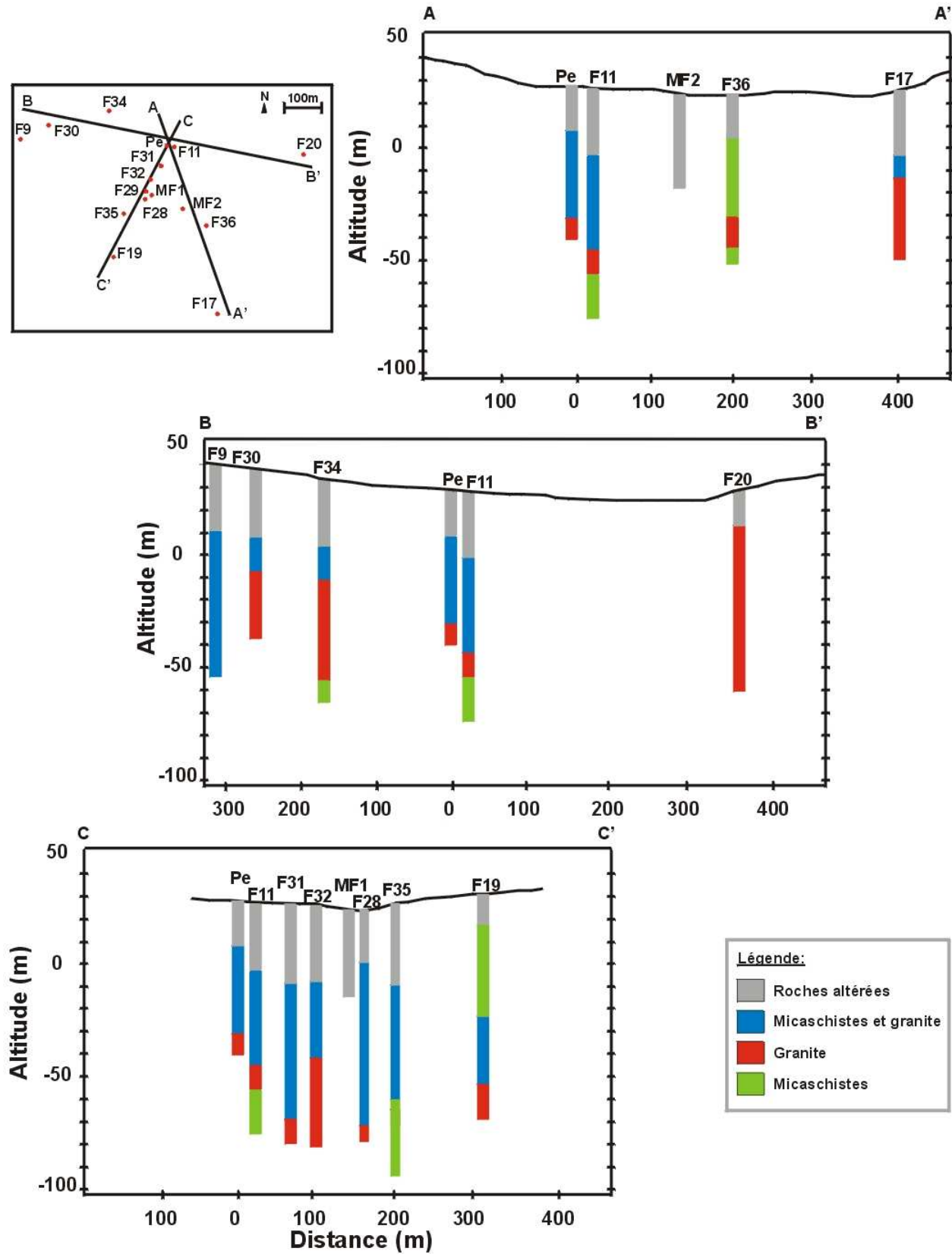


Figure II.7: Représentation de la topographie et de la géologie des forages de Kermadoye. La position des coupes est indiquée sur la carte de localisation des forages (en haut à gauche).

I.2.3. Hydrogéologie du site de Kermadoye : profondeurs des arrivées d'eau et circulations verticales.

Le nombre de fractures productrices présentes dans chaque puits a été initialement estimé au moment du forage des piézomètres. Le débit au soufflage réalisé lors du forage au marteau fond de trou a permis de déterminer la profondeur et le débit approximatifs des arrivées d'eau. Le débit a été relevé à intervalles réguliers dans le puits. Comme l'apparition d'une variation brutale du débit est reliée à l'existence d'une zone fracturée, ces observations permettent d'appréhender, bien que sommairement, la structure de l'aquifère au voisinage du forage. Une vision plus détaillée des fractures ou zones fracturées, de leur profondeur et leur chimie, a été obtenue à l'aide d'études diagraphiques fines et de mesures des flux (Le Borgne, 2004 ; Ayraud, 2005).

Pour un milieu poreux homogène soumis à un écoulement horizontal, la charge hydraulique varie dans la direction de l'écoulement mais pas verticalement. Au contraire, dans un milieu hétérogène, les zones d'écoulements peuvent être localisées et, plus ou moins isolées les unes des autres. Bien que la charge hydraulique soit constante dans un forage, les charges hydrauliques dans les zones d'écoulements ne sont en général pas identiques. C'est le cas en particulier dans les milieux faiblement connectés tels que les milieux fracturés. La charge des zones d'écoulement est contrôlée par leurs conditions aux limites à plus grande échelle. Ces conditions peuvent être, par exemple, l'existence d'un pompage sur un forage rencontrant une des zones d'écoulement ou la recharge de l'aquifère intervenant préférentiellement dans l'une des zones d'écoulement. Si ces zones d'écoulement ne sont pas isolées les unes des autres, des écoulements verticaux se font à travers le forage entre les zones de charges différentes.

La mesure des écoulements a été réalisée lors de la modélisation de l'hétérogénéité des écoulements (Le Borgne, 2004). La technique utilisée est celle du débitmètre à pulse de chaleur (Paillet, 1996). Le schéma simplifié de la Figure II.8 illustre les interactions entre les zones d'écoulement et le forage. Le forage intercepte deux zones d'écoulement. Celle du bas ayant une charge hydraulique plus grande que celle du haut, un écoulement se crée à travers le forage de bas en haut. Le débit est fonction de la différence de charge et de transmissivité entre les deux zones. Lorsque l'on pompe dans le forage, un débit transitoire se crée dans chaque zone, puis un régime pseudo permanent se met en place et le débit se stabilise. Ce dernier est alors fonction de la transmissivité et de la différence de charge entre les zones fracturées et le forage. La mesure des profils de débit dans deux conditions hydrauliques différentes (Figure II.8) permet théoriquement d'estimer la localisation, la transmissivité et la charge hydraulique des zones intersectées par le

forage. Ceci nécessite néanmoins la définition de modèles d'écoulement représentant les écoulements entre les zones transmissives par l'intermédiaire du forage (Le Borgne, 2004).

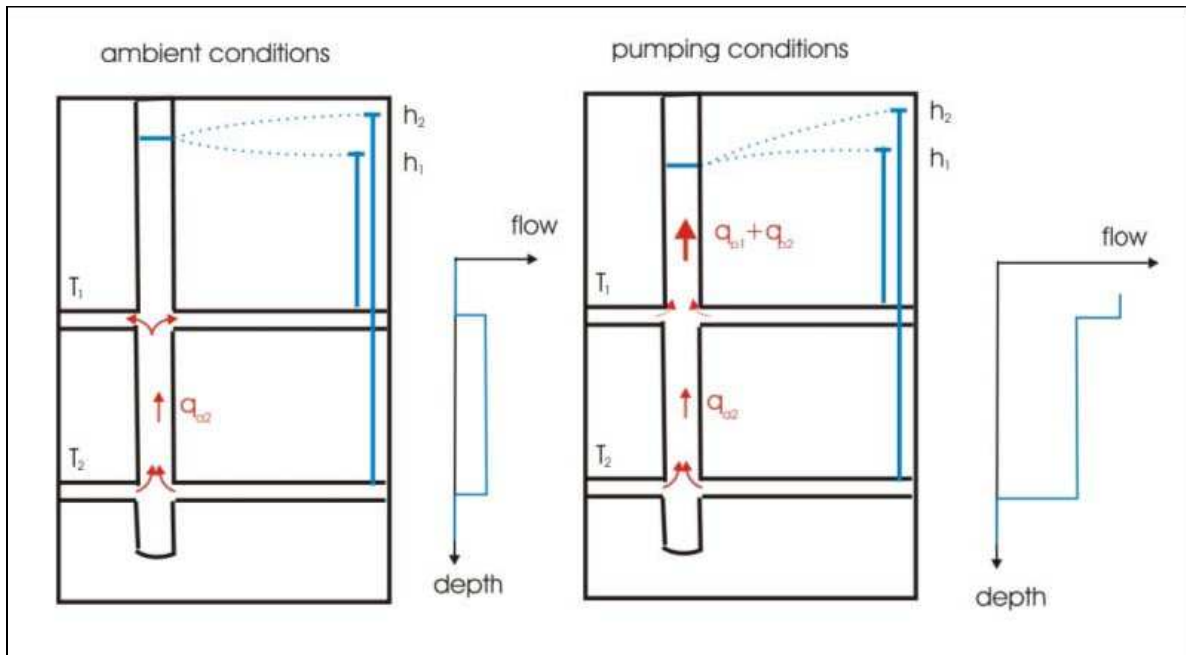


Figure II.8: Schéma simplifié illustrant le principe d'interprétation des diagraphies de débit d'après Le Borgne (2004)

Les profils représentés sur la Figure II.9 indiquent les profondeurs des arrivées d'eau et des circulations éventuelles dans les forages du site de Kermadoye. Certains forages présentent une arrivée d'eau unique et une absence de circulation verticale au sein de la colonne d'eau. Les forages F17, F36, Pe, F9 appartiennent à cette catégorie. C'est dans la zone où a été installée la station de pompage de la ville de Ploemeur que sont regroupés les forages présentant les fractures dont les débits d'eau sont les plus significatifs (F28, F29, F31, F32, F35 et Pe). Certains de ces forages ont des arrivées multiples d'eau. On peut donc observer un flux d'eau vertical dans la colonne d'eau du forage induite par la différence de charge hydraulique entre les différentes fractures. A l'exception du forage F35, où la circulation s'effectue de haut en bas, les flux mesurés dans les autres forages (F11, F34, F32 et F28) sont ascendants. Les flux n'ont pas pu être mesurés dans les forages équipés de pompes (Pe, F29 et F31).

Dans les forages superficiels mF1 et mF2 localisés dans des altérites, les arrivées d'eau sont situées entre 25 et 30 m de profondeur. Ces arrivées sont diffuses car le matériau encaissant, très altéré, rend difficile l'identification précise d'une profondeur d'arrivée d'eau.

Les zones, où les arrivées d’eaux sont les plus importantes, sont situées aux profondeurs où des filons de pegmatites ont été localisés (forages Pe, F11, F31, F28, F19 et F36).

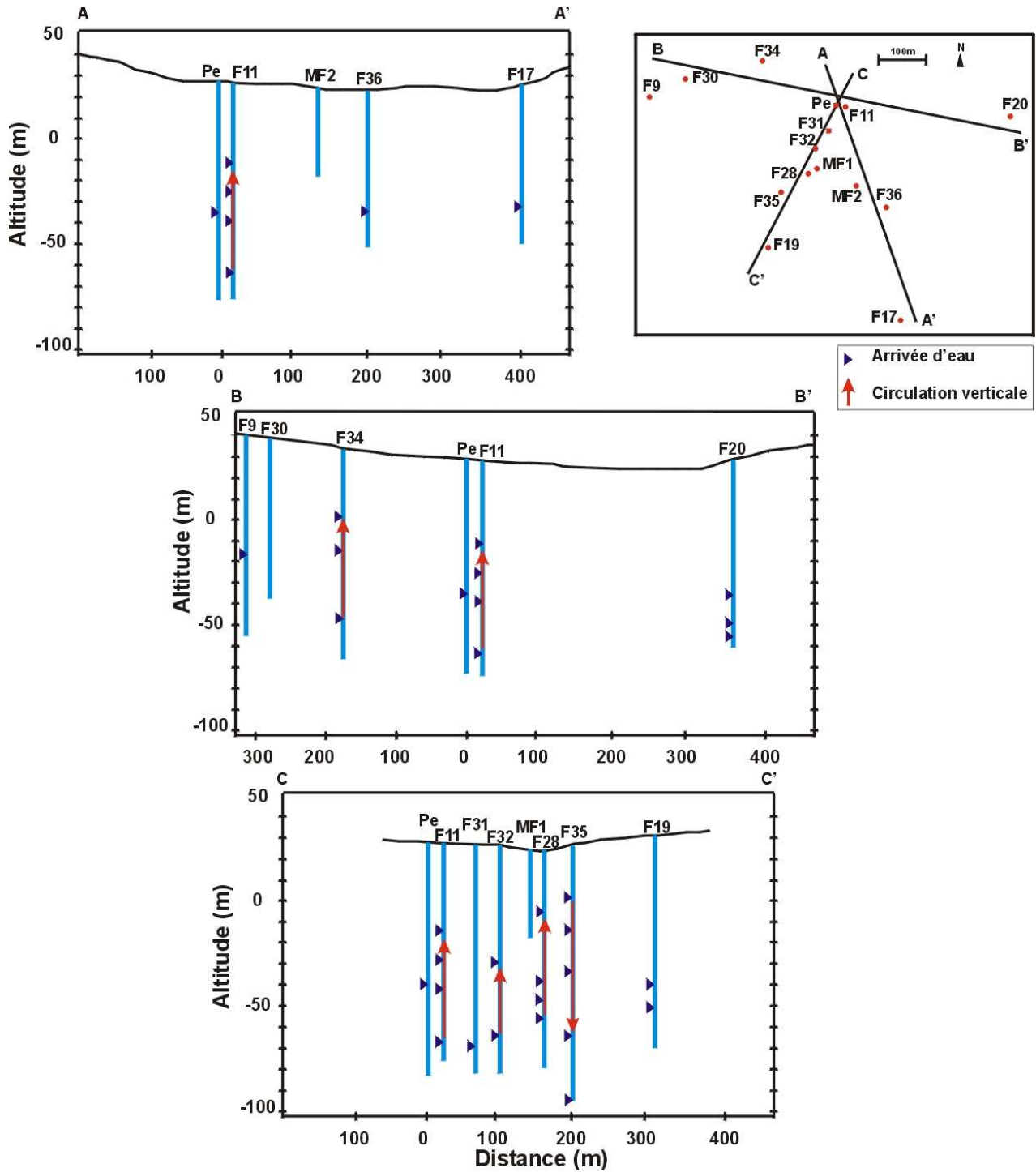


Figure II.9: Localisation des arrivées d’eau et des circulations verticales dans les forages du site de Kermadoye

Parmi tous les forages du site de Kermadoye, le puits F28 est celui ayant le fonctionnement le plus complexe car il a des caractéristiques hydrauliques et chimiques différentes avec et sans pompage.

Le forage F28 présente des circulations d'eau qui varient selon les conditions hydrauliques appliquées à ce forage. La Figure II.10 présente le résultat de l'une des diagraphies réalisées sur le puits F28 (Ayraud, 2005). La compartimentation chimique du puits F28 a été étudiée dans deux situations distinctes : absence de pompage aux alentours du puits (hormis le pompage principal continu ; noté sp sur la Figure II.10: « sans pompage ») et pompage dans un puits adjacent directement relié à F28 par une fracture commune (noté ap sur la Figure II.10: « avec pompage »).

Le log diagraphique est la représentation de la mesure en continu de différents paramètres dans un puits à l'aide d'une sonde multi-paramètres (ici une sonde Idronaut®). Les paramètres mesurés dans ce forage sont : la conductivité, la température, le pH, l'oxygène dissous, l'Eh et la profondeur (déduite des mesures de pression). Ces mesures caractéristiques de la physico-chimie des eaux peuvent être couplées à des mesures hydrogéologiques telles que le débit (à l'aide d'un micro-moulinet) ou la mesure de l'émission gamma des roches, qui permet de distinguer leurs natures.

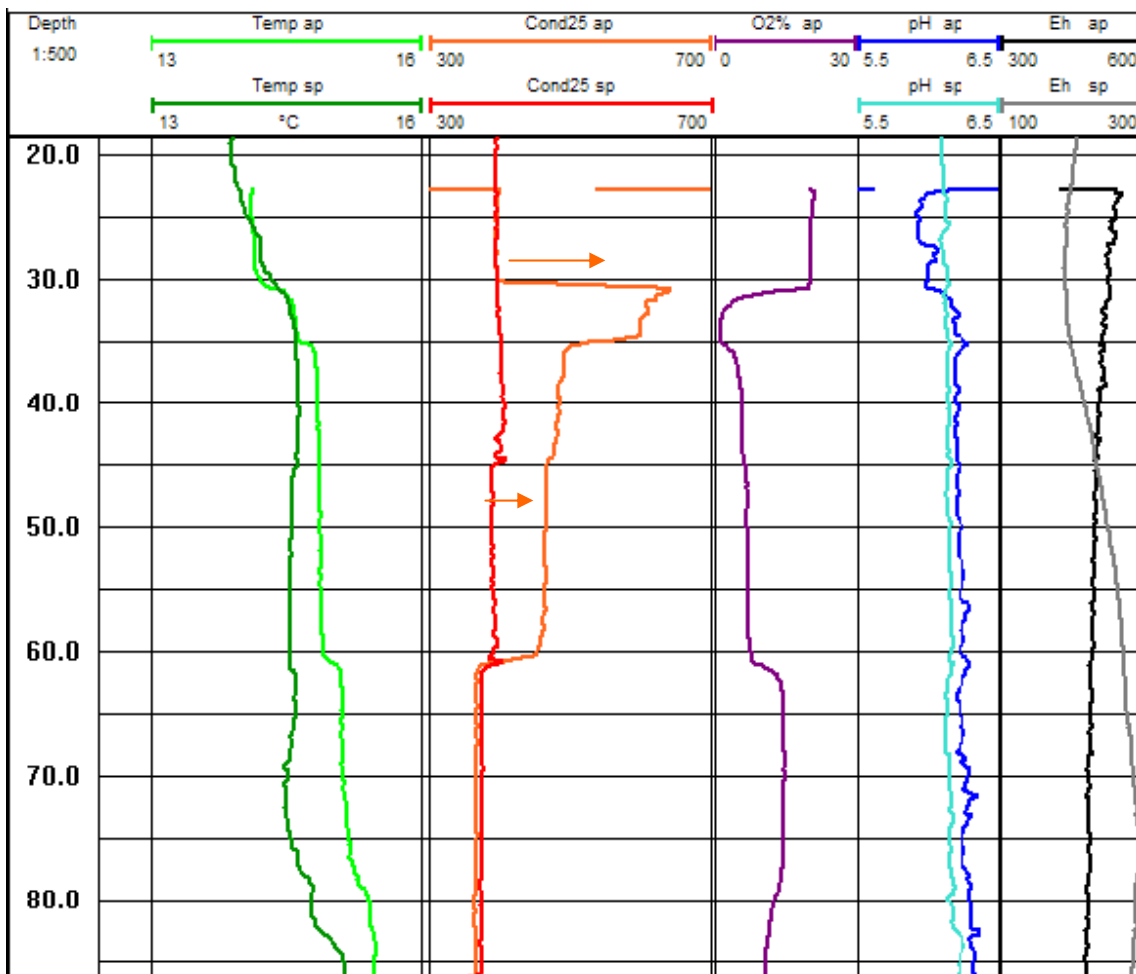


Figure II.10: Résultats de la diagraphie chimique réalisée sur le puits F28 (Ploemeur). L'indice sp représente les données sans pompage, ap celles avec pompage, d'après Ayraud (2005).

En conditions ambiantes (sans pompage autre que le pompage principal), l'eau du forage résulte d'un mélange entre l'eau des fractures les plus profondes et celle des fractures de surface. Dans ce cas, ce sont les fractures les plus profondes qui semblent contrôler la chimie de l'eau échantillonnée quelle que soit la profondeur. Lorsqu'on met en route un pompage en surface du forage F28 afin de forcer les flux d'eau, les fractures plus superficielles (30 et 60 m) s'individualisent. L'individualisation des flux des fractures s'observe nettement sur les logs de conductivité de la Figure II.10, avec l'augmentation de la conductivité à 30 et 60 m. Ainsi, à profondeur identique, selon que le forage est soumis à un pompage ou non, l'eau échantillonnée peut présenter une chimie très variable. En conditions ambiantes, le sens des flux d'eau entre 30 et 60 m est donc dépendant du cycle hydrologique et des pompes installés par la mairie de la ville de Ploemeur.

I.3. Le Site de Stang-er-Brune

Les forages du site ont été réalisés à deux périodes et avec deux objectifs différents. F22 a été foré en 1991 par la commune de Ploemeur lors de la recherche de sites, dont les ressources en eaux pouvaient être exploitées. Les résultats obtenus n'étant pas concluants, le site n'a pas été retenu. Tous les autres forages du site ont été réalisés en 2003 dans le cadre du projet européen ALIANCE (2001-2005). L'objectif était de créer un site expérimental équipé de forages dans un aquifère côtier en milieu granitique.

Contrairement aux ressources en eau du site de Kermadoye, celles du site de Stang-er-Brune ne sont pas exploitées. Par conséquent, en dehors des périodes d'expérimentations scientifiques, aucun pompage ne modifie la circulation des flux hydrauliques du site.

I.3.1. Localisation des forages

La carte de la Figure II.11 donne la localisation des forages du site de Stang-er-Brune, qui s'étend sur une surface d'environ 400 m², à la lisière d'une forêt bordant une zone marécageuse (Figure II.12c).

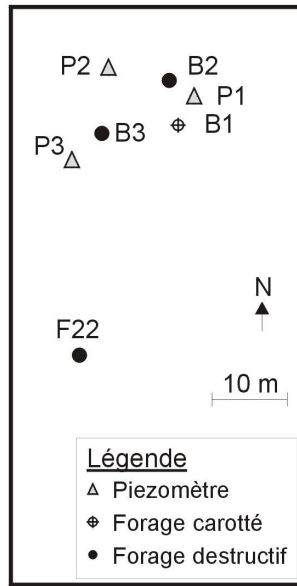


Figure II.11 : Localisation des forages du site de Stang-er-Brune

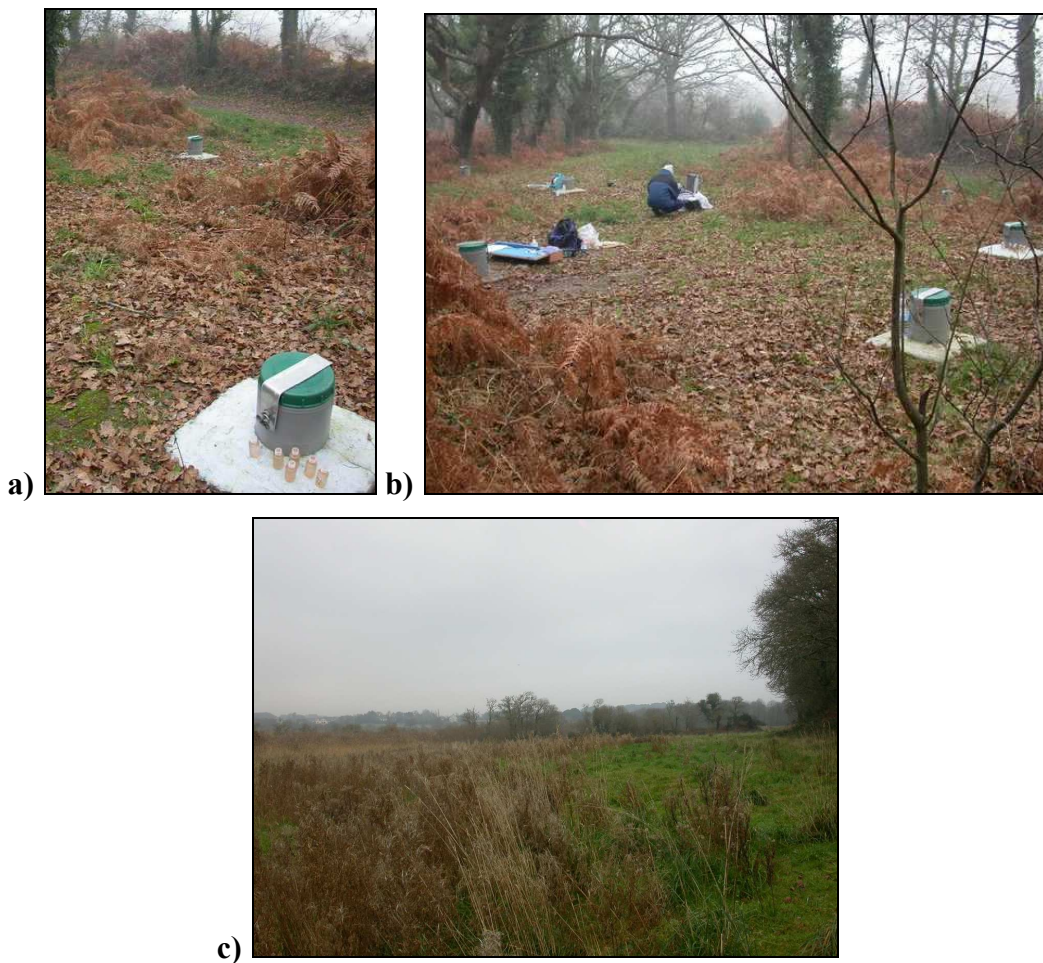


Figure II.12: Photos du site de Stang-er-Brune : a) forage B3 (au premier plan) et du piézomètre P3 (en arrière plan) b) Vue générale du site (à l'exception du forage F22) c) A gauche : lisière de la forêt à proximité des forages ; à droite : zone marécageuse.

Il est équipé de 3 piézomètres (P1, P2, P3) atteignant une profondeur de 10 m et de 4 forages profonds, B1, B2, B3 et F22 atteignant respectivement des profondeurs de 84, 100, 100 et 73 m (Figure II.12). Tous les forages étaient destructifs, à l'exception de B1 qui a été carotté.

I.3.2. Géologie des forages

Les piézomètres P1, P2 et P3 ont été forés à travers le sol puis les micaschistes altérés.

La Figure II.13 indique que la géologie des forages B1, B2 et B3 est caractérisée en surface par des micaschistes altérés sur environ 20 m d'épaisseur, puis par des micaschistes plus ou moins fracturés, et enfin, à partir d'une profondeur de 40m environ, par le granite de Ploemeur (injecté de filons de quartz).

Quant au forage F22, celui-ci traverse uniquement le granite de Ploemeur, fortement altéré en surface, puis le granite sain à partir de 35 m de profondeur environ.

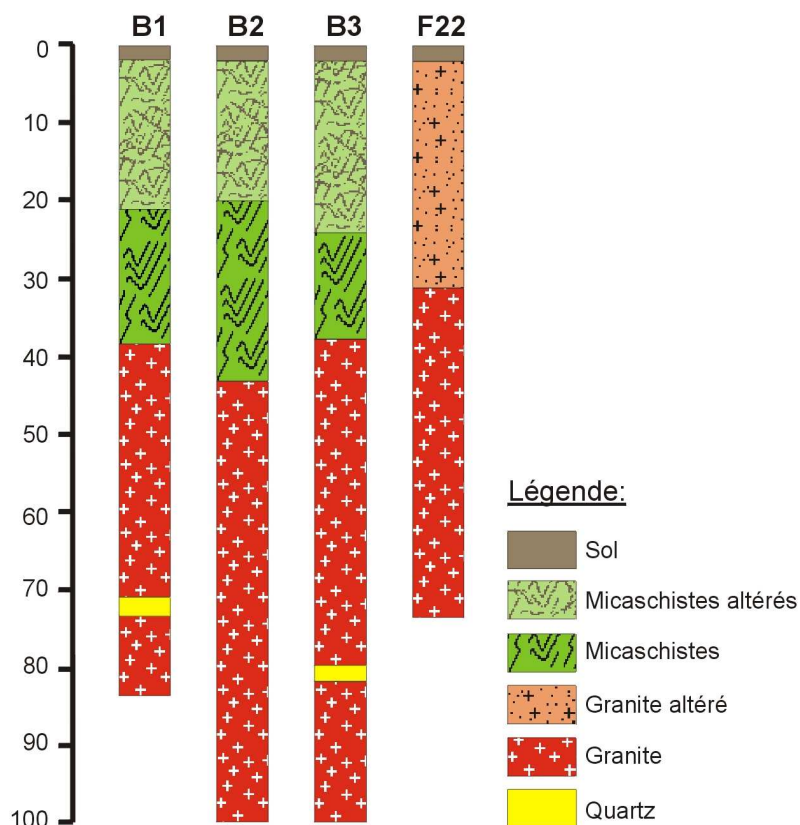


Figure II.13: Géologie des forages du site de Stang-er-Brune

I.3.3. Hydrogéologie du site de Stang-er-Brune : profondeurs des arrivées d'eau et circulations verticales.

L'hydrogéologie du site a été récemment étudiée par Le Borgne et al. (soumis), qui ont déterminé les profondeurs des arrivées d'eau dans les forages profonds du site de Stang-er-Brune. Celles-ci sont représentées sur le schéma de la Figure II.14. Pour tous les forages, 3 à 4 fractures productrices ont été détectées à des profondeurs comprises entre 20 et 100 m. Des circulations verticales ascendantes ont été mises en évidence dans les forages B1, B2 et B3. La profondeur de l'arrivée d'eau principale de chacun de ces forages est comprise entre 80 et 90 m. Toutefois, les flux d'eau dans les fractures du forage F22 sont trop faibles pour mettre en évidence, avec certitude, l'existence d'un flux vertical.

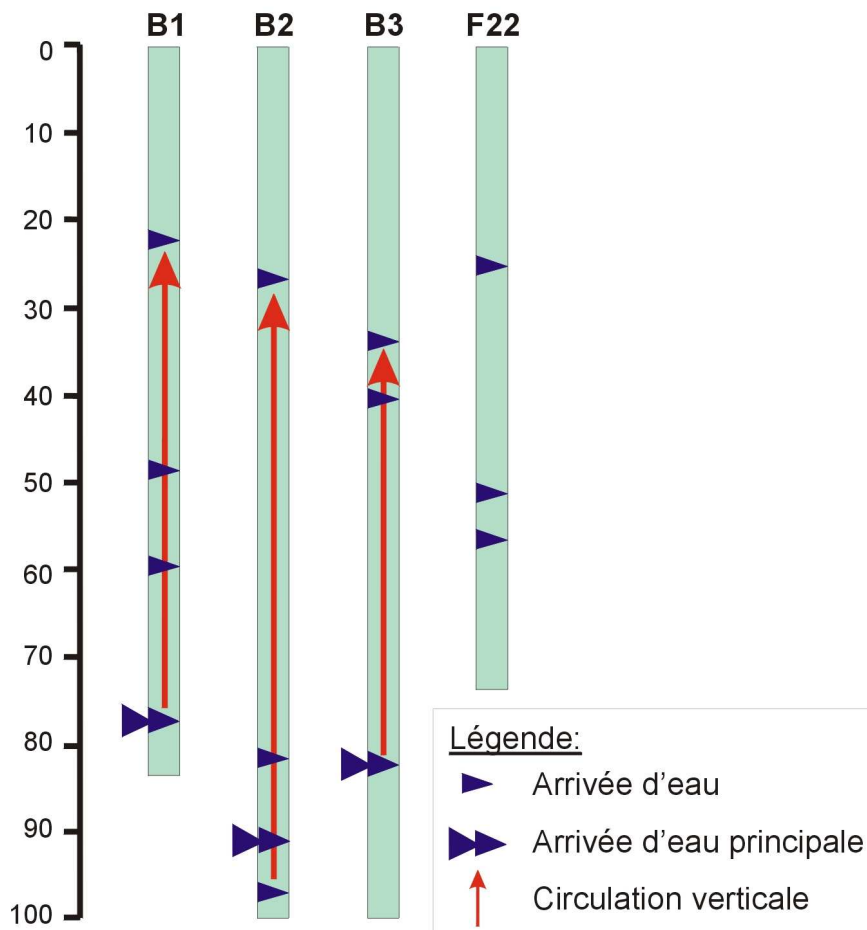


Figure II.14: Profondeur des arrivées d'eau et circulations verticales dans les forages du site de Stang-er-Brune.

I.4. Les sites de Loyan et de la fontaine St-Maudé.

I.4.1. Le site de Loyan

Le site de Loyan est composé de 3 forages très rapprochés, distants les uns des autres de 2 à 10 m : F13 (profondeur : 79 m), F21 (profondeur : 95 m) et F26 (profondeur : 100 m). Il est éloigné du site de pompage de Kermadoye, d'environ 3 km, et est localisé à proximité d'habitations. La géologie des forages est composée, en surface, par des micaschistes altérés sur les 30 premiers mètres, puis par une alternance de micaschistes et d'intrusions granitiques. Selon les forages, les arrivées d'eau sont plus ou moins importantes et localisées. Pour le forage F13, on note une arrivée d'eau très localisée à 60 m de profondeur. Dans le forage F21, l'arrivée d'eau est continue sur les 34 premiers mètres avec un débit constant. En revanche, pour le forage F26, l'arrivée d'eau est localisée précisément à 100 m de profondeur, mais est faible. Des essais de pompages ont montré que le forage F13 est partiellement connecté aux 2 autres puits. Les réserves en eau de ce site ne sont pas exploitées en raison d'une augmentation de la concentration en chlore de l'eau, suite aux essais de pompage, probablement liée à une intrusion d'eau salée.

I.4.1. Le site de la fontaine St-Maudé

Le forage F6 (profondeur : 82 m), situé le long d'un sentier forestier, est le seul forage qui équipe ce site. La géologie du puits est caractérisée par des granites très altérés sur les 7 premiers mètres, puis par des granites fracturés et légèrement altérés jusqu'à environ 50 m et enfin par des granites massifs jusqu'à 82 m de profondeur. L'arrivée d'eau principale est continue entre 18 et 28 m de profondeur.

II. METHODES D'ACQUISITION DES DONNEES EXPERIMENTALES

II.1. Méthode d'échantillonnage des eaux souterraines

II.1.1. Stratégie d'échantillonnage

Les profondeurs d'échantillonnage ont été choisies en fonction des profondeurs des arrivées d'eaux et du sens des flux d'eau verticaux dans les forages. Le schéma de la Figure II.15 illustre les différents cas de circulations qui ont pu être rencontrés dans les forages, au cours des différentes campagnes de prélèvement d'échantillons d'eau qui ont été menées.

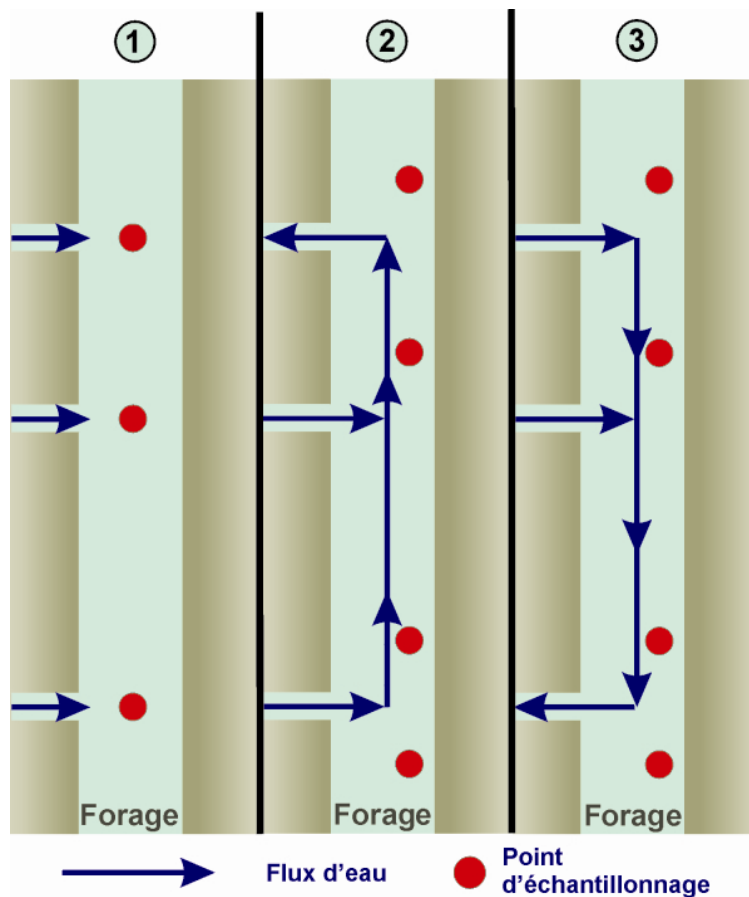


Figure II.15: Schéma des différents cas rencontrés lors de l'échantillonnage de l'eau des forages.

- Le cas n°1 est le plus simple. Il s'agit d'un forage sans circulation verticale dans la colonne d'eau. Un échantillon d'eau est donc prélevé, à la profondeur de chaque arrivée d'eau.
- Le cas n°2 est celui d'un forage avec une circulation verticale ascendante. Dans ce cas, un premier prélèvement est réalisé en dessous de l'arrivée d'eau la plus profonde, puis un

échantillon d'eau est prélevé 1 à 2 m au dessus de chaque nouvelle arrivée d'eau de manière à observer l'influence de chacune d'elles.

- Le cas n°3 est l'inverse du cas n°2. Un prélèvement est donc effectué au-dessus de l'arrivée d'eau la plus superficielle puis à chaque arrivée d'eau.

Nous avons utilisé deux systèmes de prélèvement différents :

- un préleveur manuel
- une pompe immergée

Le choix d'utiliser l'une ou l'autre de ces deux techniques est lié à la nature des expérimentations que nous avons menées sur le terrain. Lors des tests de pompages, la présence de la pompe dans le forage empêchant la descente du préleveur manuel, nous avons donc utilisé une pompe à une profondeur fixe, pour réaliser l'échantillonnage. Au cours des campagnes de terrains nous avons opté, préférentiellement, pour le préleveur manuel, plus simple d'utilisation.

II.1.2 Echantillonnage à l'aide d'un préleveur manuel

Le préleveur manuel choisi est un préleveur d'échantillon en acrylique et téflon fabriqué par la société ISMA®. Deux préleveurs de dimensions et volumes différents ont été utilisés (Tableau II.1) en fonction du diamètre des forages.

Tableau II.1 : Caractéristiques des préleveurs de la société ISMA® utilisés.

Préleveur	Volume (L)	Diamètre (mm)	Longueur (mm)
<i>petit</i>	1	40	1560
<i>grand</i>	2,5	80	800

Celui-ci est tout d'abord descendu dans le puits, à la profondeur désirée, puis automatiquement fermé par l'envoi d'un messenger (poids métallique en laiton). La Figure II.16 illustre le fonctionnement de ce préleveur. Durant la descente, l'eau est supposée circuler librement dans le tube, sans effet perturbateur sur les propriétés chimiques de la colonne d'eau traversée et de mélange éventuel de différentes « couches d'eau ». Par exemple, dans les puits à fractures multiples, le passage à travers une couche plus concentrée en un élément chimique ne laisse pas d'effet mémoire sur un échantillon prélevé dans une couche plus profonde moins concentrée en cet

élément. C'est le système que nous avons le plus employé, notamment lors des campagnes de mesures des concentrations du radon en conditions ambiantes, c'est-à-dire hors influence d'un pompage autre que celui mis en place par la mairie de la ville de Ploemeur.

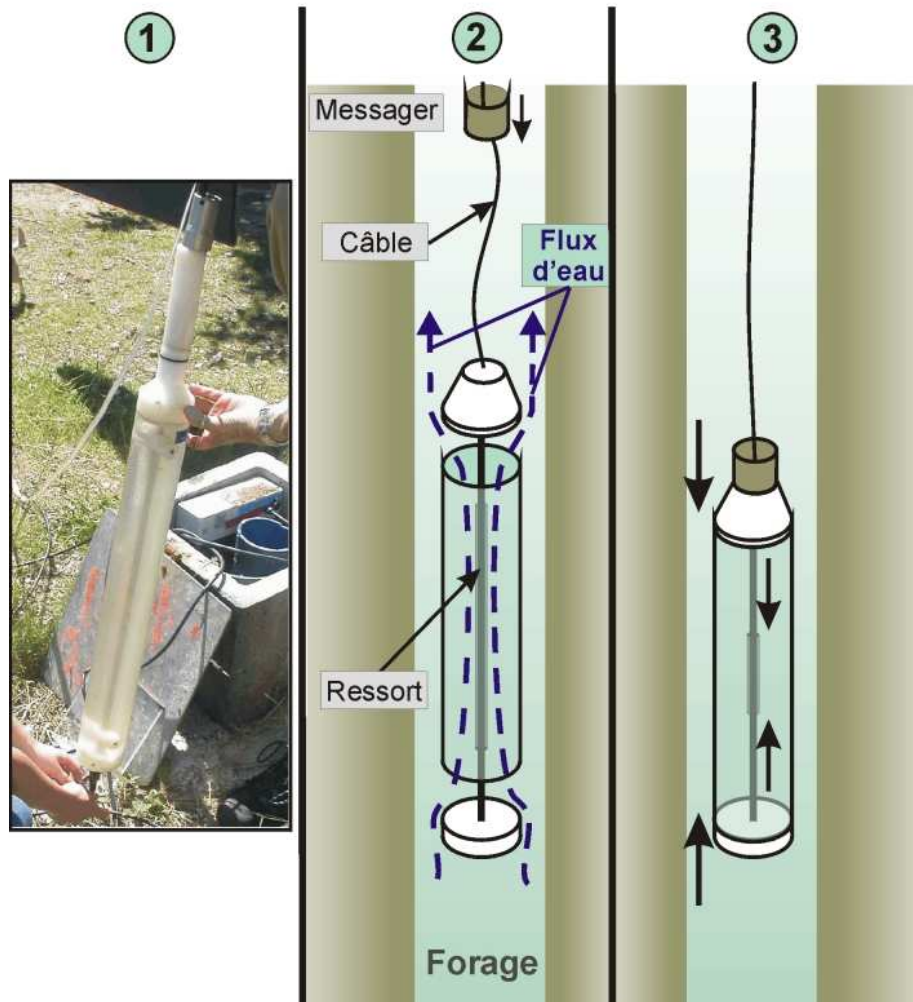


Figure II.16: Préleveur manuel : 1) Photo du matériel utilisé 2) Préleveur en position ouverte pendant la descente dans le forage 3) Préleveur en position fermée pendant la remontée de l'échantillon d'eau

Les photos de la Figure II.17 illustrent l'utilisation du préleveur manuel lors des campagnes de mesure du radon dans l'eau sur le site de Kermadoye. Le préleveur est muni, à son extrémité, d'un robinet permettant de transférer l'échantillon dans une fiole, minimisant la perte de radon due au dégazage.

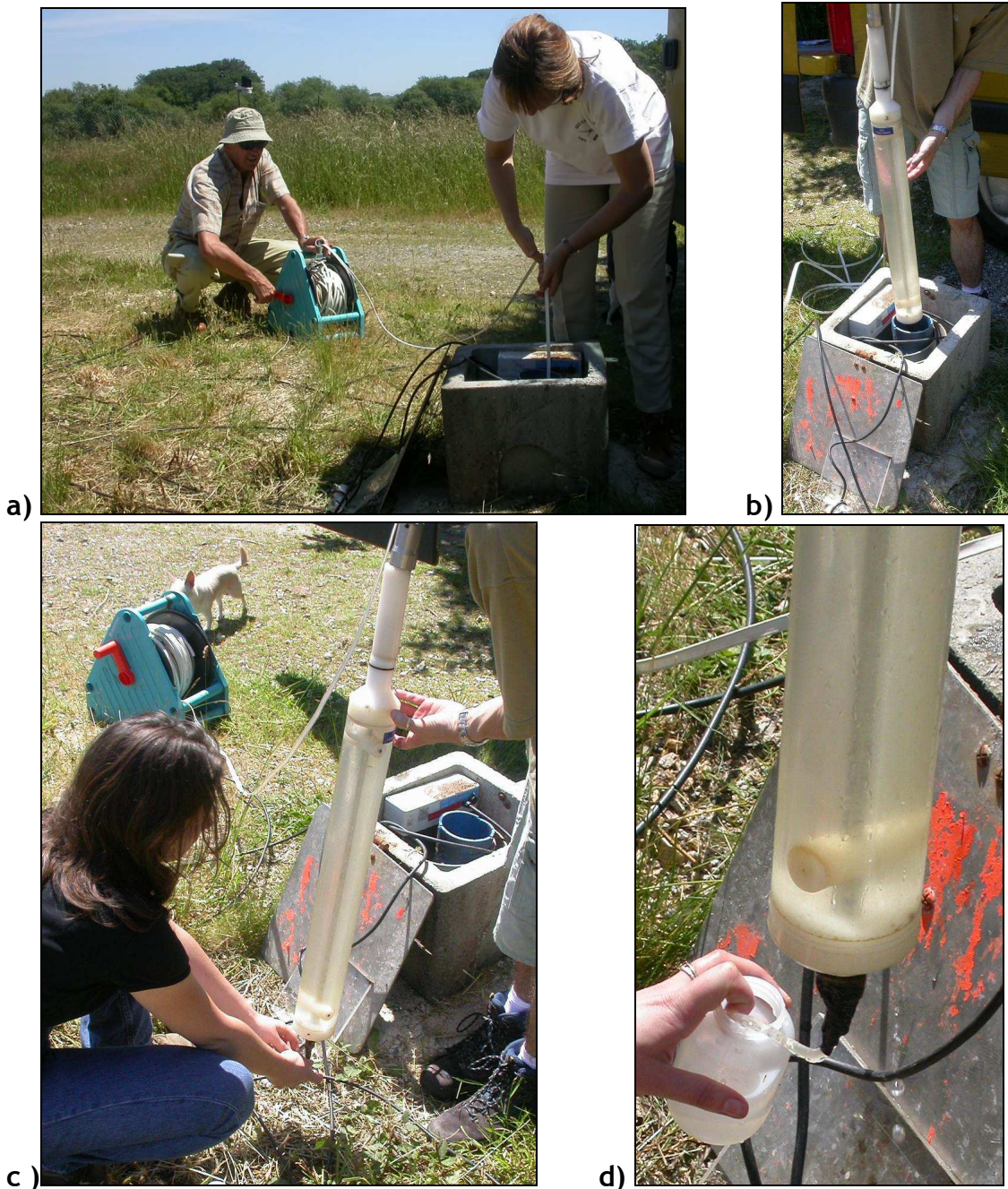


Figure II.17: Photos d'utilisation in situ du préleveur manuel dans les forages lors des campagnes de mesure du radon dans l'eau, a) descente du préleveur b) remontée de l'échantillon d'eau c) et d) transfert de l'échantillon d'eau dans une fiole.

II.1.3 Echantillonnage à l'aide d'une pompe immergée

Dans cette technique, les prélèvements sont réalisés avec une pompe MP1 (Grundfos®), équipée d'un tuyau en polyéthylène (Figure II.18), immergée à la profondeur désirée. L'eau est collectée en surface à la sortie de la pompe par le biais d'un tuyau en polyéthylène couplé à la pompe.

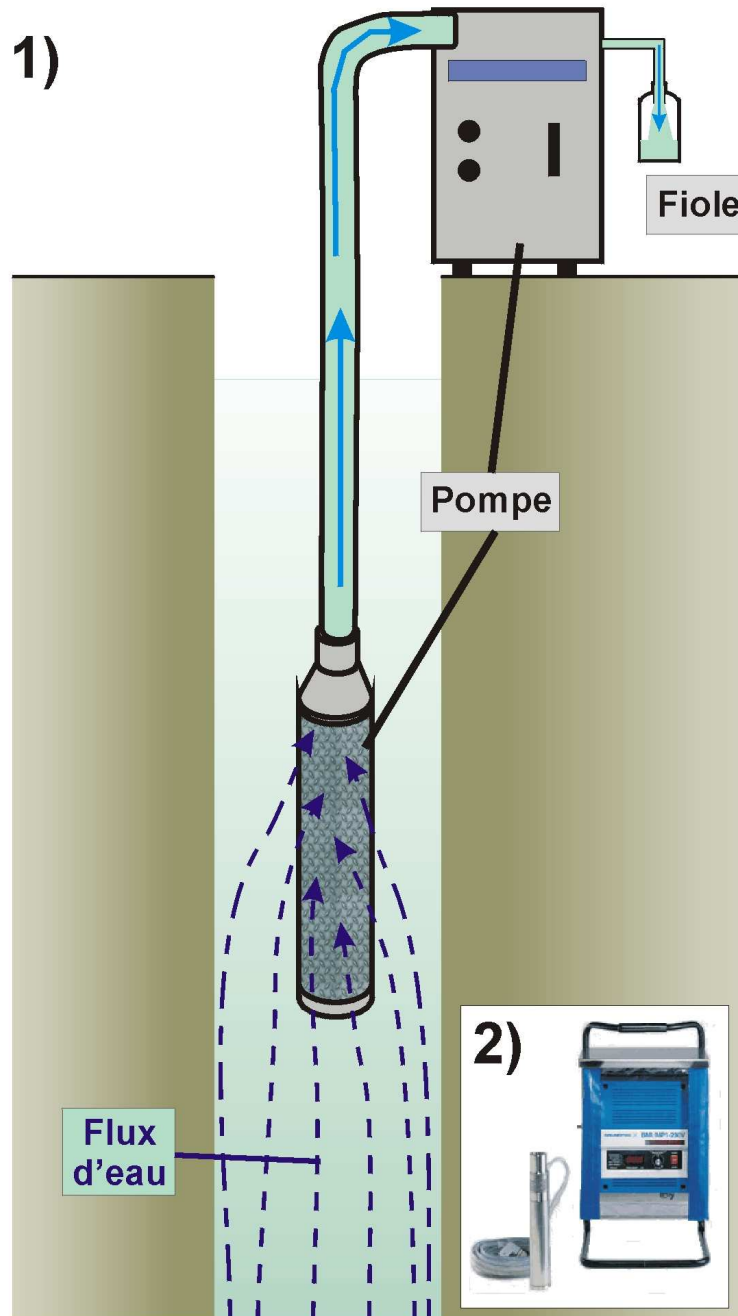


Figure II.18: Prélèvement en utilisant une pompe : 1) Schéma du dispositif 2) Photo de la pompe MPI (Grundfos®).

Nous avons utilisé cette méthode lorsque nous avons effectué des essais de pompage dans l'aquifère, afin d'étudier leur influence sur la concentration du radon dans l'eau. Lors de ces expérimentations, une pompe plus puissante a été placée à une profondeur inférieure à celle de la pompe MP1. Les photos de la Figure II.19 illustrent l'utilisation de la pompe employée pour le prélèvement lors des essais de pompages dans les forages.



Figure II.19: Photos d'utilisation in situ du système de pompage dans les forages de Stang-er-Brune ; a) premier plan : pompe de prélèvement, arrière plan : pompe utilisée pour l'essai de pompage, b) Tuyaux des pompes rentrant dans le forage.

II.2. Méthodes de mesure de l'activité volumique du radon dans l'eau

Les deux méthodes employées pour mesurer l'activité volumique du radon dans les échantillons d'eau extraits dans des forages de l'aquifère sont reposent sur deux techniques de détection différentes, soit par une chambre d'ionisation, soit par scintillation du sulfure de zinc activé à l'argent (foies scintillantes).

La méthode que nous avons utilisée le plus fréquemment est la détection par une chambre d'ionisation. Plus ponctuellement, lors des expérimentations nécessitant des mesures très rapprochées dans le temps, nous avons utilisé la méthode de détection par scintillation du sulfure de zinc activé à l'argent (foies scintillantes).

L'activité volumique en radon-222 dans l'eau a été mesurée dans l'eau de 145 échantillons extraits de 26 forages différents répartis sur l'ensemble du site d'étude. Ces mesures ont été réalisées au cours de 5 campagnes entre mars 2004 et mai 2006. Une étude préliminaire des activités volumiques du radon dans l'eau du site a été réalisée avant le début de cette thèse en octobre 2001 et novembre 2002.

II.2.1. Méthode de mesure utilisant une chambre d'ionisation couplée à un système de dégazage.

Cette technique est fondée sur l'association, en circuit fermé, d'un système permettant le dégazage forcé du radon contenu dans l'eau et la mesure en continu de ce gaz dans l'air par une chambre d'ionisation. Le matériel utilisé, commercialisé par la société Génitron, comprend la chambre d'ionisation AlphaGUARD® reliée à l'AquaKIT®, le système permettant le dégazage forcé du radon dissous dans l'eau (Figure II.20).

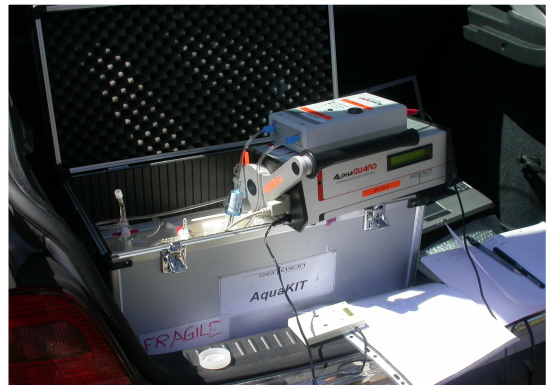
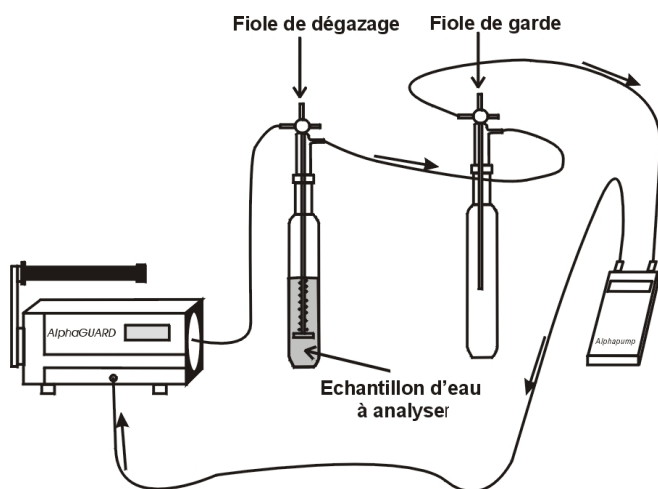


Figure II.20: Système de mesure par chambre d'ionisation

L'eau à analyser est échantillonnée et injectée dans la fiole de dégazage. La pompe est alors mise en route afin de mettre en circulation l'air présent dans le circuit et entraîner, par bullage forcé, le dégazage du radon dissous dans l'eau. La chambre d'ionisation mesure en continu la concentration du radon dans l'air. L'activité volumique du radon dans l'eau échantillonnée est déduite de celle de l'air en tenant compte de la solubilité du radon dans l'eau qui est une fonction inverse de la température.

Ce système de mesure du radon dissous dans l'eau a été testé et intercomparé avec d'autres techniques de mesures au Laboratoire d'Etude du Radon et d'Analyse des Risques de l'IRSN (DEI/SARG). Un test approfondi de ce système a été réalisé par Schubert et al. (2006).

Le principe de fonctionnement d'une chambre d'ionisation et l'expression de l'activité volumique du radon dans l'eau à partir de la concentration du radon mesurée dans l'air sont détaillés dans l'annexe 2.

II.2.2. Méthode de mesure utilisant une fiole scintillante

Une fiole scintillante est un flacon en verre hermétiquement fermée au moyen d'un bouchon de caoutchouc, de géométrie et de volume définis (Figure II.21a). La surface interne de la fiole, à l'exception du fond, est recouverte de sulfure de zinc activé à l'argent ($\text{ZnS}(\text{Ag})$). Une prise d'essai de volume connu (1 à 2 cm^3) d'eau à analyser est prélevée à l'aide d'une seringue. La fiole scintillante, possédant un bouchon avec un coton hydrophile dans son évidement intérieur, est mise partiellement sous vide. L'eau contenue dans la seringue est injectée doucement dans le coton puis la fiole est remise à pression atmosphérique par introduction d'air propre filtré. Le radon se répartit entre les phases eau et air et diffuse du coton vers la fiole. La désintégration du radon et de ses descendants présents dans la fiole engendre l'émission de particules α qui, lors de leur parcours, transfèrent leur énergie au milieu scintillant ($\text{ZnS}(\text{Ag})$). Le retour à l'état fondamental des électrons excités du milieu scintillant provoque l'émission de photons détectés par un photomultiplicateur puis dénombrés par une chaîne de comptage (Figure II.21b).

Pour un comptage optimal, il est nécessaire d'attendre 3 h après l'injection d'eau dans le coton, afin d'atteindre dans la fiole scintillante, l'équilibre radioactif entre le radon-222 et ses descendants à vie courte. Chaque fiole scintillante est comptée deux fois sur une période de 3 minutes. Pour un même échantillon, on dispose donc en général de 4 valeurs de comptage (2 échantillons prélevés systématiquement et 2 fioles comptées).

L'expression de l'activité volumique du radon dans l'eau à partir du comptage des fioles scintillantes et de l'incertitude associée est détaillée dans l'annexe 3.



Figure II.21: a) Fiole scintillante et bouchon évidé b) Chambres de comptage équipées d'un photomultiplicateur c) Photomultiplicateur d) Fiole scintillante dans la chambre de comptage.

II.3. Méthode de mesure du flux d'exhalation du radon des roches

La méthode employée est fondée sur les recommandations données dans la norme NF M60-768 (AFNOR, 2002) pour estimer le flux surfacique d'exhalation du radon-222 d'un matériau à l'interface avec l'atmosphère, à partir de la mesure de l'activité volumique du radon 222 à l'intérieur d'un conteneur d'accumulation. La méthode utilisée pour la mesure en continu de l'activité volumique du radon dans l'air est fondée sur la norme NF M60-767 (AFNOR, 1999a).

Parmi tous les forages présentés dans cette étude, deux n'ont pas été destructifs (Stang-er-Brune et Le Couregant). Nous avons sélectionné 6 échantillons de roche sur la carotte extraite du forage B1

du site de Stang-er-Brune : 2 échantillons de micaschistes et 4 de granite. Les roches prélevées présentent différents degrés d'altération et de fracturation (Tableau II.2). Les photos de la Figure II.22 sont représentatives des différentes lithologies sélectionnées pour la mesure des flux d'exhalation.

Tableau II.2 : Echantillons de roches sélectionnés sur la carotte extraite du forage B1.

Echantillon de roche	Description de la roche	Profondeur (m)
C5	micaschistes	27
C9	micaschistes fracturés	34
C13	granite oxydé	48
C17	granite	60
C20	granite très fracturé	69
C23	granite très fracturé et oxydé	79

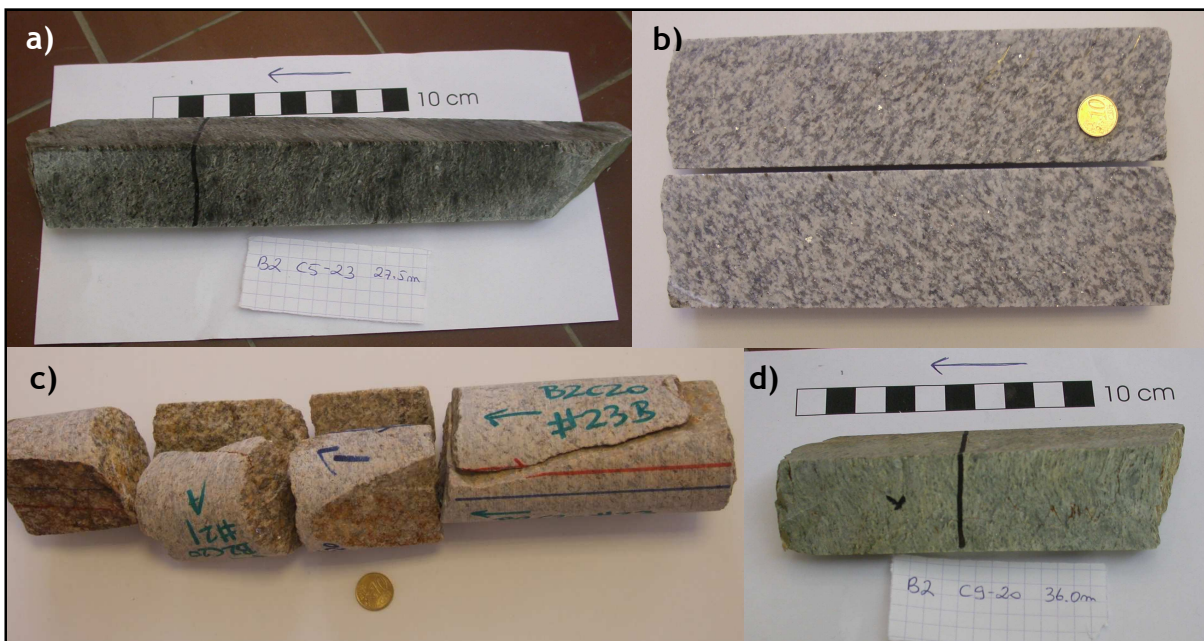


Figure II.22: Photos d'échantillons de roches pour lesquels le flux d'exhalation surfacique du radon a été mesuré : a) micaschistes sains (Ech. C5), b) granite sain (Ech. C17) c) granite altéré et fracturé (Ech. C20) d) micaschistes altérés (Ech. C9).

Une description du conteneur d'accumulation, de la chambre d'ionisation (AlphaGUARD®) et de la configuration utilisée, est illustrée par la Figure II.23. Le conteneur est de forme conique et la chambre d'ionisation est vissée à son sommet. Le transfert des atomes de radon entre ces deux éléments se fait par diffusion naturelle. Le système est rendu étanche par la pose d'un joint en silicone.

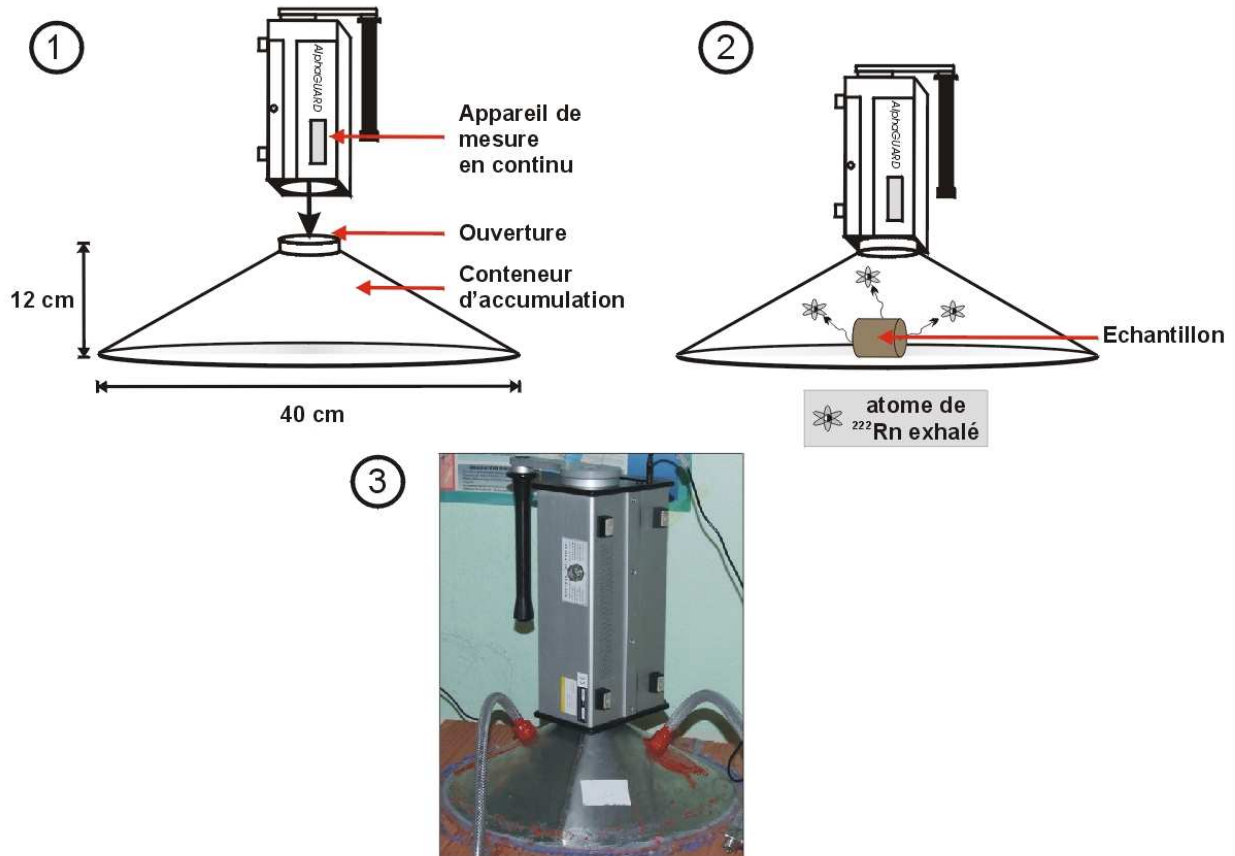


Figure II.23: Système de mesure du flux d'exhalation des roches : 1) Mise en place du système 2) Schéma du système en fonctionnement 3) Photo du système pendant une mesure.

Une fois le système clos, une mesure en continu de l'activité volumique du radon dans l'air est effectuée pendant une durée de 6 h. Le flux surfacique d'exhalation du radon du matériau est estimé à partir de la variation de l'activité volumique du radon de l'air du conteneur d'accumulation en fonction du temps. Le détail de ce calcul et de l'incertitude associée est donné dans l'annexe 4.

II.4. Méthodes d'analyses chimiques des eaux

II.4.1. Mesure de l'activité volumique en radium 226 dans l'eau par émanométrie radon

L'activité volumique en radium-226 a été mesurée dans l'eau de 14 échantillons extraits de 11 forages différents répartis sur l'ensemble du site d'étude.

La mesure de l'activité volumique en radium-226 dans l'eau a été réalisée au LETS (Laboratoire d'Etude des Transferts dans les Sols et le sous-sol ; IRSN/DEI/SARG ; Fontenay-aux-Roses) avec un système de mesure de marque TRACERLAB, en utilisant la technique de l'émanométrie du

radon 222. Cette procédure repose sur la norme NF M60-803 (AFNOR, 2001) et peut s'appliquer à tous types d'eaux d'activité en radium 226 supérieure à 20 mBq.L⁻¹ avec une prise d'essai de 1 L.

Pour des solutions dont l'activité volumique en radium 226 est inférieure à 0,2 Bq.L⁻¹ (ou lorsque l'incertitude de mesure est supérieure à 25%), une concentration préalable de la solution est nécessaire. Dans la mesure du possible, il est préférable d'effectuer une concentration des solutions à analyser (facteur de concentration compris entre 4 et 40) afin de diminuer les incertitudes de mesure. La solution est concentrée dans un évaporateur rotatif sans la faire bouillir. Après refroidissement, le volume total récupéré dans le barboteur est de 25 mL.

La solution contenant le radium 226 à doser est ensuite introduite dans un barboteur en verre. Après élimination du radon présent (mise à zéro), le radon 222 (gaz) s'accumule pendant un temps déterminé. Un balayage d'air synthétique entraîne le radon 222 dans une chambre de comptage dont la paroi interne est tapissée par du sulfure de zinc activé à l'argent. Il y a émission de particules α au cours de la désintégration du radon 222 (et de deux de ses descendants, le polonium 218 et le polonium 214) qui, en frappant la paroi interne de la chambre, donnent naissance à des flashes de scintillation. Le comptage du nombre de ces scintillations permet de déterminer l'activité volumique en radium 226.

II.4.2. Mesure des ions et des éléments traces dissous dans l'eau

L'étude hydrochimique du site a été réalisée au travers de 7 campagnes d'échantillonnage sur l'ensemble des forages du site de Ploemeur de 1996 à 2003 et du suivi régulier de l'eau pompée par la municipalité de Ploemeur (Touchard, 1999, Ayraud, 2005, Tarits et al., 2006).

Les paramètres physico-chimiques ont été mesurés directement sur le terrain à l'aide de sondes portatives. L'eau a été filtrée à 0,2 μ m puis stockée dans des flacons en polypropylène rincés à l'acide puis à l'eau ultra-pure (milliQ - 18M Ω) et acidifiés pour l'analyse des cations et des éléments en traces. Les anions ont été analysés par chromatographie ionique (Dionex DX 100), les cations et les éléments en traces par ICP-MS (HP 4500 - (Bouhnik-Le Coz and Petitjean, 2001) et le carbone organique dissous (COT) à l'aide d'un analyseur de carbone (Shimadzu 5050 A - (Petitjean and Henin, 2004) au laboratoire Géosciences Rennes.

II.5. Méthodes d'analyses chimiques des roches

Nous avons sélectionné 10 échantillons dans les deux carottes de roches. Les échantillons ont été choisis de manière à constituer un échantillonnage représentatif des différentes lithologies. Pour cela, nous avons sélectionné 3 échantillons de micaschistes et 7 de granite présentant divers degrés d'altération et d'oxydation. Les échantillons de micaschistes proviennent uniquement de la carotte extraite du forage de Stang-er-Brune alors que 4 échantillons de granite proviennent de la carotte de roche du Couregant et 3 de celle de Stang-er-Brune. Les échantillons de roches ont ensuite été finement broyés avec des broyeurs en agate afin d'obtenir une poudre constituée de particules d'un diamètre de 100 μm .

II.5.1. Mesure de l'activité massique du radium 226 dans la roche par spectrométrie gamma

Le but de la spectrométrie gamma est d'identifier les composants d'un mélange d'éléments radioactifs émetteurs X et γ et de déterminer l'activité de chaque composant, en mesurant l'énergie et l'intensité des rayonnements émis. Pour détecter les rayonnements X et γ , le milieu solide du semi-conducteur à base de germanium permet de capter l'énergie cinétique des électrons produits, avec une bonne probabilité, et permet de convertir cette énergie en signal mesurable, c'est-à-dire, en un signal électrique, dont la mesure de l'amplitude traduit l'énergie des rayonnements déposés dans le milieu. Le semi-conducteur subit directement l'ionisation des rayonnements incidents en mettant en mouvement des paires électron-trou. Ces paires de charges sont attirées aux bornes du milieu détecteur polarisé, ce qui donne naissance à une impulsion, à chaque interaction de rayonnements dans le détecteur. Ces milieux peuvent donc être assimilés à des petites chambres d'ionisation solides. Les rayonnements γ sont émis avec une ou plusieurs énergies bien déterminées correspondant aux énergies d'excitation des noyaux radioactifs. Les spectres d'émission sont donc des spectres de raies correspondant aux pics caractéristiques des éléments radioactifs.

La mesure de l'activité massique du radium 226 des échantillons de roche a été réalisée au LETS (IRSN/SARG/LERAR, Fontenay-aux-Roses). Les échantillons ont été conditionnés, sous forme de poudre, en géométrie de mesure respectant la norme NF M 60-790-6 (AFNOR, 1999b). Nous avons choisi la géométrie de 6,5 cm^3 (boîte 4913).

Le système de mesure utilisé comprend : la chambre de mesure (isolée des rayonnements parasites), un cryostat, un détecteur de type coaxial en germanium hyperpur, de polarité négative, muni d'une fenêtre en carbone, dont l'efficacité relative est de 40 %, une électronique de comptage et une interface entre l'électronique de comptage et l'ordinateur.

II.5.2. Mesure des éléments majeurs et traces des roches.

L'analyse de la composition chimique des échantillons de roche a été réalisée par le Service d'Analyse des Roches et des Minéraux (SARM) du Centre de Recherches Pétrographiques et Géochimiques (CRPG) de Nancy.

L'analyse a été faite sur roche totale, après une préparation des échantillons par fusion au métaborate de lithium, suivie d'une mise en solution acide (HNO_3). Les éléments traces ont été mesurés par ICP-MS (Perkin-Elmer ELAN 5000) et les éléments majeurs par ICP-AES (Jobin-Yvon JY 70).

Chapitre III : Résultats expérimentaux : caractérisation de la variabilité et de l'origine du radon dans les eaux souterraines de l'aquifère de Ploemeur.

Ce chapitre récapitule les résultats expérimentaux obtenus de manière à caractériser les concentrations en radon dans l'eau de l'aquifère de socle fracturé de Ploemeur (Morbihan).

Dans la première partie de ce chapitre, les variations spatiales et temporelles des activités volumiques du radon dans l'eau sont présentées. La seconde partie porte sur la caractérisation du terme source du radon réalisée afin de déterminer l'origine du radon dans l'eau de l'aquifère. Les résultats des mesures des flux d'exhalation du radon des roches ainsi que des concentrations en radium et uranium dans la roche et dans l'eau sont présentés.

I. CARACTERISATION DE LA VARIABILITE SPATIALE DES ACTIVITES VOLUMIQUES DU RADON-222 DANS L'EAU

Les résultats obtenus lors de la première campagne de mesure des activités volumiques du radon dans les eaux de l'aquifère de Ploemeur (mars et avril 2004) ont permis de valider la reproductibilité des données acquises à l'aide des techniques de prélèvement (préleveur mécanique ou pompe) et de mesure que nous avons utilisées.

I.1. Variabilité spatiale des activités volumiques du radon dans l'eau de l'aquifère de Ploemeur.

Les activités volumiques du radon dans l'eau de l'aquifère de Ploemeur ont été mesurées dans l'eau des forages des différents sites étudiés : Kermadoye, Stang-er-Brune, Loyan et la fontaine St-Maudé (Figure III-1).

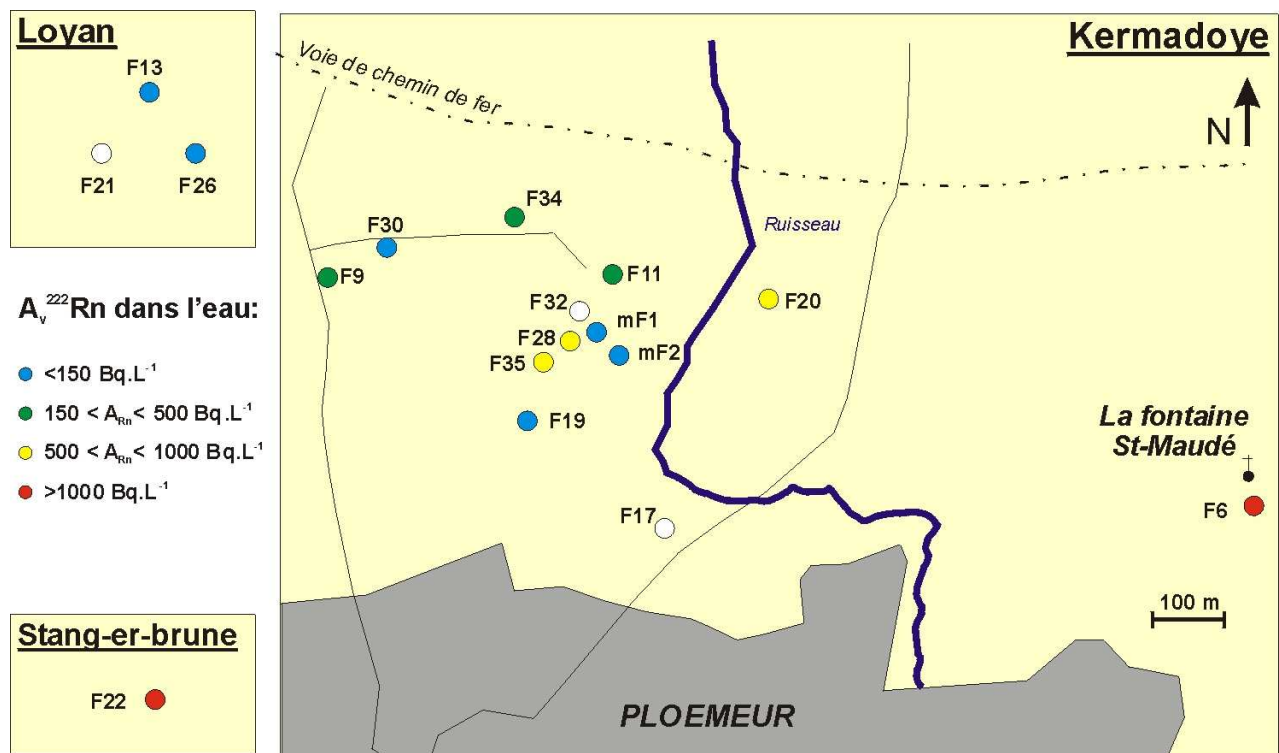


Figure III-1 : Activités volumiques du radon-222 mesurées dans l'aquifère de Ploemeur en Juin 2004 (sites de Kermadoye, la Fontaine St Maudé,, Stang-er-Brune et Loyan). Les points blancs correspondent aux forages non mesurés en juin 2004.

Elles varient dans une gamme de concentrations comprise entre des valeurs inférieures à 10 Bq.L^{-1} dans l'eau du forage F30 (Kermadoye) et 1597 Bq.L^{-1} dans l'eau du forage F22 (Stang-er-Brune). L'ensemble des concentrations mesurées dans les eaux de l'aquifère de Ploemeur au cours des différentes campagnes sont rapportées dans l'annexe 5.

La carte de la Figure III-1 illustre la variabilité spatiale des activités volumiques du radon dans l'eau de l'aquifère de Ploemeur.

I.1.1 Sites de Kermadoye et lieu-dit "la fontaine St-Maudé"

Les concentrations du radon mesurées dans l'eau du forage du lieu-dit "la fontaine St-Maudé" (forage F6) sont présentées avec celles mesurées dans les forages du site de Kermadoye. Ce choix est justifié par la faible distance séparant le forage F6 du forage F20 ($< 1200 \text{ m}$, Figure III-2).

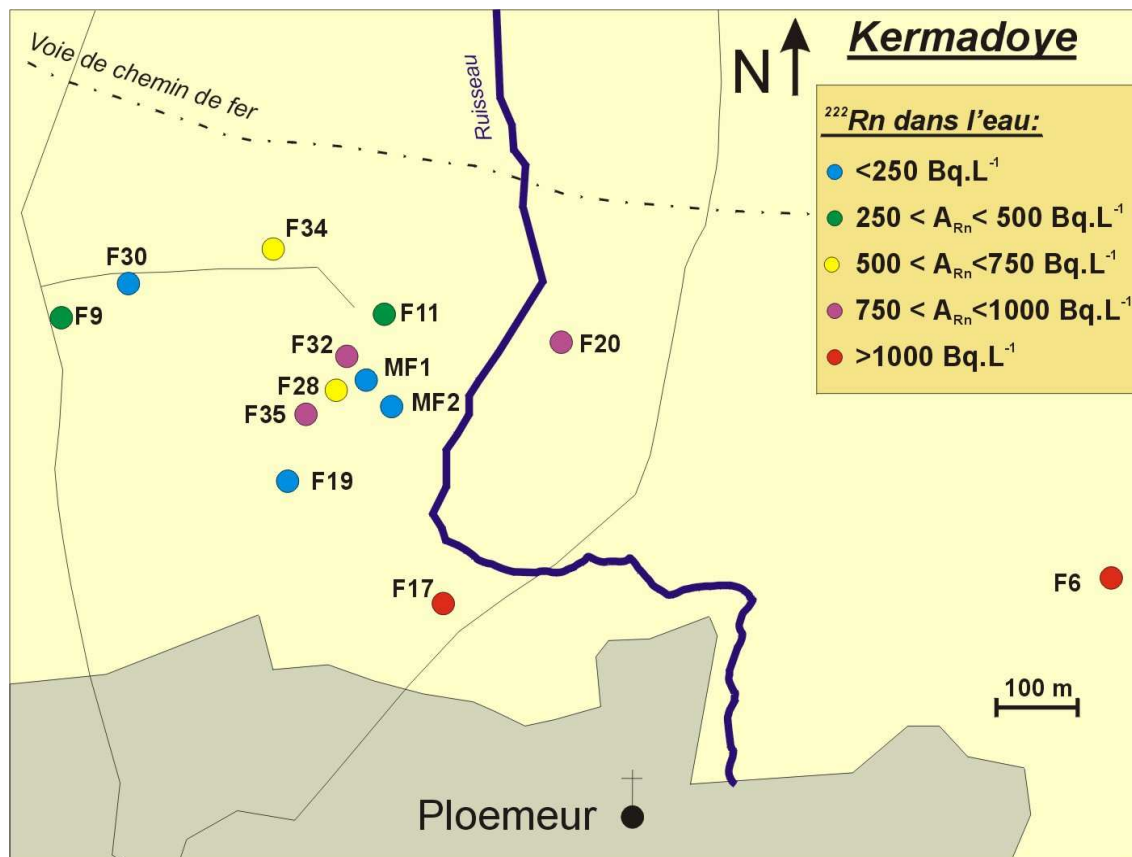


Figure III-2 : Activités volumiques du radon-222 mesurées dans l'aquifère de Ploemeur sur le site de Kermadoye. C'est la moyenne arithmétique des concentrations mesurées dans l'eau aux différentes profondeurs des forages qui a été considérée à l'exception des forages échantillonnés à une profondeur unique. Toutes les concentrations représentées sont celles mesurées en avril 2005 sauf celles des forages F17 et F32 (mai 2005).

Les concentrations en radon mesurées dans l'eau des forages de ce site sont comprises entre 10 Bq.L⁻¹ dans le forage F30 et 1211 Bq.L⁻¹ dans le forage F17.

La forte variabilité spatiale, sur une zone s'étendant sur 2,5 km², des concentrations en radon dans l'eau des forages de ce site est visible sur la carte de la Figure III-2. Dans la description qui suit, pour les forages dans lesquels l'activité volumique du radon a été mesurée à plusieurs profondeurs (F11, F19, F28, F30, F32, F34, et F35), c'est la moyenne arithmétique des concentrations qui a été considérée. Pour les forages dans lesquels une seule activité volumique a été mesurée (mF1, mF2, F9, F20, F17 et F6), c'est cette dernière qui a été prise en compte.

- Les six forages, F11, F19, F30, mF1 et mF2 ont des concentrations moyennes comprises **entre 10 et 500 Bq.L⁻¹**.
- Cinq forages ont des concentrations moyennes comprises **entre 500 et 1000 Bq.L⁻¹** : F20, F28, F32, F34 et F35.
- Deux forages ont des concentrations **supérieures à 1000 Bq.L⁻¹** : F6 (1137 Bq.L⁻¹) et F17 (1211 Bq.L⁻¹). Il ne s'agit pas dans ces deux cas de valeurs moyennes dans le forage puisque ces puits étant caractérisés par une arrivée d'eau unique, ils ont été échantillonnés à une profondeur unique.

Il faut noter que les concentrations mesurées dans les forages mF1 et mF2 sont à comparer aux autres valeurs mesurées dans les autres forages se rappelant que se sont des forages superficiels forés dans le sol et dans les altérites. L'eau de ces piézomètres provient donc d'un réservoir superficiel différent du réservoir plus profond, l'aquifère de Ploemeur, localisé dans la zone de socle fracturé.

La variabilité spatiale des concentrations en radon du site est très bien observée dans un rayon d'environ 100 m autour du forage F28. Dans l'eau des 6 forages localisés dans cette zone, les activités volumiques moyennes du radon varient entre 142 et 929 Bq.L⁻¹.

I.1.2. Site de Stang-er-Brune

Le site de Stang-er-Brune s'étend sur une superficie beaucoup moins grande que celle de Kermadoye puisqu'il présente une surface d'environ 100 m². Cependant, la variabilité spatiale des concentrations en radon dans l'eau est aussi très grande dans cette zone. En effet, la gamme des

activités volumiques du radon dans l'eau des forages est comprise entre 192 et 1597 Bq.L⁻¹ dans le piézomètre P1 et le forage F22 respectivement (Figure III-3).

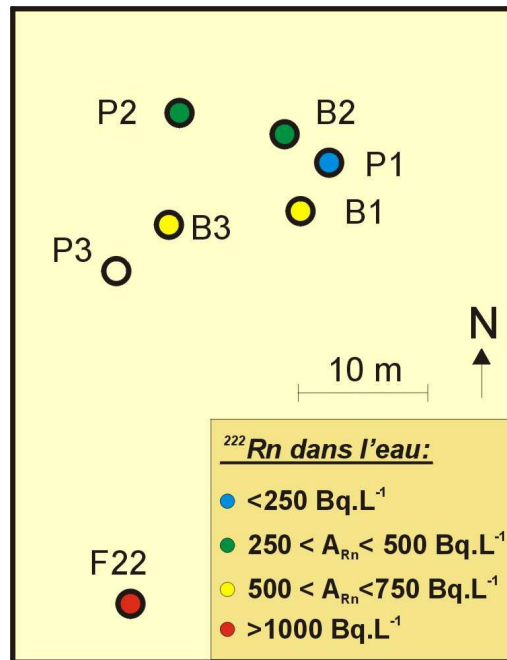
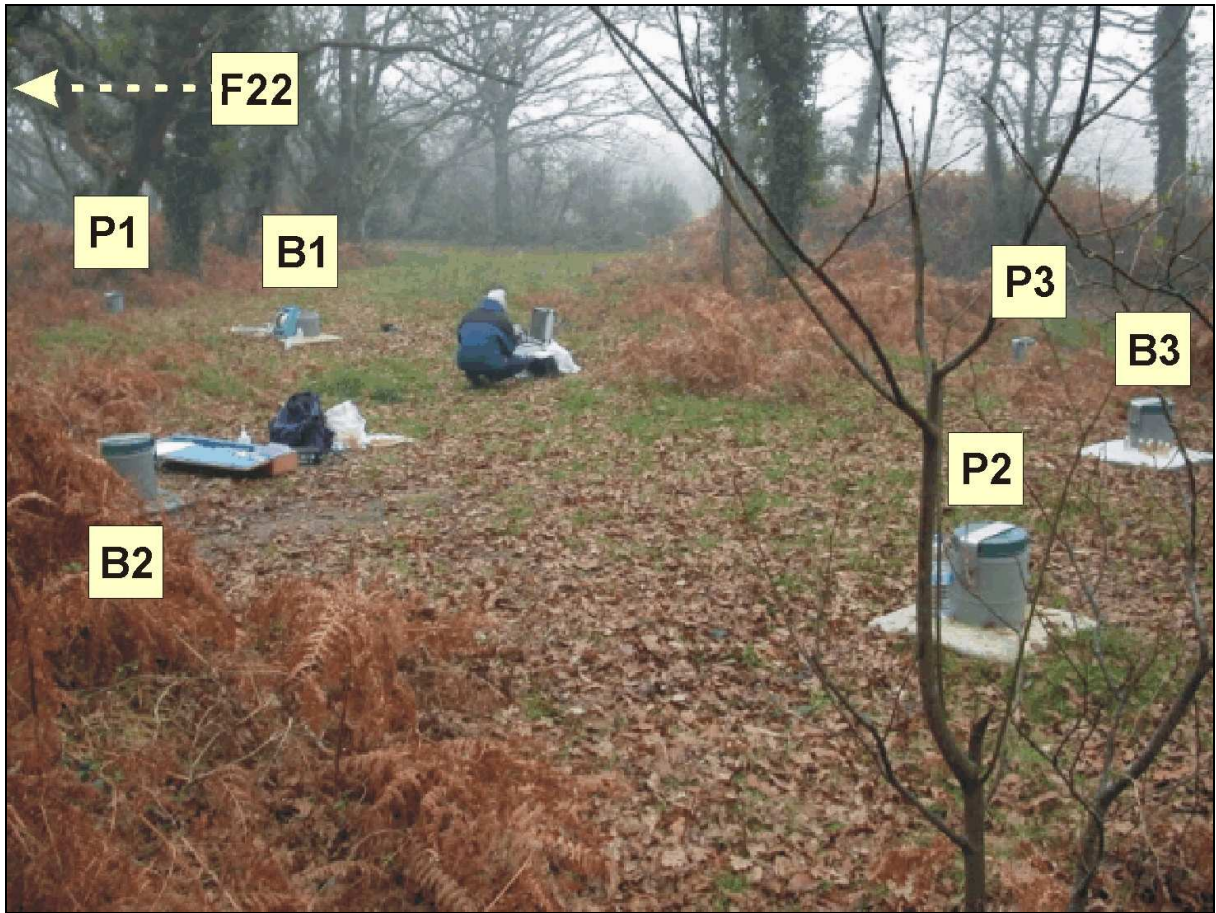


Figure III-3 : Activités volumiques du radon-222 mesurées dans l'aquifère de Ploemeur en décembre 2004 sur le site de Stang-er-Brune. Les valeurs représentées correspondent à la moyenne des concentrations mesurées dans chaque forage.

Les concentrations les plus faibles, 192 et 265 Bq.L⁻¹, ont été mesurées respectivement dans les piézomètres P1 et P2, qui ont été forés dans la couche de sol et dans la partie superficielle des micaschistes très altérés.

Les activités volumiques du radon les plus élevées ont été mesurées dans l'eau du forage F22. En effet, la concentration moyenne est égale à 1412 Bq.L⁻¹. Il est à noter que la lithologie de ce forage est principalement constituée de granite altéré en surface puis de granite très peu fracturé en dessous de 35 m (chapitre II).

En ce qui concerne les forages B1, B2 et B3, les concentrations en radon mesurées sont assez homogènes, avec des valeurs moyennes respectivement égales à 652, 467 et 612 Bq.L⁻¹. Ces valeurs sont donc intermédiaires entre celles des piézomètres P1 et P2 (228 Bq.L⁻¹), forés dans la zone de sol et dans la partie superficielle des micaschistes altérés, et du forage F22 (1412 Bq.L⁻¹), foré dans une zone du granite très peu Ploemeur.

I.1.3. Site de Loyan

Les concentrations en radon de l'eau des trois forages du site de Loyan ont été mesurées en juin 2004. Elles sont relativement faibles et comprises entre une valeur inférieure à la limite de détection de l'appareil de mesure dans le forage F21 et une concentration de 137 Bq.L⁻¹ dans le forage F26. L'activité volumique mesurée dans le forage F13 a une valeur intermédiaire : 36 Bq.L⁻¹.

Les eaux du site de Loyan ont une très forte charge particulière qui provoquait une obturation du verre fritté du système de dégazage du radon contenu dans l'échantillon d'eau. Sans remettre en cause la fiabilité des mesures réalisées, ce phénomène allongeait considérablement la durée et la précision de la mesure des échantillons d'eau réalisées ensuite. Dans les campagnes qui ont suivi celle de juin 2004, il a donc été décidé de ne pas mesurer la concentration dans les forages de ce site et de privilégier les sites majeurs de cet étude : Kermadoye et Stang-er-Brune.

I.2. Variabilité des activités volumiques du radon dans l'eau des forages en fonction de la profondeur.

Une variabilité spatiale importante des activités volumiques du radon est observée parmi tous les forages de l'aquifère de Ploemeur. Cependant, dans certains des forages des sites étudiés, une évolution de la concentration en radon dans l'eau en fonction de la profondeur existe également.

I.2.1 Site de Kermadoye

La variabilité en fonction de la profondeur de l'activité volumique du radon dans l'eau des forages du site de Kermadoye a été mise en évidence lors de deux campagnes de mesures réalisées en juin 2004 et mai 2005 dans les puits pour lesquels la concentration a été mesurée à plusieurs profondeurs. Les activités volumiques mesurées dans les forages mF1, mF2, Pe, F6, F20 et F36 ne sont donc pas évoquées. En effet, dans ces forages la concentration en radon dans l'eau a été mesurée à une profondeur unique.

La Figure III-4 présente l'évolution de la concentration en radon dans l'eau en fonction de la profondeur d'une partie des forages du site. Seuls les forages présentant des variations de concentrations ont été représentés.

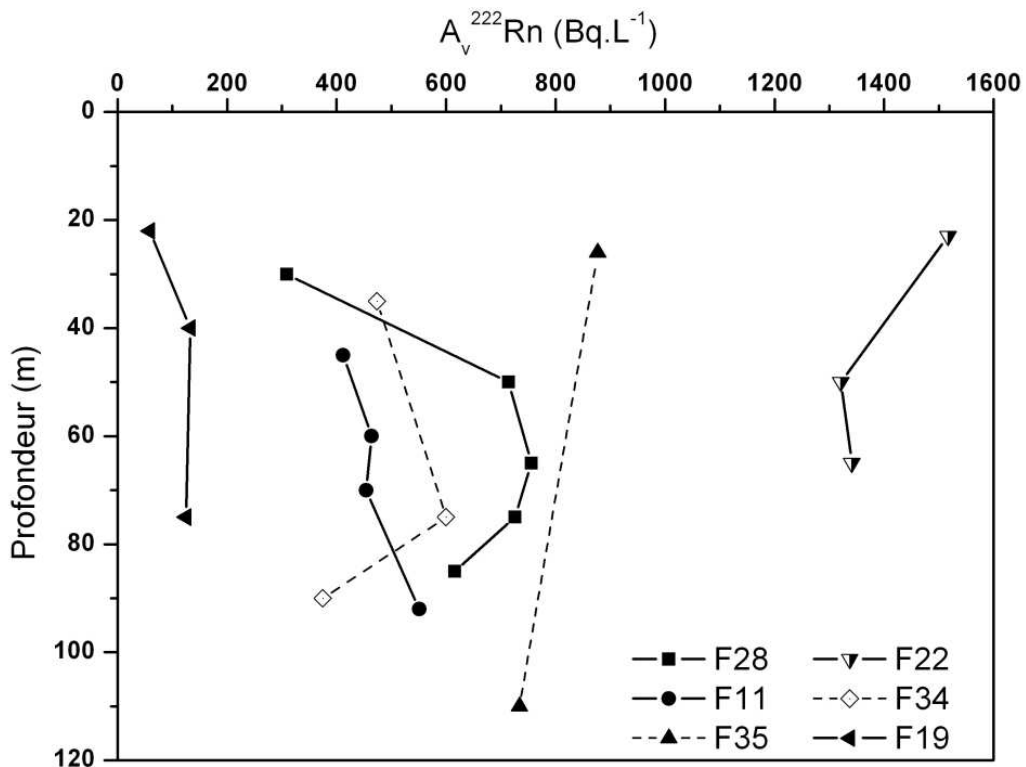


Figure III-4 : Concentrations en radon dans l'eau en fonction de la profondeur pour les forages du site de Kermadoye (résultats de juin 2004).

Selon les forages, l'évolution de l'activité volumique du radon avec la profondeur est différente et plus ou moins importante.

Dans les forages F11 et F19, la concentration en radon dans l'eau augmente légèrement avec la profondeur alors que dans le forage F35 c'est le phénomène inverse qui est observé. Dans le forage

F34, la concentration augmente légèrement jusqu'à environ 80 m avant de diminuer nettement à la base du puits.

L'évolution dans le forage F28 est plus complexe comme l'illustrent les profils de concentration en radon dans l'eau réalisé en octobre 2001 (Figure III-5) et en juin 2004 (Figure III-4). En surface de la colonne d'eau, de 30 m jusqu'à 45 m de profondeur, la concentration en radon dans l'eau est relativement constante et égale à environ 400 Bq.L⁻¹. A 50 m, la concentration atteint une valeur d'environ 700 Bq.L⁻¹, puis d'environ 800 Bq.L⁻¹ à 70 m. En dessous de 70 m, la concentration diminue progressivement pour atteindre des valeurs comprises entre 620 et 700Bq.L⁻¹.

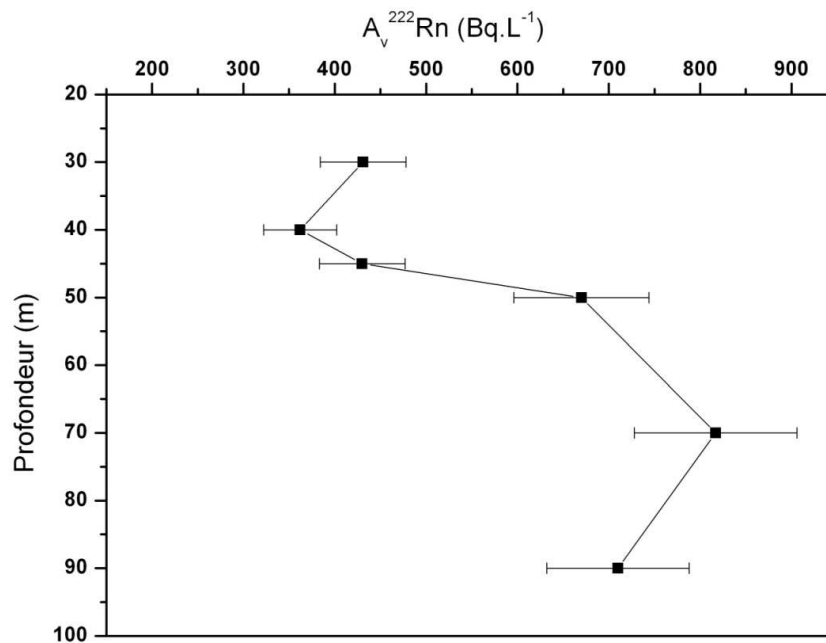


Figure III-5 : Concentrations en radon dans l'eau en fonction de la profondeur dans le forage F28, mesurées en octobre 2001 par l'IRSN.

Les coupes schématiques des forages présentées dans la Figure III-6 donnent un aperçu plus complet des variations de la concentration en radon dans l'eau sur l'ensemble du site de Kermadoye. Ces résultats ont été obtenus au printemps 2005 et sont très proches de ceux en juin 2004.

Ainsi, l'évolution de la concentration en radon dans l'eau déjà mise en évidence en 2004 pour les forages F11, F28 et F35 est confortée par ces données plus récentes.

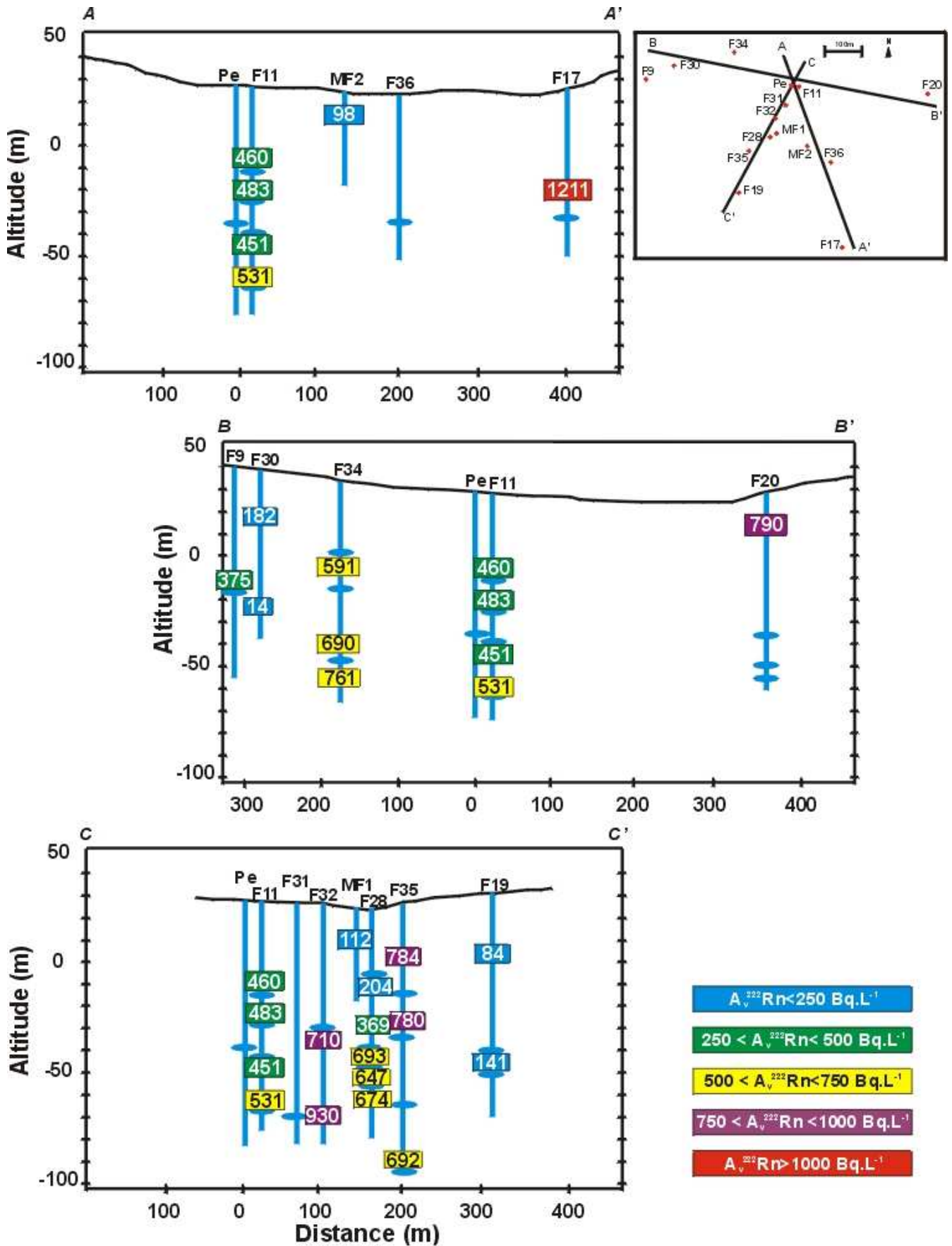


Figure III-6 : Variabilité des concentrations en radon dans l'eau des forages du site de Kermadoye. Les concentrations ont été mesurées en avril 2005 et en mai 2005 pour les forages F17 et F32.

En revanche, dans le forage F34 l'augmentation est constante jusqu'au fond. La diminution observée en juin 2004 en dessous d'une profondeur de 80 m n'apparaît plus dans le profil réalisé en mai 2005. En outre, pour le forage F19, l'activité volumique du radon augmente avec la profondeur : de 84 Bq.L⁻¹ à 65 m, elle atteint 141 Bq.L⁻¹ à 75 m. Cette tendance semble être inverse par rapport aux résultats de 2004.

Dans le forage F32 (non caractérisé en 2004), dans lequel l'activité volumique du radon dans l'eau est forte, on observe une nette augmentation, supérieure à 200 Bq.L⁻¹, entre 60 et 85 m.

Dans le forage F19, dans lequel des concentrations du radon dans l'eau beaucoup plus faibles ont été mesurées, une évolution a également été mise en évidence. L'activité volumique du radon dans l'eau augmente avec la profondeur : de 84 Bq.L⁻¹ à 65 m, elle atteint 141 Bq.L⁻¹ à 75 m.

I.2.2. Site de Stang-er-Brune

La Figure III-7 présente l'évolution de la concentration en radon en fonction de la profondeur dans l'eau des forages du site de Stang-er-Brune.

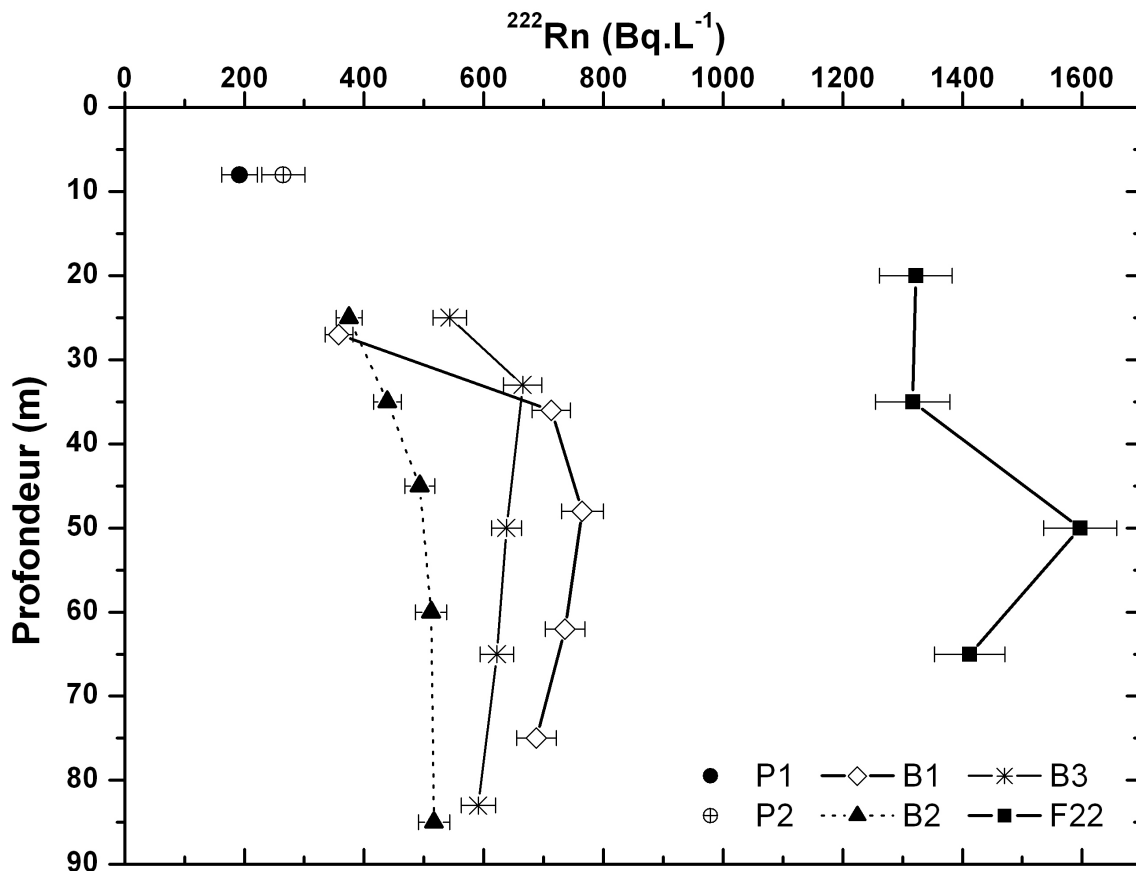


Figure III-7 : Concentrations en radon dans l'eau en fonction de la profondeur dans les forages du site de Stang-er-Brune (résultats de décembre 2004).

Les variations de la concentration en radon dans la colonne d'eau des forages de ce site sont moins importantes que celles observées dans les forages du site de Kermadoye.

Le forage B1 est celui qui présente l'évolution la plus marquée. En effet, la concentration en surface est de 358 Bq.L⁻¹ puis augmente très fortement vers 35 m dans la zone de contact entre les micaschistes et le granite (713 Bq.L⁻¹). Elle tend ensuite à augmenter légèrement jusqu'à environ 50 m de profondeur (765 Bq.L⁻¹) pour ensuite diminuer légèrement à la base du forage (688 Bq.L⁻¹).

Dans le forage B2, l'activité volumique du radon tend à augmenter avec la profondeur, de 375 à 517 Bq.L⁻¹. Toutefois, elle reste relativement constante en dessous de 35 m, avec des variations inférieures à 40 Bq.L⁻¹.

Dans le forage B3, l'activité volumique du radon augmente légèrement jusqu'à environ 30 m (de 543 à 665 Bq.L⁻¹) puis diminue progressivement jusqu'à la base du forage pour atteindre une concentration de 591 Bq.L⁻¹.

Dans le forage F22, la concentration en radon atteint 1597 Bq.L⁻¹ à 50 m de profondeur. Cette valeur correspond à la concentration maximale mesurée dans l'aquifère de Ploemeur, tous sites étudiés confondus. On peut noter que dans ce puits, l'activité volumique du radon est relativement constante en surface (entre 20 et 35 m) et d'environ 1320 Bq.L⁻¹. La mesure réalisée à 65 m indique une valeur légèrement inférieure à celle mesurée à 50 m (1412 Bq.L⁻¹).

I.3. Variabilité temporelle des activités volumique du radon dans l'eau de l'aquifère de Ploemeur.

L'étude de la variabilité temporelle de la concentration en radon dans l'aquifère de Ploemeur a été réalisée en comparant les résultats obtenus au cours des campagnes de mesures réalisées pendant cinq années. Aucune chronique de la concentration en radon dans l'eau n'ayant été effectuée, il faut noter que les interprétations qui suivent résultent de la comparaison de mesures réalisées à un intervalle moyen de 5 mois.

Avant de comparer des activités volumiques du radon mesurées dans l'eau à des périodes différentes, il est également important de préciser que le bilan hydrique de l'aquifère a été particulier ces deux dernières années. En effet, en octobre 2004 et janvier 2006 le taux de

précipitation a été très faible. L'évolution du niveau piézométrique dans les forages du site étudié (Figure III-8) traduit cette perturbation du régime hydrique.

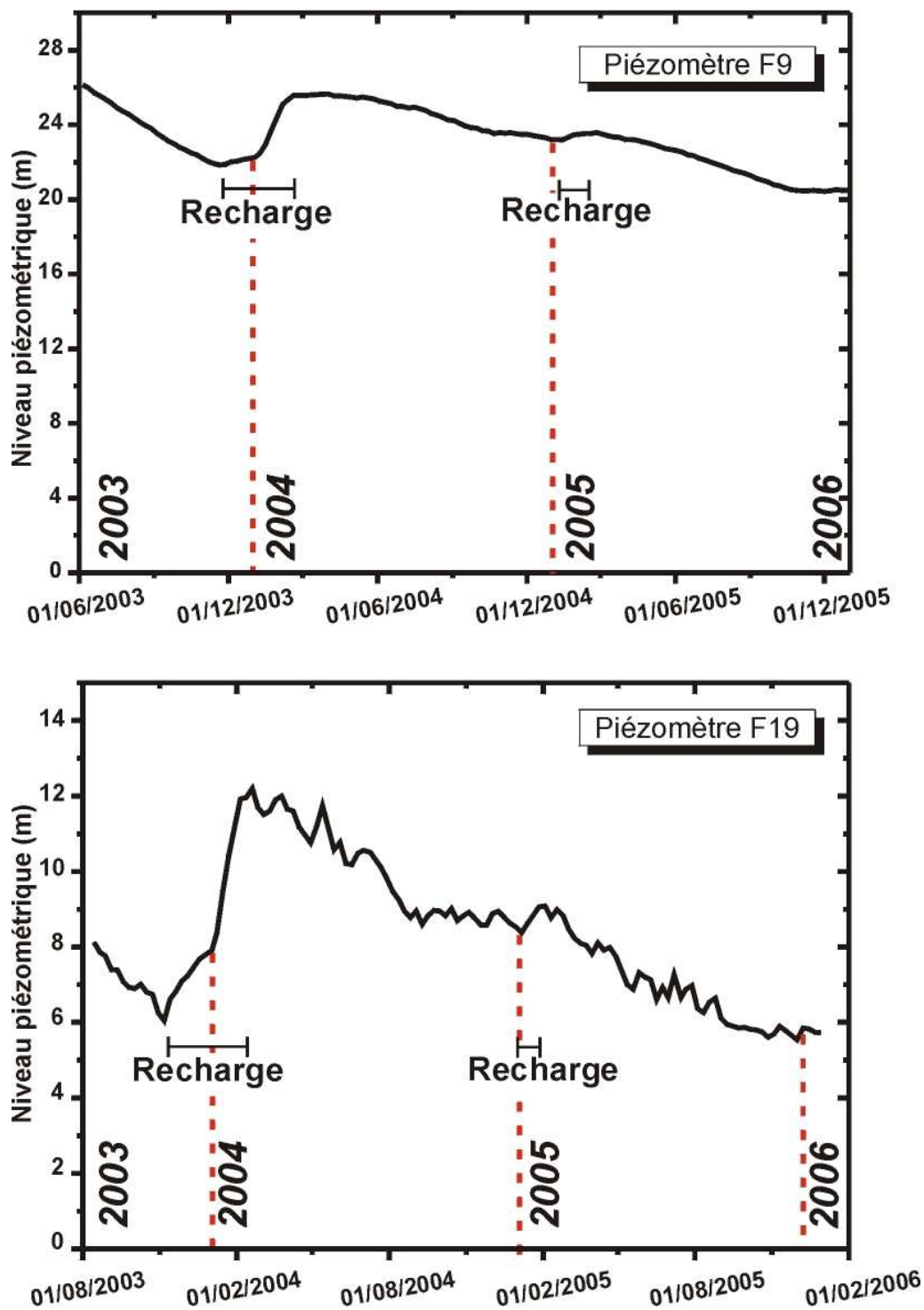


Figure III-8 : Evolution du niveau piézométrique dans les forages F9 et F19 entre août 2003 et février 2006. La même tendance est observée dans la majorité des autres forages des sites de Kermadoye et Stang-er-Brune.

Au cours de l'hiver 2003-2004, le taux de précipitation a été suffisamment important pour permettre la recharge de l'aquifère qui s'est traduit par une augmentation du niveau piézométrique dans les forages. En revanche entre 2004 et 2006, les faibles précipitations n'ont pas permis une recharge significative de l'aquifère conduisant à une diminution progressive du niveau de l'eau dans ce dernier. Les campagnes de mesures réalisées au cours de ce travail ne permettent donc pas d'étudier l'influence de l'alternance des phases de recharge et de décharge de l'aquifère sur la concentration en radon des eaux souterraines, étant donné que le niveau piézométrique dans les forages des sites a été soumis à une décroissance continue.

Toutefois, la baisse du niveau piézométrique global de l'aquifère entraîne une diminution des vitesses de circulation de l'eau dans les fractures. La comparaison des données acquises au cours des différentes campagnes de mesures effectuées est susceptible d'apporter des informations sur l'influence des changements du débit de l'eau dans les fractures sur la concentration en radon dans l'eau de l'aquifère.

I.3.1. Site de Kermadoye

Lors des deux campagnes de mesures de la concentration en radon réalisées sur le site de Kermadoye en juin 2004 et en avril 2005, des échantillons d'eau ont été prélevés dans les mêmes forages à des profondeurs identiques. La comparaison des concentrations mesurées à un an d'intervalle permet d'évoquer la variabilité temporelle de l'activité volumique du radon dans l'eau de l'aquifère.

Les résultats obtenus mettent en évidence, soit une stabilité, soit un accroissement des activités volumiques du radon dans l'eau au cours de l'année écoulée (Figure III.9).

Ainsi, l'examen des concentrations mesurées dans les forages ne présentant pas de circulation d'eau verticale (mF2, F6, F9, F19, F20, F17 et F30) révèle des comportements différents selon les puits. La différence entre les concentrations mesurées en 2004 et 2005 est négligeable dans certains forages (F9, F17 et F6). En revanche, une nette augmentation a été observée dans les forages F19 à 75 m de profondeur ainsi que dans les forages F20 et mF2. Dans ces forages toute la gamme des activités volumiques mesurées sur le site de Kermadoye est représentée depuis des concentrations faibles (forage F30 : 25 Bq.L^{-1}), jusqu'à des valeurs élevées (forage F6 : 1100 Bq.L^{-1}).

Dans les forages dans lesquels des mesures ont été réalisées à plusieurs profondeurs et qui présentent des flux hydrauliques verticaux, on trouve à nouveau deux situations opposées. Une

augmentation est visible dans les forages F34 aux profondeurs de 35, 75 et 90 m et F35 à 110 m. Cependant, dans le forage F11, l'activité volumique du radon dans l'eau reste inchangée entre 2004 et 2005 et ce, quelque soit la profondeur échantillonnée.

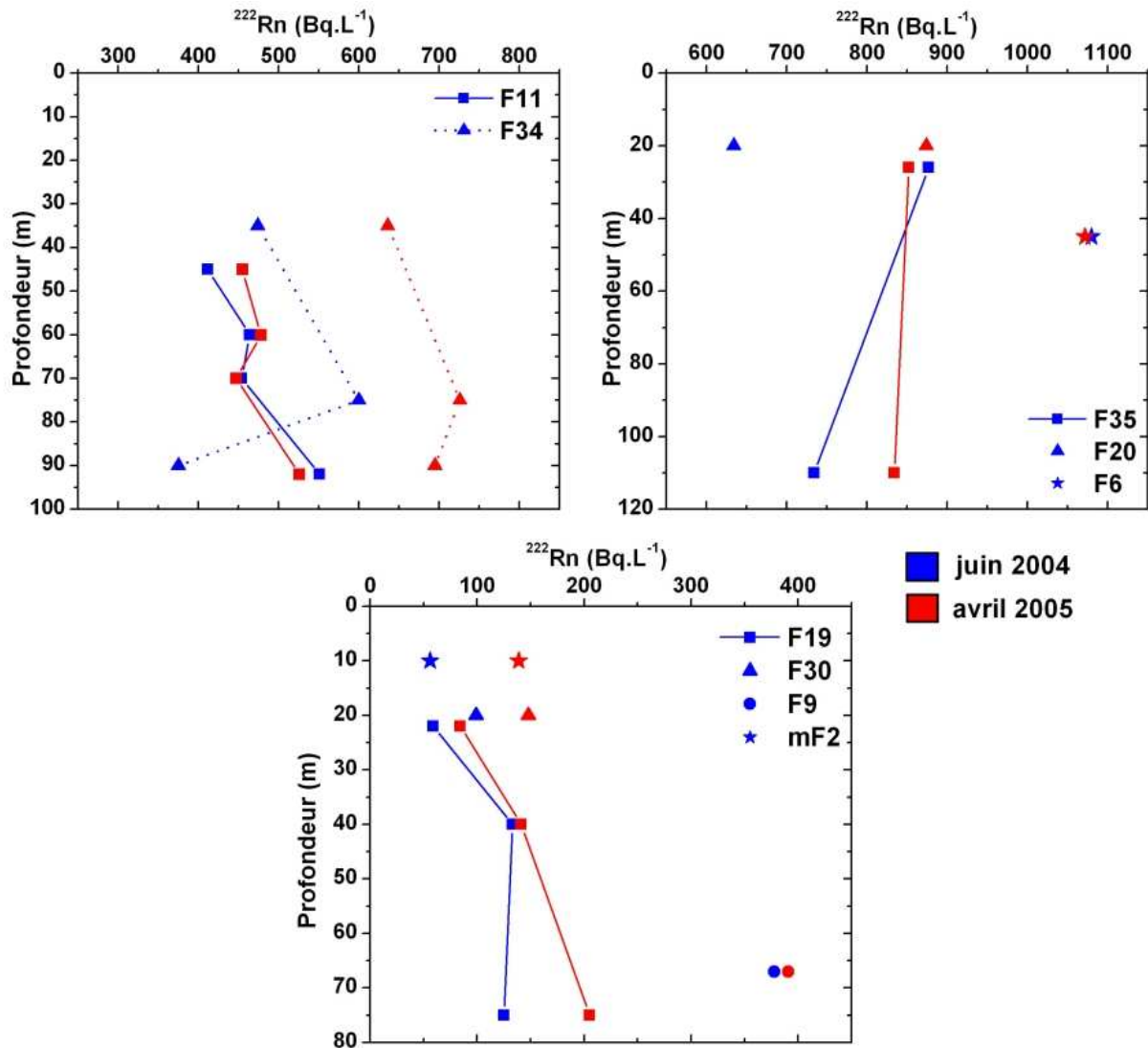


Figure III-9 : Evolution de la concentration en radon dans l'eau dans les forages du site de Kermadoye entre juin 2004 et avril 2005.

Les différences de concentrations entre deux années sont finalement très variables selon les forages. En effet, deux forages aux caractéristiques hydrogéologiques relativement proches, F34 et F11, présentent des variations opposées. Dans le forage F34, la concentration augmente à toutes les profondeurs alors que dans le forage F11, il n'y a aucune variation de la concentration avec la profondeur entre 2004 et 2005. L'accroissement dans le forage F34 est compris entre 162 Bq.L^{-1} à 35 m et 320 Bq.L^{-1} à 90 m. Dans le forage F11, on note juste une légère augmentation de 43 Bq.L^{-1} en surface du forage.

Parmi les forages étudiés, le forage F28 est celui dont l'activité volumique du radon dans l'eau a été la mieux caractérisée. En effet, la concentration a été mesurée dans l'eau à plusieurs profondeurs en octobre 2001, en mars et juin 2004, ainsi qu'en avril 2005 (Figure III-10).

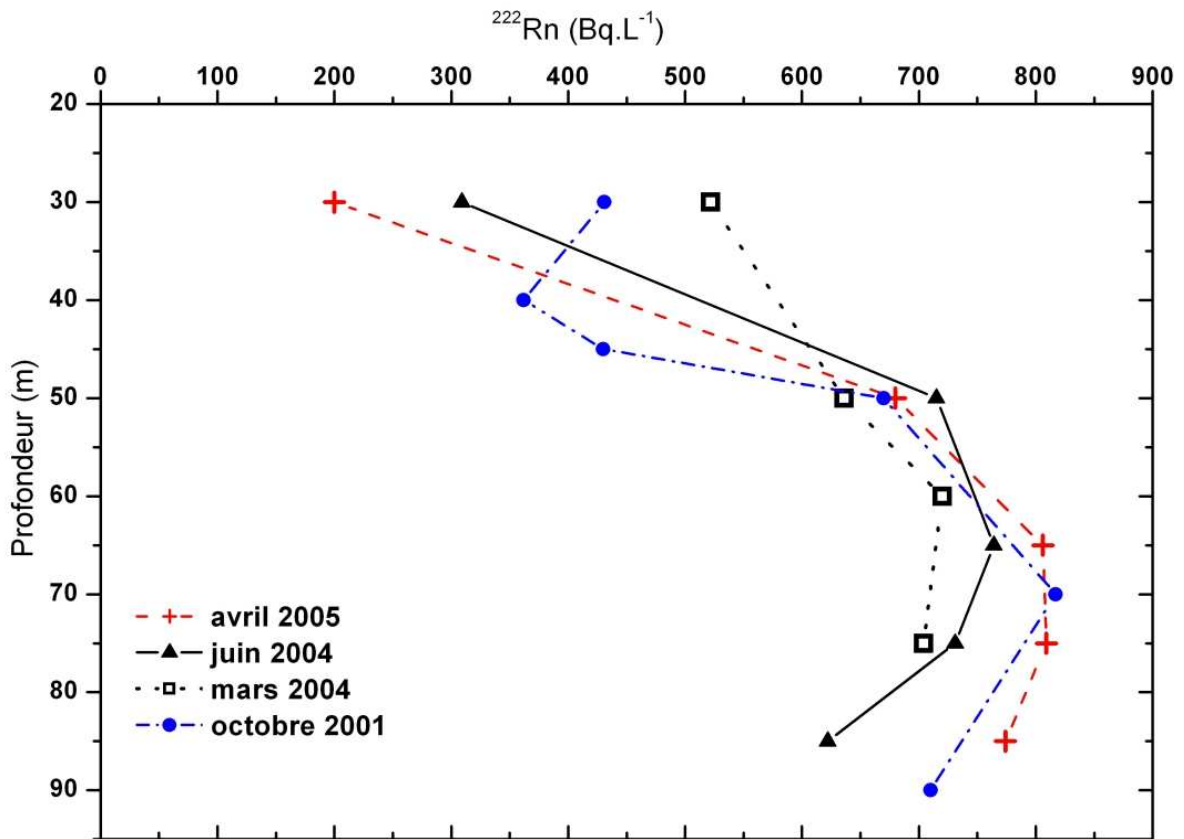


Figure III-10 : Comparaison des résultats de mesure de la concentration en radon dans l'eau du forage F28 du site de Kermadoc obtenus en octobre 2001, mars et juin 2004 et mai 2005.

Les profils des activités volumiques du radon mesurés dans l'eau du forage F28 à différentes périodes au cours de ces 3 années permettent tout d'abord la mise en évidence d'une variabilité importante dans l'eau dans la partie superficielle de l'aquifère. En effet, à 30 m de profondeur, on note un écart de l'activité volumique mesurée dans l'eau supérieur à 300 Bq.L^{-1} ; la concentration en radon dans l'eau chutant de 522 Bq.L^{-1} en mars 2004 à seulement 200 Bq.L^{-1} en avril 2005. L'influence des changements saisonniers, notamment des taux d'évaporation et de précipitation dans la zone altérée, permet éventuellement d'interpréter de telles variations à cette profondeur. En effet, des fluctuations similaires à des profondeurs proches de la surface libre d'un aquifère et liées à l'influence du taux de précipitation ont été observées dans d'autres études (Fukui, 1985; Hamada, 2000). Le mois de mars, période à laquelle la concentration la plus élevée a été mesurée, correspond à la fin de la période théorique de recharge de l'aquifère, phase qui débute au mois d'octobre. Pendant la recharge, l'eau de pluie qui s'infiltre dissout les gaz contenus dans les pores du sol.

L'eau s'enrichit donc en radon au cours de son infiltration, ce qui expliquerait l'augmentation de la concentration en radon observée dans l'eau de surface entre le début et la fin de la période de recharge. A l'inverse, lorsque le taux d'évaporation devient plus important que le taux de précipitation, on peut s'attendre à une diminution de la concentration en radon de l'eau du fait d'une augmentation du dégazage du radon dissous dans l'eau. Cette hypothèse est vérifiée par la concentration mesurée dans l'eau en juin 2004 (309 Bq.L^{-1}). En effet, le mois de juin fait partie de la période de l'année où le taux d'évaporation est le plus fort. La concentration en radon mesurée en avril 2005 dans l'eau du forage F28, à une profondeur de 30 m, conforte cette hypothèse. La faible teneur en radon dans l'eau (200 Bq.L^{-1}) pourrait être liée à la très faible recharge de l'aquifère de Ploemeur au cours de l'année 2005.

Aux autres profondeurs, la variabilité temporelle du radon dans l'eau est plus réduite. Ainsi, il apparaît qu'entre octobre 2001 et avril 2005 la concentration est relativement stable à des profondeurs comprises entre 50 et 65 m (entre 636 et 715 Bq.L^{-1} à 50 m et entre 720 et 806 Bq.L^{-1} à 65 m). La comparaison des concentrations mesurées à 50 m en mars 2004 et avril 2005 (même période du cycle hydrologique annuel) fait apparaître un écart d'uniquement 45 Bq.L^{-1} à cette profondeur. En dessous de 65 m, l'activité volumique du radon dans l'eau montre des fluctuations plus importantes. Les variations de concentration sont d'environ 115 Bq.L^{-1} à 75 m et de 150 Bq.L^{-1} à 85 m. Cependant, la variabilité des concentrations n'atteint pas celle observée dans la partie superficielle de la colonne d'eau du forage. En effet, la différence la plus grande entre les concentrations mesurées à ces profondeurs est d'environ 150 Bq.L^{-1} alors qu'elle est d'environ 350 Bq.L^{-1} en surface du forage.

I.3.2. Site de Stang-er-Brune

Les deux campagnes de mesures de la concentration en radon dans l'eau du site de Stang-er-Brune ont été réalisées en décembre 2004 et en mai 2006. Lors de ces deux périodes, des échantillons d'eau ont été prélevés dans les forages B1, B2, B3 et F22.

La campagne de décembre 2004, correspondant à la première caractérisation des eaux du site, a conduit à la réalisation du plus grand nombre de mesures. Ainsi, en fonction du nombre d'arrivées d'eau identifiées dans chaque forage, nous avons prélevé des échantillons d'eau à 4 profondeurs différentes dans les forages B1, B2 et B3 et à 3 profondeurs dans le forage F22.

Les concentrations mesurées en mai 2006 ont été couplées à des expérimentations d'essais de pompages dans les forages du site de Stang-er-Brune. Avant de débiter les tests de pompages, la concentration en radon dans l'eau des forages B1, B2, B3 et F22 a été mesurée en conditions de circulation de l'eau ambiantes, c'est-à-dire en conditions de circulations naturelles uniquement induites par les différences de charge hydraulique en différents points de l'aquifère. Par rapport à décembre 2004, le nombre de points d'échantillonnage a été réduit à 3 pour les forages B1, B2, B3 et à 2 pour le forage F22.

Lors de ces deux campagnes nous avons employé deux méthodes de mesure du radon dans l'eau différentes car les fréquences de prélèvement des échantillons d'eau liées aux objectifs des campagnes étaient différentes. Ainsi, en décembre 2004, nous avons utilisé la méthode de mesure par chambre d'ionisation. Elle permet d'analyser environ un échantillon d'eau par heure. De plus, le matériel employé est peu encombrant et peut donc être transporté facilement. En mai 2006, nous avons choisi d'utiliser la méthode des fioles scintillantes car le suivi de la concentration en radon dans l'eau lors des essais de pompage nécessitait une fréquence de prélèvement et d'analyse des échantillons d'eau beaucoup plus grande. Cette méthode permet de prélever un échantillon d'eau toutes les 6 minutes car l'intervalle de temps minimal entre deux mesures est déterminé par le temps de comptage des fioles. Cette technique de mesure est donc plus adaptée au suivi des effets de pompages dans les puits car la fréquence de prélèvement des échantillons d'eau est plus grande.

Deux différences principales apparaissent si l'on compare les résultats de décembre 2004 et ceux de mai 2006 (Figure III-11).

Premièrement, une nette diminution des concentrations en radon dans l'eau est mise en évidence dans les forages B1, B2, B3 et F22. Entre décembre 2004 et mai 2006, les écarts de concentration en radon dans l'eau sont compris entre 140 et 200 Bq.L⁻¹ dans les forages B1 et B2, entre 130 et 150 Bq.L⁻¹ dans B3 et la différence est d'environ 300 Bq.L⁻¹ dans F22. Les seules exceptions concernent les concentrations mesurées en surface à 25 m de profondeur dans les forages B1 et B2. Dans le forage B1, la concentration augmente nettement de 172 Bq.L⁻¹ à cette profondeur alors que dans le forage B2, elle reste stable.

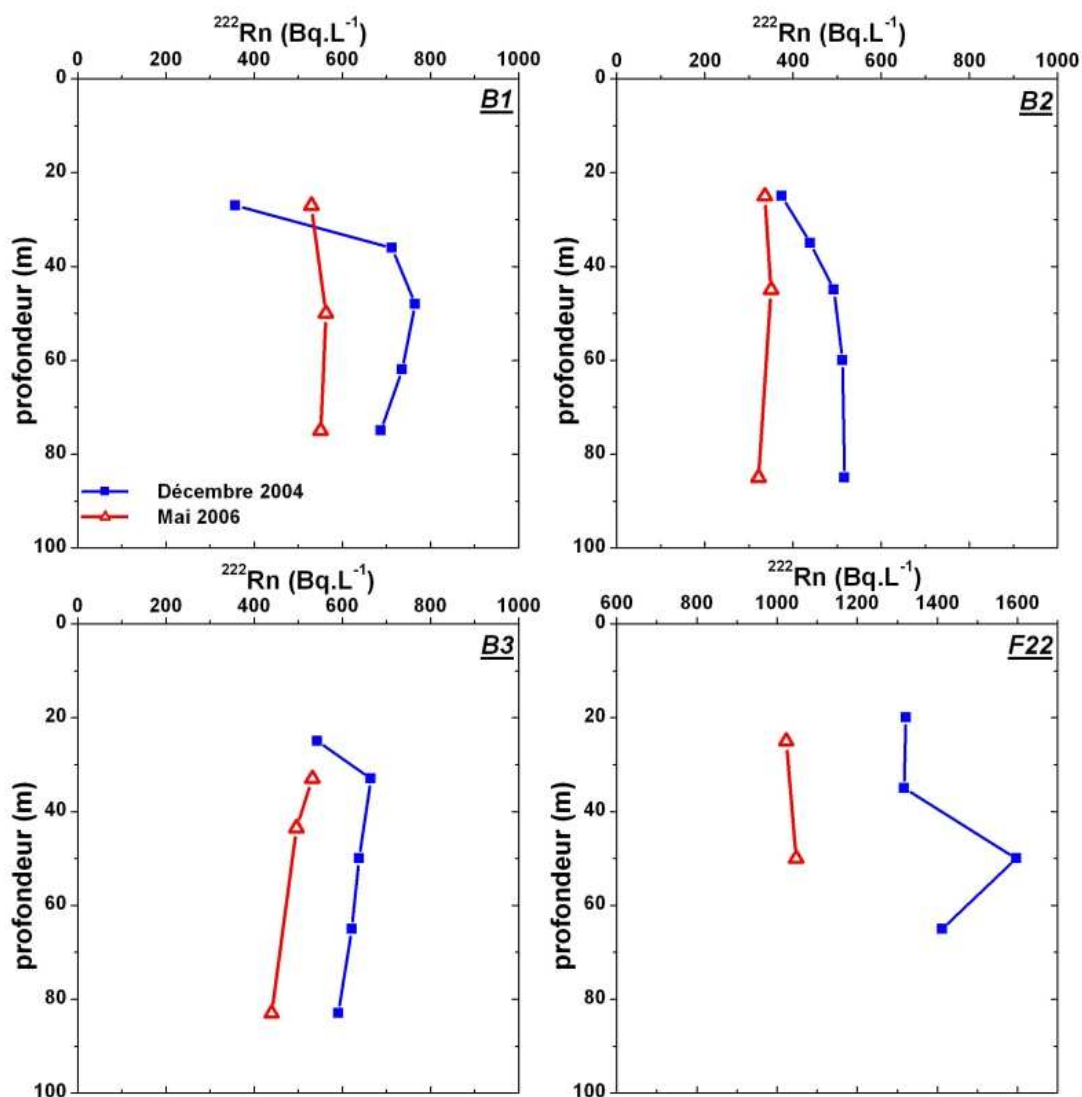


Figure III-11 : Comparaison de la concentration en radon mesurée dans l'eau des forages du site de Stang-er-Brune en décembre 2004 et mai 2006.

Deuxièmement, une atténuation des variations verticales est visible dans tous les forages entre décembre 2004 et mai 2006. Elle est parfaitement nette pour les forages B1 et B2. En décembre 2004, ces deux forages étaient ceux qui présentaient les variations verticales de concentration en radon les plus marquées. En mai 2006, les variations de concentrations en radon dans la colonne d'eau des forages B1, B2, B3 et F22 étaient faibles : respectivement de 33, 28, 92 et 25 Bq.L⁻¹.

La comparaison des concentrations du radon dans l'eau du site de Stang-er-Brune mesurées au cours de ces deux campagnes ne permet cependant pas de déterminer si les écarts observés sont liés aux variations saisonnières de l'aquifère ou bien à des modifications à plus long terme du niveau de la nappe. En effet, les deux campagnes de mesure se sont déroulées à deux saisons différentes (hiver

et printemps) et à un intervalle de 18 mois, au cours d'une période marquée par un défaut de précipitations ayant engendré une nette diminution du niveau piézométrique global de l'aquifère.

II. ORIGINE DU RADON DANS LES EAUX SOUTERRAINES : CARACTERISATION DU TERME SOURCE DU RADON

II.1. Terme source du radon dans la roche

II.1.1. Activité massique du radium-226 de la roche

L'activité massique du radium dans la roche a été mesurée (chapitre II, §II.5.1) sur des échantillons de roches extraits de deux carottes issues des forages B1 (Stang-er-Brune) et D2 (Le Couregant) (Tableau III.1). La lithologie du forage B1 est constituée de micaschistes et de granite et celle du forage D2 uniquement de granite (Figure III-12) (Annexe 1).

Tableau III.1 : Activités massiques du radium-226 mesurées dans les échantillons de roches des carottes extraites des forages B1 (Stang-er-Brune) et D2 (Le Couregant).

Forage	Echantillon	lithologie	Profondeur (m)	$A_m^{226}\text{Ra}$ (Bq.kg ⁻¹)
B1 Stang-er- Brune	C2-5	micaschistes fracturés	13,5	93 ± 11
	C5-23	micaschistes sains	27,5	88 ± 10
	C9-20	micaschistes fracturés	36	50 ± 6
	C13-8a	granite oxydé	48,5	136 ± 16
	C13-8b	granite sain	48,5	208 ± 24
	C17-8	granite sain	60	227 ± 26
D2 Le Couregant	C1-10	granite oxydé	1	109 ± 13
	C2-7	granite	4	73 ± 9
	C4-7	granite oxydé	11,5	160 ± 18
	C4-10	granite	12	178 ± 21

La gamme de concentration en radium mesurée dans les micaschistes s'étend de 50 à 93 Bq.kg⁻¹ avec une moyenne de 77 Bq.kg⁻¹. Les concentrations en radium de l'échantillon prélevé dans la partie altérée (profondeur : 13,5 m) et celui situé dans la partie saine des micaschistes (profondeur : 27,5 m) sont très proches, respectivement 93 et 88 Bq.kg⁻¹. L'altération ne semble donc pas avoir eu d'influence sur l'activité massique des échantillons. En revanche, l'échantillon prélevé plus en

profondeur (36 m) à proximité de la zone de contact entre les micaschistes et le granite est plus pauvre en radium, la concentration de ce dernier étant de 50 Bq.kg⁻¹.

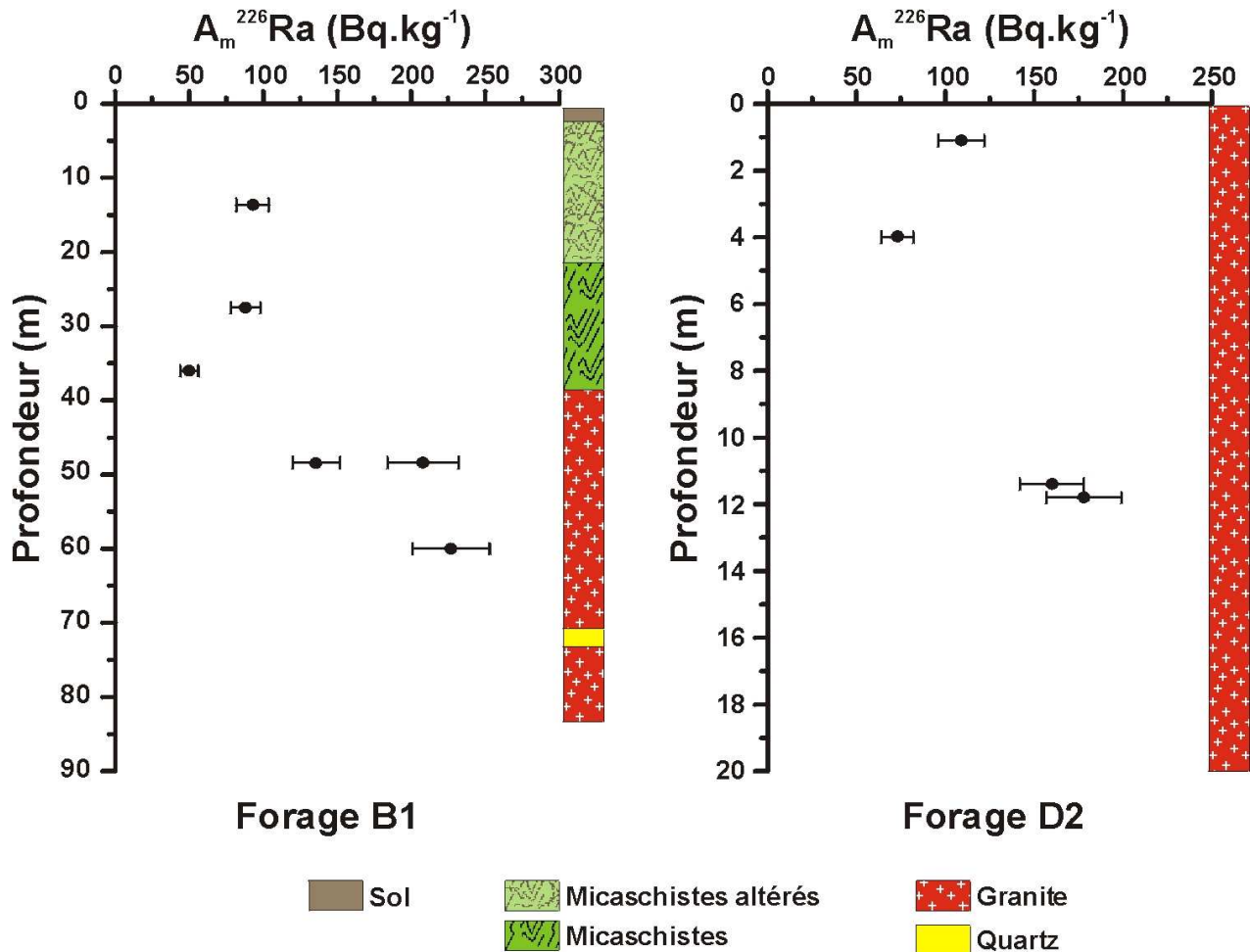


Figure III-12 : Evolution de l'activité massique du radium dans la roche en fonction de la profondeur et de la géologie. Les échantillons de roches sont extraits des forages carottés B1 (Stang-er-Brune) et D2 (Le Couregant).

Les activités massiques du radium mesurées dans le granite du forage de Stang-er-Brune sont comprises entre 136 et 227 Bq.kg⁻¹ avec une moyenne de 190 Bq.kg⁻¹. Celles mesurées dans le granite du Couregant s'étendent de 73 à 178 Bq.kg⁻¹ avec une moyenne de 130 Bq.kg⁻¹. La moyenne des concentrations en radium mesurées sur l'ensemble des échantillons granitiques des deux forages est de 156 Bq.kg⁻¹.

La variabilité des activités massiques du radium mesurées dans les échantillons de granite est assez importante. Les concentrations sont nettement plus élevées dans les échantillons prélevés à Stang-er-Brune (activité massique moyenne : 190 Bq.kg⁻¹) que dans ceux prélevés au Couregant (activité massique moyenne : 130 Bq.kg⁻¹). Les échantillons de granite situés dans la partie

superficielle de la carotte du Couregant ont des activités massiques du radium (109 et 73 Bq.kg^{-1}) proches de celles mesurées dans les micaschistes de Stang-er-Brune.

Les forages étudiés étant tous situés à proximité du contact granite/micaschistes, les échantillons de granite prélevés à Stang-er-Brune semblent plus représentatifs de la roche encaissante de la zone de l'aquifère située à Kermadoye que ceux prélevés au Couregant. Par conséquent, dans l'objectif de caractériser le terme source du radon dans la roche de l'aquifère de Ploemeur, on peut faire l'hypothèse que les activités massiques du radium mesurées dans les roches du forage B1 sont représentatives de celles des autres forages des sites de Stang-er-Brune et de Kermadoye.

II.1.2. Flux d'exhalation du radon de la roche

Le flux d'exhalation du radon a été mesuré sur six échantillons (suivant la méthode exposée dans le chapitre 2, §II.3) prélevés sur la carotte extraite du forage B1 du site de Stang-er-Brune (Tableau III.2). Nous avons sélectionné deux échantillons de micaschistes et quatre de granite afin de disposer de lithologies représentatives des différents états de fracturation et d'altération des roches. Ces roches sont donc susceptibles de présenter des porosités et des activités massiques en radium variables, facteurs identifiés comme influençant le flux d'exhalation du radon de la roche (Chapitre I, §III.1).

Tableau III.2 : Flux d'exhalation mesurés sur les échantillons de roches sélectionnés sur la carotte extraite du forage B1 : les échantillons C20 et C23 sont composés de plusieurs sous-échantillons provenant d'une zone fracturée.

Echantillon	Lithologie	Profondeur (m)	Flux d'exhalation ($\text{mBq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$)
C5	micaschistes sains	26,5	$0,9 \pm 0,2$
C9	micaschistes fracturés	34,5	$0,5 \pm 0,4$
C13	granite avec marques d'oxydation	48	$1,2 \pm 0,5$
C17	granite sain	60	$0,9 \pm 0,3$
C20 (fracture)	granite très fracturé	69	$0,5 \pm 0,2$
C23 (fracture)	granite très fracturé avec des marques d'oxydation	79	$1,3 \pm 0,4$

Parmi les échantillons de granite, deux sont composés de plusieurs sous-échantillons prélevés à des profondeurs correspondant à des zones intensément fracturées. L'échantillon C20 est un granite fracturé qui ne présente pas de marques d'altération. L'échantillon C23 est un granite très fracturé qui possède des traces d'oxydation et d'altération. La différence de faciès observé dans le granite de ces deux zones fracturées est probablement liée à la circulation d'eau dans les fractures. Ainsi,

l'échantillon C23 proviendrait d'une zone fracturée dans laquelle circulerait de l'eau. Les marques d'altération et d'oxydation trouveraient ainsi leur explication dans les interactions eau/roche se produisant dans un tel système. Cette hypothèse est renforcée par la présence dans le forage B1 d'une arrivée d'eau importante à cette profondeur.

Selon le Tableau III.2, les flux d'exhalation mesurés sur les micaschistes sont de 0,5 et 0,9 mBq.m⁻².s⁻¹. Plus un échantillon est fracturé et a une porosité importante, plus le transport du radon dans l'échantillon est rapide. Il est donc prévisible qu'un échantillon de roche plus altéré et fracturé ait un flux d'exhalation plus important. Or c'est l'échantillon de micaschistes le plus fracturé (C9) qui présente le flux d'exhalation le plus faible. Cependant, c'est aussi celui qui a la concentration en radium la plus basse (§II.1.1). Elle est presque deux fois plus faible que celles mesurées sur les micaschistes non fracturés.

Les flux d'exhalation mesurés sur les échantillons de granite sont légèrement plus importants et compris entre 0,5 et 1,3 mBq.m⁻².s⁻¹. Comparés à la gamme de flux d'exhalation du radon des granites disponible dans la littérature, c'est-à-dire de 0,08 à 9 mBq.m⁻².s⁻¹ Andrews et al., 1986; Carrera et al., 1997; Chao & Tung, 1999; Al-Jarallah, 2001; Keller et al., 2001; Lee et al., 2001, les flux mesurés sont faibles, malgré des concentrations en radium des roches élevées. Le flux le plus élevé, 1,3 mBq.m⁻².s⁻¹, a été mesuré sur l'échantillon C23 prélevé à la profondeur d'une zone fracturée où l'eau circule.

En conditions oxydantes, les oxydes et hydroxydes de fer sont des minéraux secondaires fréquents. Il est communément admis que l'adsorption du radium sur ces minéraux est importante en milieu aqueux Levinson et al., 1982; Valentine et al., 1985; Kronfeld et al., 1991. Par conséquent, un enrichissement local en radium peut conduire à une augmentation du flux d'exhalation des roches. La comparaison des flux mesurés sur des échantillons similaires mais présentant des marques d'oxydation plus ou moins prononcés, C20 et C23 ainsi que C13 et C17, confirme ce phénomène. En effet, le flux d'exhalation mesuré sur l'échantillon C23 est plus important que celui mesuré sur l'échantillon C20. Il en est de même pour l'échantillon C13 par rapport à C17.

La comparaison de la concentration en radium et de celle du flux d'exhalation du radon des roches en fonction de la profondeur (Figure III-13) met en évidence une corrélation entre ces deux paramètres entre 25 et 50 m. Entre environ 25 et 35 m la concentration en radium et le flux d'exhalation diminue avant d'augmenter entre environ 35 et 50 m. Cependant il faut noter que deux concentrations différentes ont été mesurées sur deux parties, présentant des marques d'oxydations ou non, de l'échantillon de roche prélevé à 50 m. La partie de l'échantillon ne présentant pas de

marques d'oxydation a une activité massique en radium plus importante. Selon la valeur de concentration que l'on considère, l'augmentation est plus moins importante entre 35 et 50 m.

.En ce qui concerne l'échantillon prélevé à 60 m, la teneur en radium et le flux d'exhalation des roches semblent suivre des évolutions opposées, puisque la concentration en radium augmente et le flux d'exhalation diminue. Cependant, la quantité insuffisante de mesures de concentration en radium de la roche à des profondeurs inférieures à 50 m ne permet pas de confirmer cette observation.

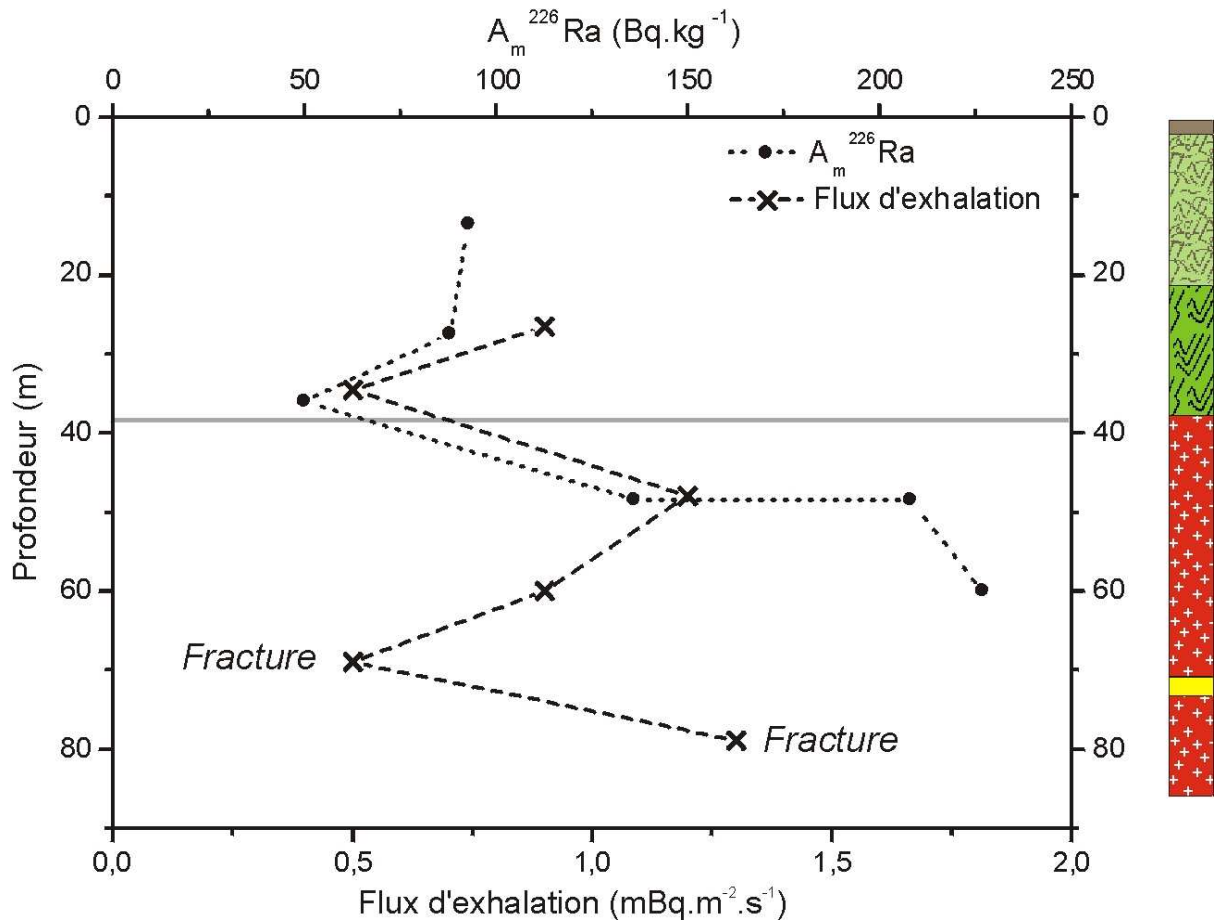


Figure III-13 : Comparaison de l'évolution de l'activité massique du radium et du flux d'exhalation du radon de la roche en fonction de la profondeur.

L'influence de la porosité et de la concentration en radium des roches sur le flux d'exhalation du radon des roches est évoquée dans la littérature. L'étude de l'évolution du flux d'exhalation du radon des roches en fonction de ces deux paramètres (Figure III-14) met en évidence des relations fréquemment observées : le flux d'exhalation est proportionnel à la concentration en radium de la roche et inversement proportionnel à la porosité du matériau. Cependant, les flux d'exhalation mesurés sur les échantillons de roche étant faibles, ces tendances sont peu marquées.

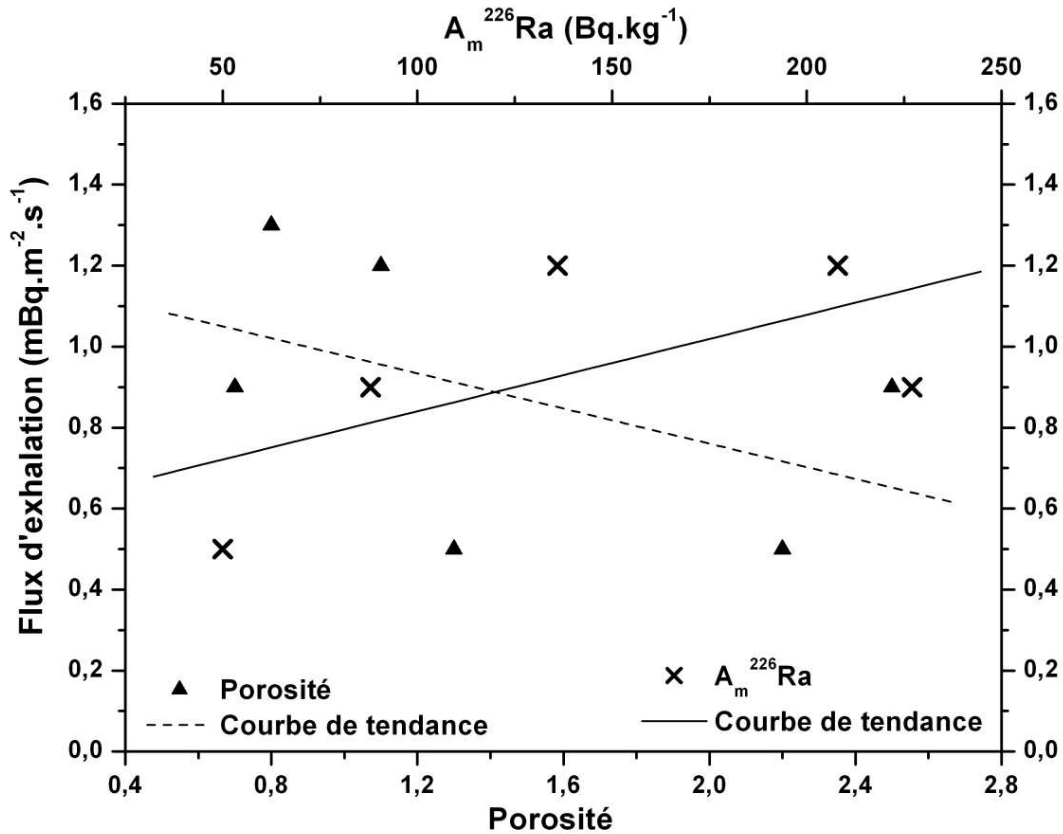


Figure III-14 : Comparaison de l'activité massique du radium et de la porosité de la roche avec le flux d'exhalation du radon de la roche.

La minéralogie de la surface d'une fracture dans laquelle circule de l'eau est différente de celle de la roche encaissante saine (MacQuarrie & Mayer, 2005). Les interactions eau-roche dans la fracture provoquent une altération de la matrice rocheuse et la précipitation de minéraux secondaires sur la surface de la fracture (Figure III-15). La profondeur de l'altération de la matrice environnante peut atteindre plusieurs centimètres. En conditions oxydantes, les oxydes et hydroxydes de fer sont des minéraux qui précipitent fréquemment. Il est communément admis qu'en domaine aqueux l'adsorption du radium sur ces minéraux est importante (Levinson et al., 1982; Valentine et al., 1985; Kronfeld et al., 1991). Par conséquent, l'enrichissement en radium des surfaces des fractures et l'augmentation de la porosité due à l'altération de la matrice conduit à une augmentation du flux d'exhalation de la roche dans ces zones fracturées. Il faut donc s'attendre à mesurer des flux d'exhalation du radon différents sur des échantillons de roche prélevés à la profondeur de zones fracturées où l'eau circule et sur d'autres échantillons localisés dans des zones fracturées déconnectées du réseau hydrogéologique et ayant subi une altération moins grande.

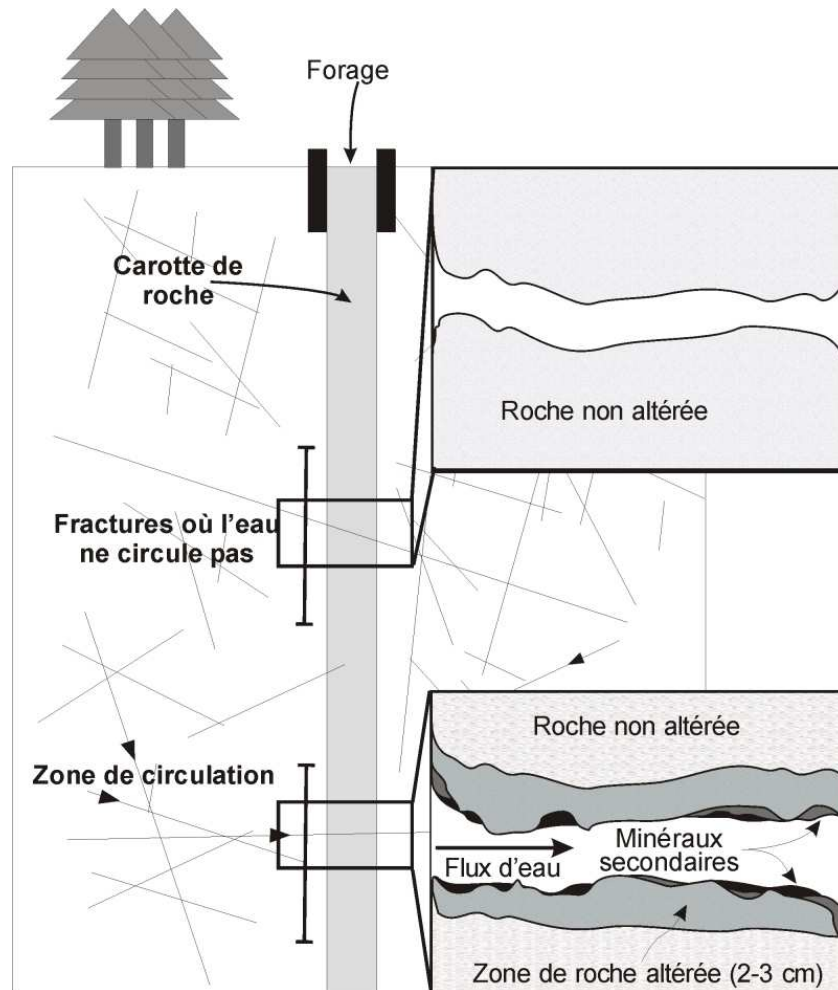


Figure III-15 : Représentation schématique des conditions d'altération à proximité de l'interface fracture-matrice rocheuse dans le cas d'une fracture à l'intérieur de laquelle l'eau ne circule pas et dans le celui d'une fracture où un flux d'eau existe.

II.2. Terme source du radon dans l'eau : activités volumiques du radium

La concentration en radium-226 de 17 échantillons d'eaux prélevés en avril 2004 dans 15 forages répartis sur l'ensemble du site de Ploemeur a été mesurée. Les activités volumiques du radium mesurées sont relativement faibles. En effet, la gamme des concentrations s'étend de 0,016 à 0,147 Bq.L⁻¹ (Tableau III.3). De plus, il n'apparaît aucune corrélation entre les activités volumiques du radium et du radon mesurées dans l'eau (Figure III-16). La composante du radon produit par désintégration du radium dissous dans l'eau peut donc être considérée comme négligeable devant celle du radon produit par la désintégration du radium contenu dans la roche

encaissante. Il faut rappeler que le standard EPA (Environmental Protection Agency) concernant la teneur limite de l'eau potable en Ra-226 est de $0,2 \text{ Bq.L}^{-1}$.

Tableau III.3 : Activités volumiques du radium-226 mesurées dans l'aquifère de Ploemeur en Avril 2004 (Sites de Kermadoye, Stang-er-Brune et Loyan).

Forage	Profondeur (m)	$A_v \text{ } ^{226}\text{Ra}$ (Bq.L^{-1})	
mF1	19	0,063	$\pm 0,0075$
mF2	25	0,044	$\pm 0,0100$
F6	45	0,133	$\pm 0,0125$
F9	67	0,016	$\pm 0,0045$
F19	75	0,05	$\pm 0,0070$
F11	92	0,072	$\pm 0,0085$
F20	20	0,101	$\pm 0,0125$
F28	30	0,029	$\pm 0,0060$
F28	75	0,063	$\pm 0,0070$
F30	20	0,016	$\pm 0,0040$
F34	45	0,103	$\pm 0,0130$
F35	26	0,058	$\pm 0,0085$
F35	110	0,047	$\pm 0,0075$
F22	50	0,128	$\pm 0,0120$
F13	63	0,147	$\pm 0,0170$
F21	55	0,107	$\pm 0,0130$
F26	55	0,103	$\pm 0,0105$

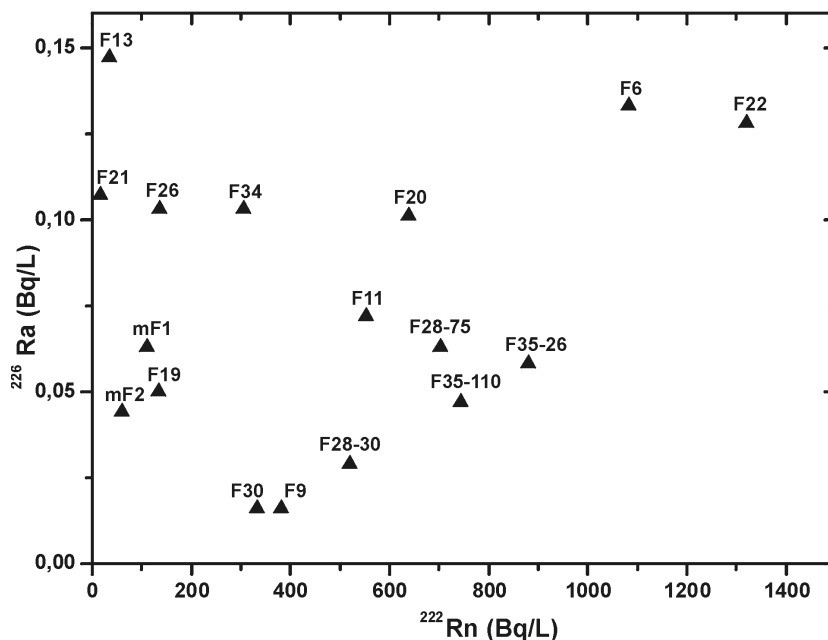


Figure III-16 : Activités volumiques du radon-222 et du radium-226 dans l'eau des forages des sites de Ploemeur. Les prélèvements des échantillons d'eau pour la mesure du radium-226 ont été réalisés lors de la campagne de mesure du radon d'avril 2004.

Par ailleurs, l'étude des concentrations du radium dans l'eau permet de mettre en évidence l'influence de la localisation des forages par rapport au pompage principal (situé sur le site de Kermadoye) sur l'activité volumique du radium dans l'eau.

En effet, plus les forages sont éloignés de la zone de pompage, plus la concentration en radium dans l'eau est grande (Figure III-17). Dans les forages entourant le pompage, la gamme des activités volumiques du radium dans l'eau est comprise entre 0,016 et 0,072 Bq.L⁻¹. Dans les forages plus éloignés, la concentration en radium dans l'eau est toujours supérieure à 0,1 Bq.L⁻¹. Elle s'étend de 0,101 à 0,147 Bq.L⁻¹.

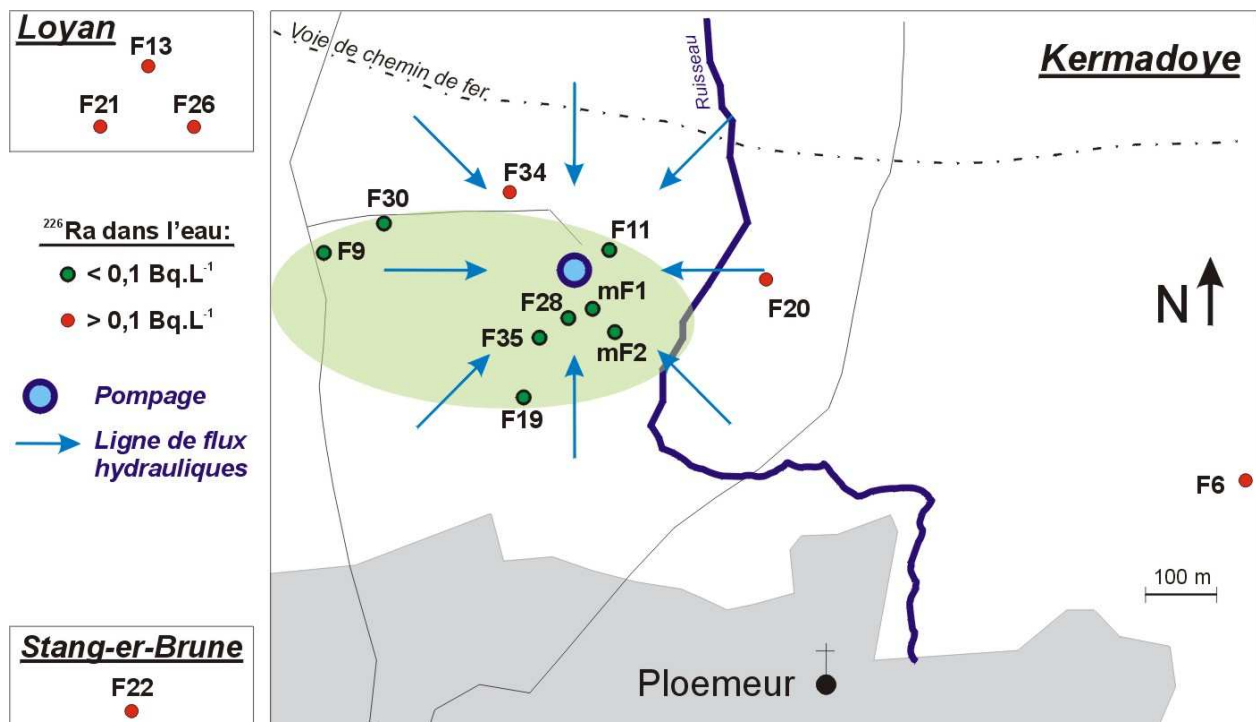


Figure III-17 : Influence du pompage de Kermadoye sur les activités volumiques du radium-226 mesurées dans l'aquifère de Ploemeur en Avril 2004 (Sites de Kermadoye, Stang-er-Brune et Loyan).

Sous l'effet des flux hydrauliques plus grands à proximité de la station de pompage de Kermadoye, une altération physique plus importante de la roche encaissante de l'aquifère est envisageable. Cette hypothèse permettrait d'expliquer la diminution de la concentration en radium dans l'eau des forages soumis à l'influence directe du pompage par un appauvrissement progressif par lessivage de la concentration en radium des surfaces de roches des fractures dans cette zone.

Dans ces forages, les flux hydrauliques plus importants auraient provoqué une désorption plus importante du radium adsorbé sur les précipitations secondaires telles que des oxydes et hydroxydes de fer. Il est probable que les surfaces des fractures, soumises aux effets physiques d'un pompage de longue durée, aient libéré plus rapidement une grande partie du radium qu'elles contenaient.

Dans les forages plus éloignés, moins influencés par le pompage, la désorption du radium des minéraux serait plus faible.

III. DISCUSSION : RELATION ENTRE LA VARIABILITE DES CONCENTRATIONS EN RADON DANS L'EAU DE L'AQUIFERE, LE TERME SOURCE DU RADON ET LES ARRIVEES D'EAU DES FORAGES.

Les résultats expérimentaux obtenus ont permis la caractérisation de la variabilité des concentrations en radon et du terme source du radon dans l'aquifère de Ploemeur.

Les activités volumiques du radon mesurées au cours des différentes campagnes de mesures réalisés font ressortir une variabilité importante des activités volumiques du radon dans l'eau de l'aquifère. Cette variabilité est essentiellement spatiale puisqu'une gamme de concentration très large a été mesurée dans l'eau des forages du site. De grands contrastes d'activités volumiques du radon ont été mis en évidence dans l'eau de forages séparés par de très faibles distances. De plus, des variations importantes ont été mesurées dans la colonne d'eau d'une partie des forages. Enfin, une variabilité temporelle a pu être observée à certaines profondeurs dans quelques forages des sites étudiés.

La lithologie et la géochimie semblent jouer un rôle dans la variabilité spatiale. En effet, les concentrations du radon dans l'eau mesurées sont généralement plus faibles lorsque la roche encaissante est composée de micaschistes. En revanche, les concentrations les plus élevées ont toujours été mesurées dans des eaux en contact avec du granite. De plus, l'activité massique du radium-226 dans la roche est deux à trois fois plus élevée dans les échantillons de granite que dans les micaschistes, confirmant la dichotomie existant entre les deux lithologies pour la concentration de l'élément père du radon.

En revanche, les flux d'exhalation du radon de la roche mesurés en laboratoire sur des échantillons de granite et de micaschistes ne permettent pas d'aboutir à la même conclusion. En effet, les flux mesurés sont tous très faibles et varient peu entre les deux lithologies. Le flux d'exhalation du radon le plus élevé a été mesuré dans un échantillon de granite prélevé dans une zone fracturée de l'aquifère mais il ne présente pas un écart de valeur important avec le flux mesuré sur l'échantillon de micaschistes exhalant le plus de radon.

Enfin, il faut noter que l'activité volumique du radium est faible dans l'ensemble des eaux du site. Le terme source du radon dans l'eau peut donc être considéré comme négligeable par rapport à celui dans la roche.

Cependant, si le terme source du radon dans la roche a bien évidemment une grande importance, sa variabilité ne permet pas d'expliquer celle observée pour la concentration en radon dans l'aquifère de Ploemeur.

Dans le chapitre II, l'influence des propriétés hydrauliques de l'aquifère sur l'activité volumique du radon dans l'eau a été mise en avant. Dans les lignes qui suivent, deux forages sont pris comme exemple afin d'introduire les perspectives développées dans le prochain chapitre. Les constats effectués sont les mêmes pour les autres forages du site présentant des caractéristiques hydrogéologiques similaires (arrivées d'eau multiples et flux hydraulique vertical dans le forage).

L'examen de l'ensemble des données disponibles pour deux des forages du site de Kermadoye, F28 et F34, caractérisés par de multiples arrivées d'eaux fournit des informations instructives. Tout d'abord, les flux verticaux mesurés dans ces forages (Le Borgne et al. 2006) sont présentés dans la Figure III-18.

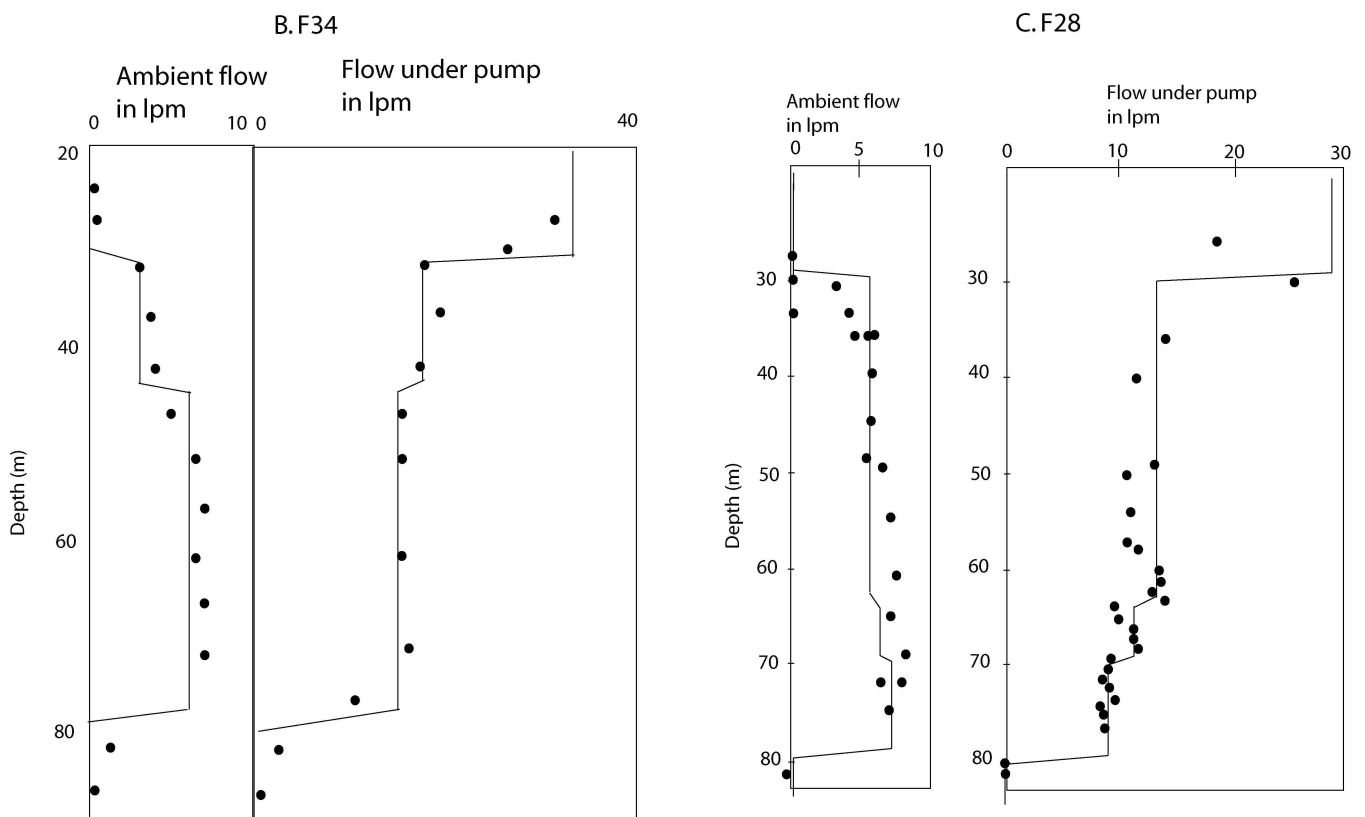


Figure III-18 : Résultats des mesures de débits réalisées dans les forages F34 et F28 en conditions de flux ambiantes et pompées. (Le Borgne et al. 2006)

A chaque variation importante dans le débit hydraulique vertical du forage correspond une arrivée d'eau. En comparant, ces résultats avec les concentrations en radon mesurées dans l'eau des puits F28 et F34 (Figure III-19), il apparaît que les arrivées d'eau semblent coïncider avec les variations des activités volumiques du radon dans l'eau des forages.

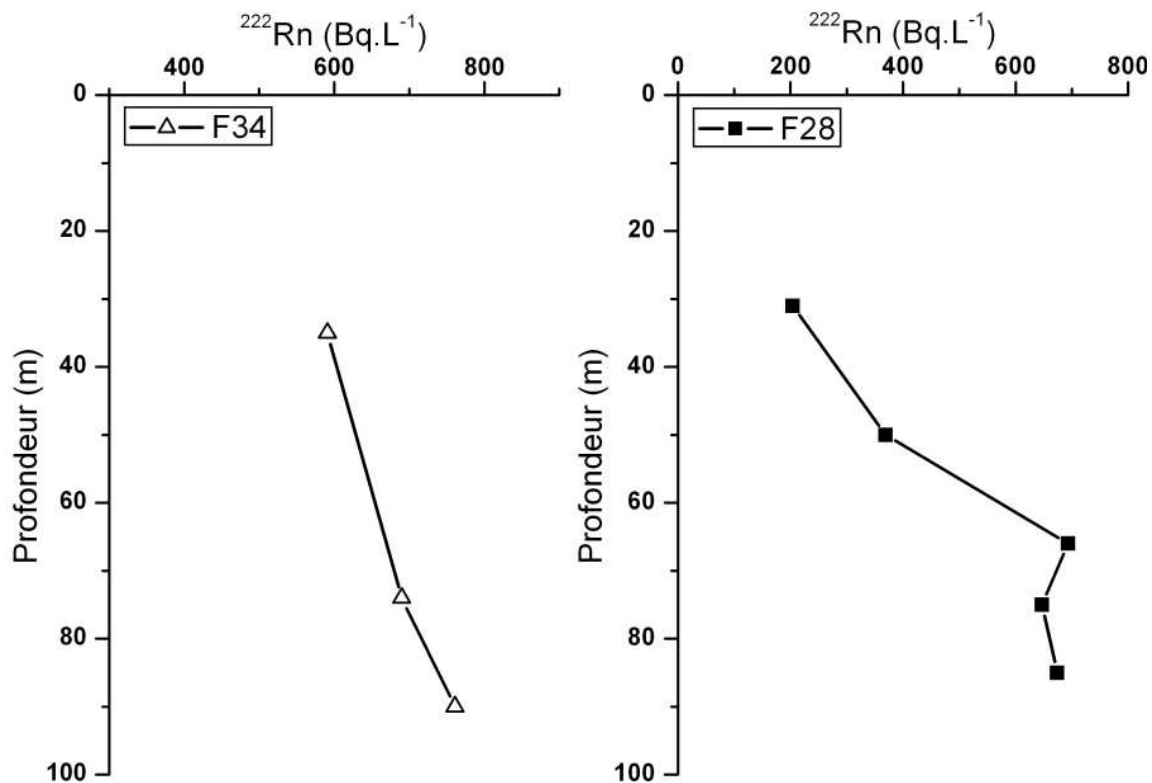


Figure III-19 : Activités volumiques du radon dans l'eau des forages F34 et F28 en fonction de la profondeur (campagne de mesure de mai 2005) en conditions de flux ambiants.

Cependant, l'étude des diagraphies chimiques réalisées dans ces deux forages (Figure III-20 et Figure III-21) précise l'influence des arrivées d'eau sur la concentration en radon dans l'eau.

En effet, les variations importantes des différents paramètres physico-chimiques (oxygène dissous, température et conductivité) mesurés dans le forage F28 indiquent que l'eau de ce puit a différentes origines. Les fractures profondes fournissent une eau ayant des caractéristiques physico-chimiques différentes de celles de l'eau des fractures superficielles.

En revanche, dans le forage F34, il n'y a aucune variation des paramètres physico-chimiques de l'eau avec la profondeur alors qu'un écart de concentration en radon existe dans l'eau entre la surface et la profondeur (environ 200 Bq.L⁻¹).

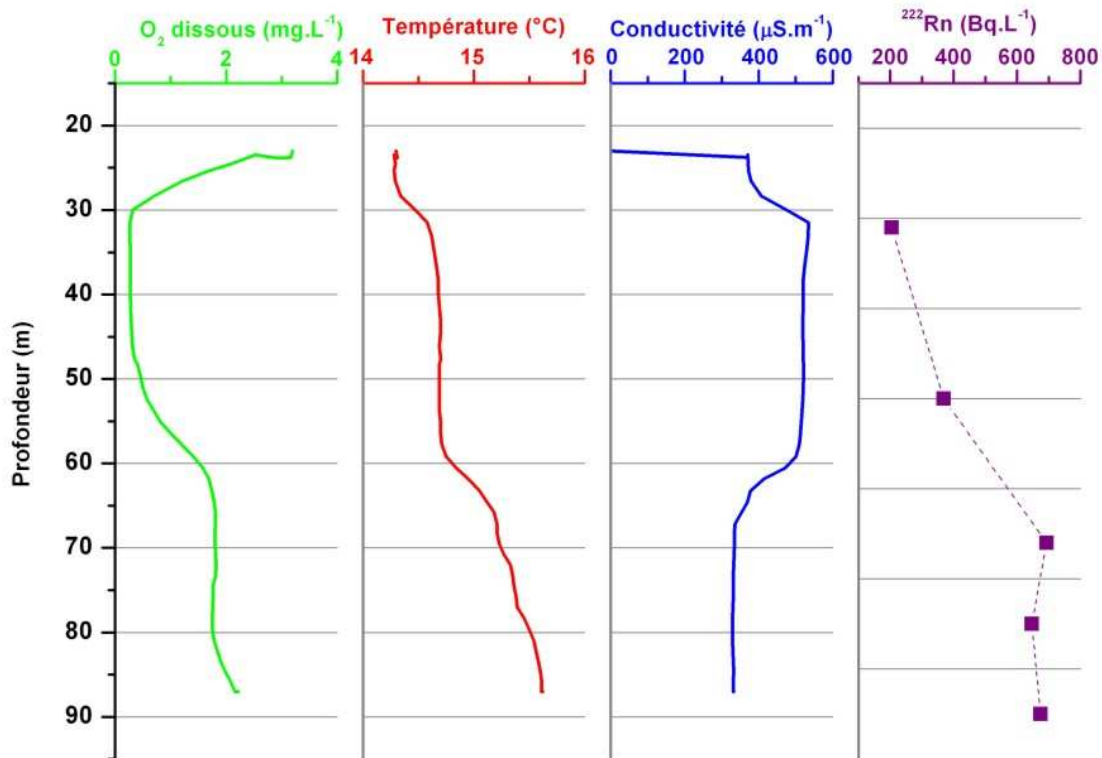


Figure III-20 : Résultats de la diagraphie chimique réalisée sur le puits F28 et des concentrations en radon mesurées dans l'eau en mai 2005.

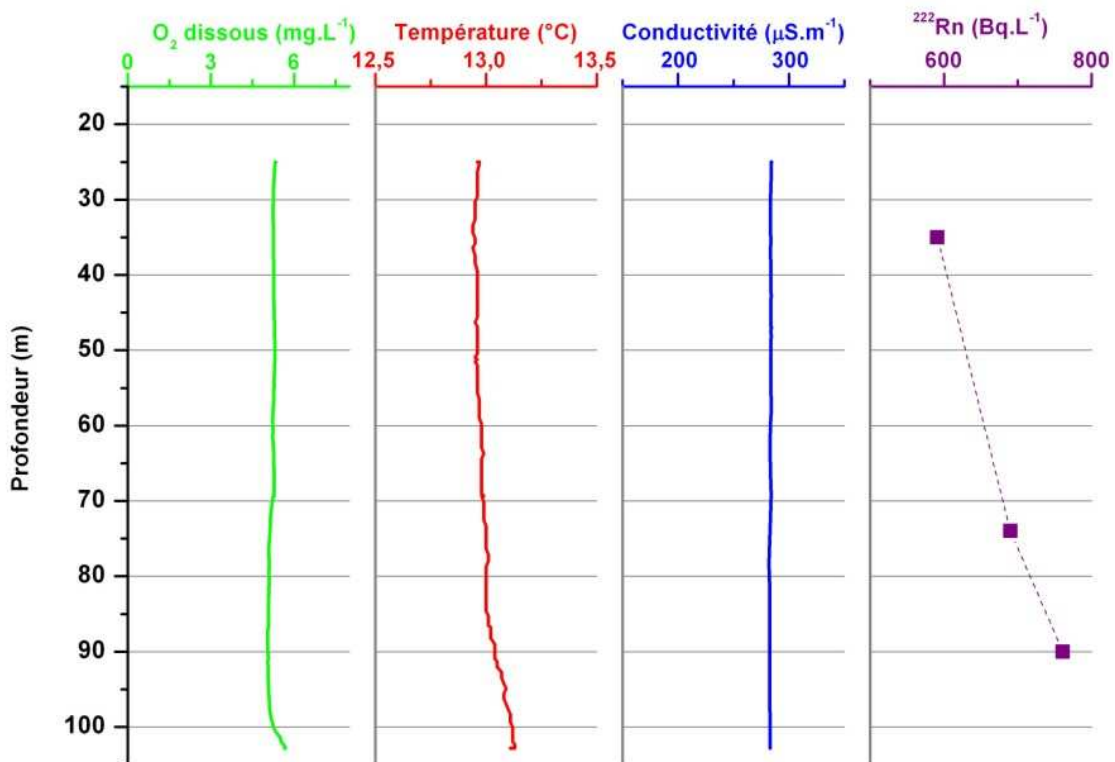


Figure III-21 : Résultats de la diagraphie chimique réalisée sur le puits F34 et des concentrations en radon mesurées dans l'eau en mai 2005.

Ces constats indiquent que les caractéristiques physico-chimiques de l'eau, et donc son origine, ne semblent pas être responsables de la variabilité des concentrations en radon observée dans l'aquifère. En revanche, l'influence de la vitesse de circulation de l'eau dans les fractures reste à déterminer.

Dans le prochain chapitre, les relations entre les arrivées d'eau, la transmissivité de l'aquifère, le débit de l'eau dans les fractures et la variabilité des concentrations en radon dans l'eau évoquées dans le chapitre 1, §III.1.2, vont être étudiées.

Chapitre IV :
***Influence des propriétés hydrauliques de
l'aquifère sur la variabilité des activités
volumiques du ^{222}Rn dans l'eau :
interprétation et modélisation***

*Dans cette partie de l'étude, nous avons confronté les résultats obtenus pour la modélisation des activités volumiques du radon dans les eaux souterraines de deux sites différents. Le premier, Stang-er-Brune, est une partie de l'aquifère dont les réserves en eaux ne sont pas exploitées. Dans cette zone, les **flux hydrauliques souterrains** sont donc **naturels**. En revanche, les réserves du second site, Kermadoye, sont pompées par la mairie de Ploemeur pour l'alimentation en eau potable de la ville. Les **flux hydrauliques souterrains** subissent donc une influence "**anthropique**" en ce sens qu'ils sont modifiés artificiellement par le pompage municipal.*

I. CONDITIONS DE FLUX "NATURELS" : SITE DE STANG-ER-BRUNE

Cette partie est consacrée à l'étude des activités volumiques du radon mesurées dans l'eau des forages du site de Stang-er-Brune. Ce site présente deux intérêts majeurs :

- il est équipé de 7 forages sur une surface réduite (environ 100 m²)
- les eaux souterraines ne sont pas exploitées. Les flux hydrauliques de l'aquifère ne sont donc pas perturbés par l'influence d'un pompage.

Dans un premier temps, les concentrations mesurées dans l'eau en conditions de flux ambiants en décembre 2004, sont étudiées, en les comparant aux concentrations calculées en utilisant un modèle de fracture simple proposé par Nelson et al. (1983). Dans un deuxième temps, la présentation des mesures de concentration en radon dans l'eau des forages obtenues, lors des essais de pompages réalisés en mai 2006, permet de formuler l'hypothèse d'une interaction possible entre l'eau contenue dans la matrice et l'eau circulant directement dans la fracture.

Cette partie fait l'objet d'une publication soumise au journal *Applied Geochemistry* (Annexe 6).

I.1. Aquifère en conditions de flux ambiants : modélisation des concentrations du radon dans l'eau des forages.

I.1.1. Rappels des caractéristiques du site de Stang-er-Brune : hydrogéologie, géologie et activités volumiques du radon mesurées dans l'eau en conditions de flux ambiants.

La géologie du site a été précédemment étudiée, à partir de cuttings et de la carotte de roche extraits lors de la réalisation des forages (Ellis et al., 2004), et se trouve détaillée dans le chapitre II, §I.3. Les logs géologiques des 4 forages principaux (B1, B2, B3 et F22) sont représentés pour rappel dans la Figure IV.1.

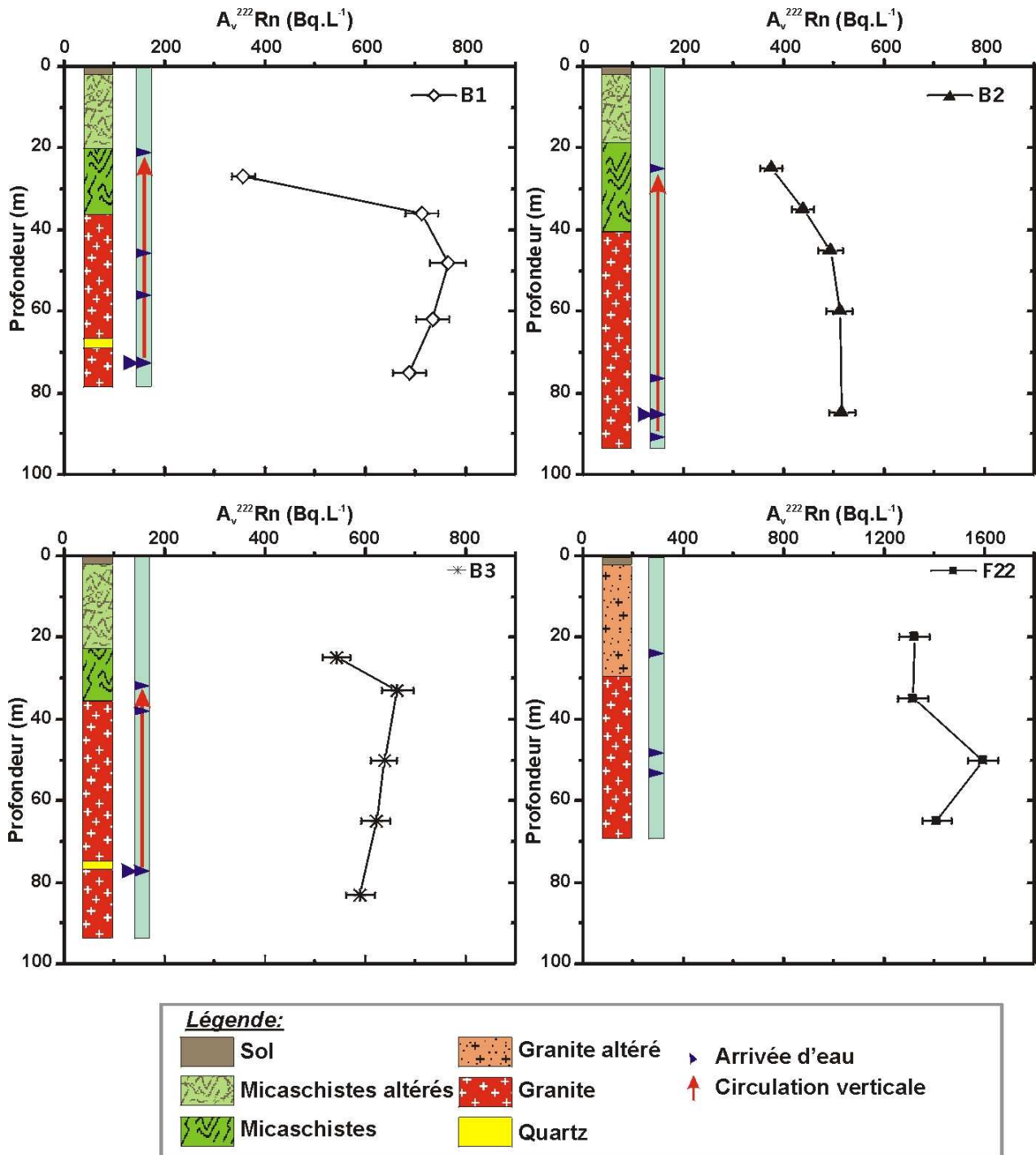


Figure IV.1 : Evolution de la géologie et de l'activité volumique du radon dans l'eau en fonction de la profondeur dans les forages du site de Stang-er-Brune. Les caractéristiques hydrogéologiques de chaque forage (arrivées d'eau et flux verticaux) ont aussi été reportées.

L'hydrogéologie du site a été détaillée par Le Borgne et al. (soumis). Il faut rappeler que, pour un milieu poreux homogène soumis à un écoulement horizontal, la charge hydraulique varie dans la direction de l'écoulement mais ne varie pas verticalement et qu'au contraire, dans un milieu hétérogène, les zones d'écoulements peuvent être localisées et plus ou moins isolées les unes des

autres. Bien que la charge hydraulique soit constante dans un forage, celles des zones d'écoulement ne sont en général pas identiques. Ceci est le cas, en particulier, dans les milieux faiblement connectés tels que les milieux fracturés. Si ces zones d'écoulement ne sont pas isolées les unes des autres, un écoulement vertical se crée, dans le forage, de la zone ayant la charge hydraulique la plus grande vers celle ayant la charge hydraulique la plus faible. Le débit est fonction de la différence de charge et de la transmissivité des deux zones.

Les flux verticaux ont été précédemment déterminés par débitmètrie (Le Borgne et al., soumis). Dans cette étude, un débitmètre à pulse de chaleur (Paillet, 1996) a été utilisé pour mettre en évidence que des flux verticaux ascendants existent naturellement dans les forages B1, B2 et B3 (Chapitre II, §I.3.3).

Ces mêmes auteurs ont également identifié la profondeur des arrivées d'eaux principales dans chacun de ces forages. Elles sont localisées à 78, 98 et 80 m dans les forages B1, B2 et B3 respectivement. Par ailleurs, les flux étant très faibles dans le forage F22, aucune circulation verticale n'a été clairement mise en évidence. Les débits mesurés à ces profondeurs ont été estimés à $1,7 \cdot 10^{-5}$, $5,0 \cdot 10^{-6}$, $5,3 \cdot 10^{-5} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ dans les forages B1, B2, B3 respectivement (Le Borgne et al., soumis). Un flux d'environ $1,7 \cdot 10^{-6} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ a été mesuré dans certaines zones du forage F22. Bien que cette valeur soit proche de la limite de résolution du débitmètre utilisé pour mesurer les flux, celle-ci sera retenue pour caractériser le débit d'eau dans le forage F22. L'incertitude sur les flux est de 10% pour les forages B1 et B3 et de 20% pour le forage B2.

Bien qu'aucune mesure de flux n'ait été réalisée, lors de la campagne de mesure des concentrations du radon dans l'eau de décembre 2004, les flux en conditions ambiantes sont supposés identiques à ceux mesurés par Le Borgne et al.. En effet, le site de Stang-er-Brune est l'une des zones de décharge de l'aquifère, ce dernier affleurant au niveau de la zone marécageuse, située en bordure du site. La charge hydraulique dans les fractures est donc relativement constante, dans le temps, à cet endroit.

Par ailleurs, la transmissivité de l'aquifère aux profondeurs des fractures majeures a également été estimée par l'interprétation de tests hydrauliques d'interférence entre forages (Le Borgne et al., soumis).

De multiples arrivées d'eau (entre 3 et 4 selon les puits) et des flux verticaux ont été mis en évidence dans les forages du site de Stang-er-Brune. Par conséquent, l'eau qui circule à l'intérieur d'un forage résulte d'un mélange d'eaux présentant des concentrations en radon différentes.

Néanmoins, on peut émettre l'hypothèse que le mélange est négligeable à la profondeur de l'arrivée d'eau qui a la charge hydraulique la plus grande, étant donné que cette arrivée d'eau participe majoritairement au flux à cette profondeur. Ainsi, à l'intersection de cette fracture et du puits, la concentration en radon de l'eau peut être considérée comme représentative de celle de l'eau qui circule dans la fracture.

Les conclusions exposées à la fin du chapitre III indiquent clairement que la concentration en radon dans l'eau d'un forage semble être influencée par l'intensité des arrivées d'eau dans celui-ci. Cette observation a également été faite dans d'autres études (chapitre I : §III.1.2). Nelson et al. (1983) ont développé un modèle permettant de calculer l'activité volumique du radon dans l'eau circulant dans une fracture. Parmi les modèles existants, ce dernier est le plus complet puisqu'il prend en compte, à la fois les caractéristiques hydrauliques et géochimiques de la fracture (épaisseur de la fracture et flux d'exhalation du radon de la roche), mais également la vitesse de circulation de l'eau dans la fracture (chapitre I : §III.2.4.2). Afin de tester l'influence des arrivées d'eau sur la concentration en radon de l'eau des forages, nous avons donc choisi d'appliquer le modèle proposé par Nelson et al. (1983) aux arrivées d'eau principales de chaque forage.

Pour les forages B1, B2 et B3, la concentration en radon à la profondeur de l'arrivée d'eau principale est respectivement de 700, 520 et 620 Bq.L⁻¹. Il s'agit, pour ces trois forages B1, B2 et B3, de l'activité volumique respectivement mesurée en décembre 2004 à 78, 98 et 80 m. En revanche, dans le forage F22, nous avons considéré que la moyenne des concentrations en radon mesurées dans l'eau aux profondeurs de 20, 35 et 50 m était représentative de celle de l'eau circulant dans une fracture de ce forage. En effet, les flux mesurés étant très faibles, les arrivées d'eaux ont des intensités proches, ne permettant pas de déterminer l'arrivée d'eau la plus importante. La moyenne des concentrations en radon mesurées dans ce forage atteint 1412 Bq.L⁻¹.

I.1.2. Modèle à fracture unique : modèle de Nelson et al. (1983).

Afin de mieux appréhender la relation existant entre le débit de l'eau dans une fracture et la concentration en radon des eaux souterraines en milieu fracturé de socle, Nelson et al. (1983) ont modélisé la concentration en radon dans l'eau d'une fracture unique traversée par un forage (Figure IV-2). La fracture est assimilée à un disque de rayon b (m) et de faible épaisseur h (m) qui est traversé en son centre par un forage cylindrique de rayon a (m). L'eau circule radialement à l'intérieur de la fracture vers le forage avec un débit Q (m³.s⁻¹).

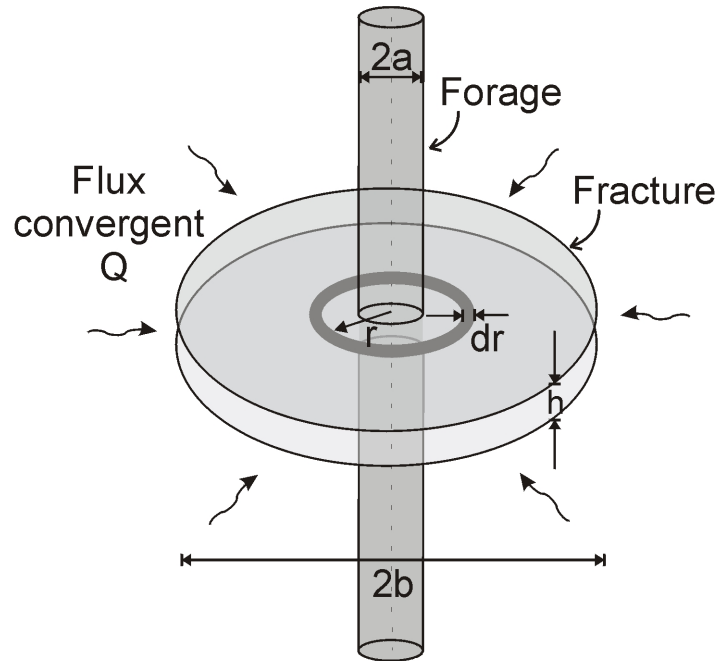


Figure IV.2 : Schéma du modèle de fracture unique. L'eau converge radialement avec un débit Q à travers une fine fracture d'épaisseur h vers le forage.

Dans leur développement mathématique, Nelson et al. (1983) expriment la contribution I du flux de radon d'un anneau élémentaire de largeur dr qui exhale du radon avec un flux E comme étant :

$$dI = E \exp(-\lambda t) 2\pi r dr \quad (1)$$

Cependant, dans leur raisonnement, les auteurs considèrent que l'activité volumique du radon dans l'eau circulant dans la fracture provient de la contribution d'un seul anneau. Or dans ce modèle, l'eau circule à l'intérieur d'un disque. Il y a donc deux surfaces de formes circulaires qui exhalent le radon qui est dissous dans l'eau. Si l'on considère que les deux faces de la fracture participent au flux de radon de la roche vers l'eau alors l'équation (1) doit être modifiée ainsi :

$$dI = 2E \exp(-\lambda t) 2\pi r dr \quad (2)$$

Cette expression est en accord avec le résultat auquel aboutissent Andrews et al. (1986) pour la modélisation de la concentration en radon dissous dans l'eau d'une fracture représentée sous la forme de deux plans parallèles.

La concentration C_o (kBq.L^{-1}) en radon dans l'eau circulant dans la fracture est alors exprimée par :

$$C_o = 2 (E / \lambda h) [1 - \exp(-\lambda \pi h (b^2 - a^2) / Q)] \quad (3)$$

Avec :

E le flux d'exhalation surfacique du radon de la roche ($\text{Bq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$),

λ la constante de désintégration du radon-222 ($2,1.10^{-6} \text{ s}^{-1}$),

h l'épaisseur de la fracture (m),

b le rayon du disque source du radon-222 (m),

a le rayon du cylindre représentant le forage (m),

Q le débit de l'eau dans la fracture ($\text{m}^3.\text{s}^{-1}$).

Il faut noter que le rayon b du disque source du radon correspond soit à la limite géologique de la fracture, soit à la distance maximale parcourue par l'eau pendant environ 38 jours. Cette durée correspond au temps au terme duquel on considère qu'il ne reste plus qu'environ 0,098 % du radon initialement présent dans l'eau.

Selon l'équation (3), la concentration en radon dans l'eau est dépendante du débit de l'eau de la fracture et de la géométrie de la surface exhalant le radon.

Si le débit est assez grand pour que l'eau atteigne le forage en une fraction de demi-vie du radon-222 ou bien si la surface du disque de roche exhalant le radon a une extension suffisamment limitée, alors l'expression de la concentration en radon dans l'eau de la fracture peut être simplifiée par :

$$C_o = 2[E\pi(b^2 - a^2)/Q] \quad (4)$$

Dans ces conditions, la concentration en radon dans l'eau est inversement proportionnelle au débit de l'eau de la fracture.

En revanche, si le débit de l'eau est faible ou que la surface de roche exhalant du radon est grande, la concentration en radon dans l'eau varie uniquement en fonction du flux d'exhalation de la roche et de l'épaisseur de la fracture :

$$C_o = 2E / \lambda h \quad (5)$$

La possibilité d'estimer les paramètres qui interviennent dans ce modèle, par des expérimentations de terrain ou de laboratoire, représente le principal avantage de celui-ci. De plus, l'équation (4) suppose une influence du débit de l'eau sur la concentration en radon dans l'eau de la fracture. Le test de ce modèle permettra de vérifier l'hypothèse émise à la fin du chapitre III : la variabilité

spatiale des activités volumiques du radon mesurées dans l'aquifère est-elle liée à la variation de l'intensité des arrivées d'eau dans le forage ?

1.1.2.1. Détermination des valeurs des paramètres du modèle.

L'utilisation de l'équation (3) pour calculer la concentration en radon de l'eau circulant dans une fracture nécessite d'estimer les valeurs des paramètres composant le modèle : le flux d'exhalation du radon de la roche (E), l'épaisseur des fractures (h), le débit de l'eau dans les fractures (Q) et le rayon du disque source du radon (b). Le rayon du forage (a) est de 7 cm pour tous les puits du site.

a) Le flux d'exhalation, E :

Les résultats des mesures du flux d'exhalation réalisées en laboratoire sur les échantillons de roches extraits du forage B1 ont été présentés dans le chapitre III. Les flux mesurés sont compris entre 0,5 et 1,3 $\text{mBq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$.

Les concentrations en radon de l'eau des fractures que nous avons choisi de modéliser sont toutes situées à une profondeur correspondant au granite de Ploemeur (fractures des arrivées d'eau principales des forages). Nous avons ainsi sélectionné le flux d'exhalation du radon mesuré sur l'échantillon de granite C23, prélevé à la profondeur d'une zone fracturée correspondant à l'arrivée d'eau majeure du forage B1. Cet échantillon de granite présente des marques d'oxydation, d'altération et de fracturation représentatives d'une zone fracturée où de l'eau circulerait. Il est constitué de 5 morceaux de la carotte extraite du forage B1. Cette carotte a un diamètre de 6 cm et chaque partie que nous avons prélevée mesure entre 4 et 6 cm de long (Figure IV.3). Le flux d'exhalation mesuré est de $1,3 \pm 0,4 \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$. Il s'agit de la valeur la plus élevée que nous avons mesurée.

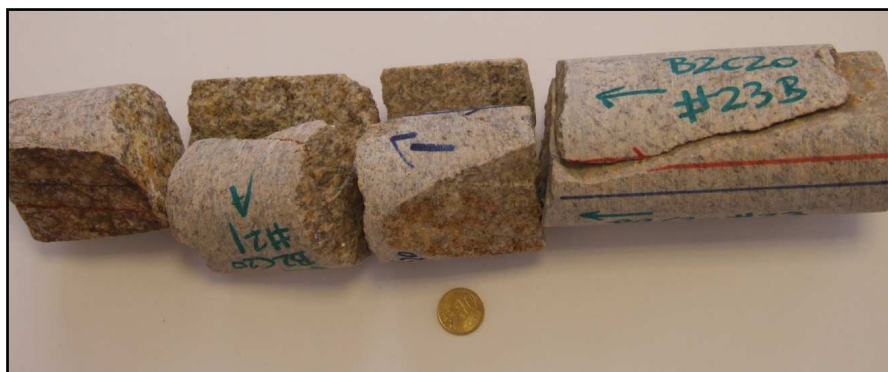


Figure IV.3 : Photo de l'échantillon de granite C23 considéré comme représentatif de la lithologie d'une fracture connectée au réseau hydrogéologique.

Les mesures en laboratoire des flux d'exhalation du radon ont été réalisées sur des échantillons de roches dont les pores n'étaient pas saturés en eau. Dans le cas de la matrice rocheuse d'un aquifère, la totalité des pores de la roche est supposée être saturée en eau. Le flux d'exhalation du radon de la roche s'en trouve donc réduit. Les expériences menées par Andrews et al., (1986) ont permis de mettre en évidence que la quantité de radon exhalé par la roche est réduite de 25 à 50% quand les pores sont saturés en eau. L'échantillon pour lequel les auteurs ont observé une diminution de 50% du flux d'exhalation était un granite présentant des caractéristiques lithologiques (concentration en uranium et porosité) proches de celles du leucogranite carotté dans le forage B1. Il est donc possible d'émettre l'hypothèse que le flux d'exhalation en conditions saturées en eau de l'échantillon C23 serait équivalent à la moitié de celui mesuré dans l'air.

Par conséquent, dans le cas de l'aquifère de Ploemeur, la valeur de $0,65 \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ serait considérée comme représentative du flux d'exhalation du radon des surfaces des fractures. Ce flux est supposé identique dans tous les forages du site.

b) Epaisseur des fractures, h

L'épaisseur de la fracture principale de chaque forage a été calculée à partir des transmissivités mesurées. La transmissivité de chaque fracture majeure a été estimée par l'interprétation des résultats obtenus lors des tests hydrauliques d'interférence entre forages (Le Borgne et al., soumis) et lors des essais de pompages que nous avons réalisés en mai 2006 (chapitre III : §I.2.1).

La gamme des transmissivités obtenues est comprise entre 1.10^{-5} et $1.10^{-3} \text{ m}^2\cdot\text{s}^{-1}$ (Tableau IV.1). Les forages F22 et B3 présentent respectivement la plus faible et la plus forte transmissivité. De telles valeurs reflètent la très bonne perméabilité de cet aquifère fracturé. Pour la fracture à l'origine du flux majeur de chaque forage, il est possible de calculer une épaisseur équivalente h de fracture à partir de la transmissivité T ($\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$) en utilisant la loi cubique (de Marsily, 1986) :

$$h = (12 \cdot T \cdot \nu)^{1/3} \quad (6)$$

Avec: ν la viscosité cinématique de l'eau ($\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$).

Les épaisseurs équivalentes de fracture calculées en utilisant la loi cubique sont comprises entre 0,5 mm pour le forage F22 et 2,3 mm pour le forage B3.

Tableau IV.1 : Epaisseurs équivalentes calculées pour les fractures des forages du site à partir des transmissivités en utilisant la loi cubique.

Forage	Profondeur de la fracture (m)	Transmissivité ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$)	Epaisseur (mm)
B1	78	$1,44 \cdot 10^{-4}$	1,2
B2	98	$2,00 \cdot 10^{-4}$	1,3
B3	80	$1,00 \cdot 10^{-3}$	2,3
F22	50	$1,00 \cdot 10^{-5}$	0,5

c) Débit de l'eau dans les fractures, Q

Le flux vertical, mesuré dans chaque forage à la profondeur de la fracture principale, est considéré comme proche du débit de l'eau circulant dans la fracture. Les débits mesurés à ces profondeurs (par l'utilisation d'un débitmètre à pulse de chaleur) sont respectivement, comme cela a été indiqué précédemment, de $1,7 \cdot 10^{-5}$, $5,0 \cdot 10^{-6}$, $5,3 \cdot 10^{-5}$ et $1,7 \cdot 10^{-6} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ dans les forages B1, B2, B3 et F22 (Le Borgne et al., soumis).

d) Rayon du disque source, b

La valeur du rayon du disque source du radon-222, b , a été fixée à 50 m. Il faut noter que cette valeur n'a pas été estimée en considérant les limites définies par la distance parcourue par l'eau dans la fracture en 38 jours (durée au terme de laquelle il ne reste environ plus qu'environ 0,098 % du radon initialement présent dans l'eau) mais en tenant compte des limites hydrogéologiques des fractures dans cette zone. En effet, le site de Stang-er-Brune est localisé à proximité d'une zone de décharge de l'aquifère (affleurement de la nappe créant une zone marécageuse), limitant ainsi l'aire drainée par la fracture.

I.1.2.2. Comparaison des activités volumiques du ^{222}Rn avec les prévisions du modèle.

Le modèle de Nelson et al. (1983) a été testé à partir des valeurs des paramètres estimées ci-avant (flux d'exhalation du radon des roches et paramètres hydrauliques des fractures) afin d'estimer la capacité de celui-ci à calculer la concentration en radon dans l'eau d'un aquifère en milieu fracturé (Tableau IV.2).

Tableau IV.2 : Valeurs de transmissivité T , d'épaisseur équivalente h , de débit Q et de flux d'exhalation E utilisées pour modéliser les concentrations en radon dans l'eau des fractures principales des 4 forages du site. Les concentrations en radon mesurées in situ dans l'eau, aux profondeurs correspondantes, sont également reportées.

Forage	Profondeur de la fracture (m)	^{222}Rn (Bq.L^{-1})	T ($\text{m}^2.\text{s}^{-1}$)	h (mm)	Q ($\text{m}^3.\text{s}^{-1}$)	E ($\text{mBq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$)
B1	78	700	$1,44.10^{-4}$	1,2	$1,7.10^{-5}$	0,65
B2	98	520	$2,00.10^{-4}$	1,3	$5,0.10^{-6}$	0,65
B3	80	620	$1,00.10^{-3}$	2,3	$5,3.10^{-5}$	0,65
F22	50	1400	$1,00.10^{-5}$	0,5	$1,7.10^{-6}$	0,65

En condition de flux ambiants, l'influence du flux vertical dans un forage sur la circulation de l'eau dans les fractures peut être comparée à celle d'un pompage (Figure IV.4). Par conséquent, on peut émettre l'hypothèse que l'eau converge radialement vers le forage dans la fracture principale de chaque forage. Dans ce cas, les conditions requises pour l'utilisation du modèle sont respectées.

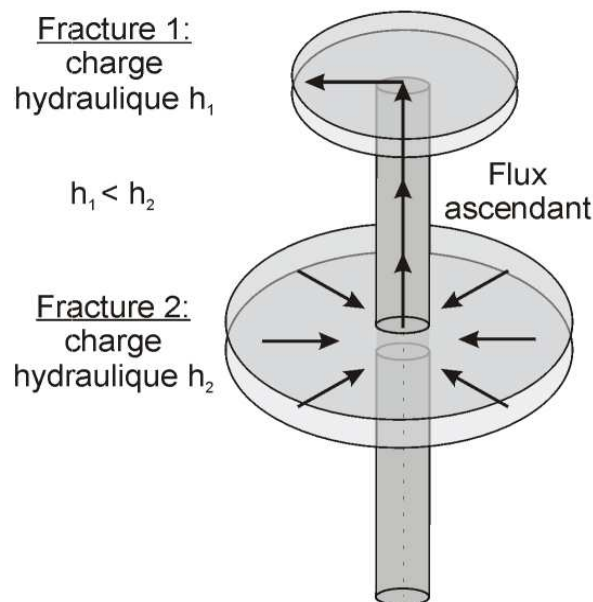


Figure IV.4 : Représentation schématique du flux convergent dans la fracture majeure induite par le flux vertical résultant de la différence de charge hydraulique entre la fracture 1 et la fracture 2.

Les graphiques de la Figure IV.5 présentent l'évolution théorique de la concentration en radon dans l'eau en fonction du débit de l'eau, pour les forages B1, B2, B3 et F22. Les courbes ont été calculées à partir de l'équation (4) et des valeurs des paramètres présentées dans le Tableau IV.2. Les courbes continues ont été calculées en utilisant une valeur de flux d'exhalation de $0,65 \text{ mBq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ et les courbes en pointillés en considérant l'incertitude analytique associée à ce flux ($\pm 0,2 \text{ mBq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$). Les points rouges correspondent aux concentrations mesurées dans l'eau

de la fracture majeure de chaque forage (campagne de décembre 2004) et les points bleus à celles calculées pour les valeurs de débit estimé dans la fracture.

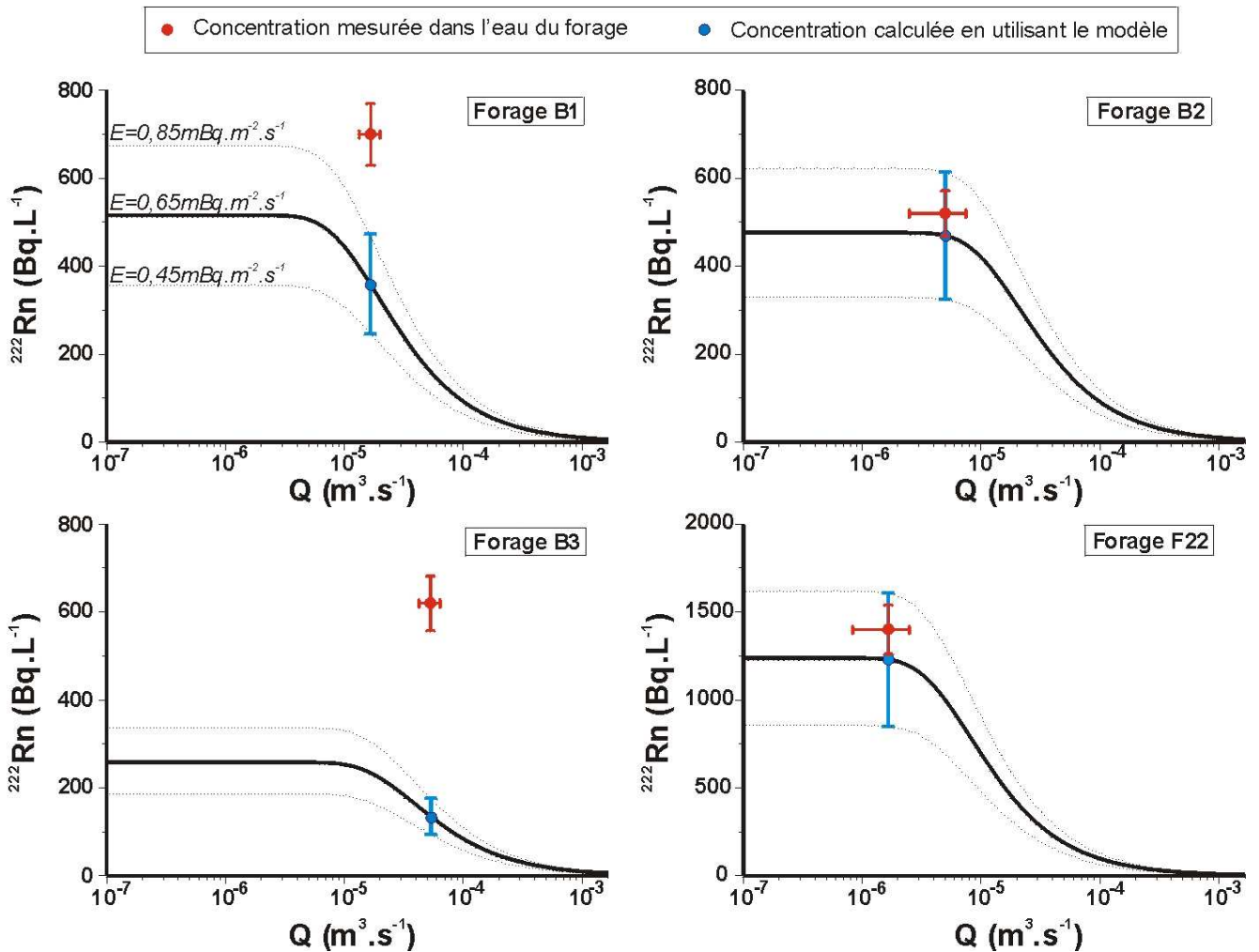


Figure IV.5 : Evolution théorique de la concentration en radon dans l'eau en fonction du débit de l'eau de la fracture et comparaison avec la concentration mesurée in situ dans l'eau du forage. Les points rouges correspondent aux concentrations mesurées dans l'eau de la fracture majeure de chaque forage (campagne de décembre 2004).

Un premier examen de ces résultats montre que la comparaison des résultats modélisés avec les concentrations mesurées dans l'eau en décembre 2004 apparaît satisfaisante pour B2 et F22. En effet, pour ces deux forages, la concentration calculée est environ 10% inférieure à celle mesurée. Cet écart peut être considéré comme négligeable puisqu'il est du même ordre de grandeur que l'incertitude analytique associée à la mesure de la concentration en radon dans l'eau. Cependant, la comparaison des concentrations calculées et mesurées met aussi clairement en avant la sous-estimation par le modèle des concentrations mesurées dans l'eau des forages B1 et B3. Ainsi, pour le forage B1, la concentration calculée est elle deux fois plus faible que celle mesurée, alors que pour le forage B3 elle est sous-estimée d'environ 80%.

Ces résultats laissent apparaître que les valeurs modélisées obtenues sont satisfaisantes pour les forages peu perméables, B2 et F22, alors que les concentrations sont sous-estimées dans les forages les plus perméables du site, B1 et B3.

L'origine des différences observées pourrait être liée aux incertitudes associées aux valeurs choisies pour les paramètres et/ou à l'hypothèse retenue dans le modèle qui consiste à assimiler le comportement d'un réseau de fracture à celui d'une fracture unique.

La concentration en radon dans l'eau circulant dans la fracture est fortement dépendante du temps de résidence de l'eau dans la fracture, lequel est contrôlé par le débit de l'eau Q et par le rayon b du disque source du radon. Tout d'abord, le temps de résidence est long (plusieurs fois la demi-vie du radon-222) si le débit est faible ou si l'aire de la source est large. Dans ces conditions, la concentration varie inversement avec l'épaisseur de la fracture (équation 5). Il est intéressant de noter que la concentration maximale, atteinte dans l'eau de la fracture, est donnée par l'équation 5. D'un autre côté, le temps de résidence est court, si le débit de l'eau est grand ($Q \gg \lambda\pi h(b^2 - a^2)$) ou si l'aire de la source du radon est petite. Dans ces conditions, la concentration augmente linéairement avec le rayon du disque source et décroît inversement avec Q (équation 4). La concentration en radon dans l'eau est alors très sensible aux changements du débit de l'eau dans la fracture.

Nous discutons ci-après des influences respectives des différents paramètres, ainsi que des incertitudes associées, sur la concentration en radon dans l'eau, afin de déterminer si elles permettent d'expliquer les différences observées entre les concentrations modélisées et mesurées.

1.1.2.3. Synthèse et discussion

a) Influence des variations du rayon b du disque source du radon-222

Une incertitude importante est liée au rayon du disque source du radon. Pour les forages du site de Stang-er-Brune, il a été considéré que le rayon d'influence était dépendant des caractéristiques hydrauliques de l'aquifère (débit de l'eau et épaisseur des fractures) et non pas des limites géologiques des fractures. Or, le site de Stang-er-Brune est localisé près d'une zone de décharge de l'aquifère et l'estimation de cette grandeur est difficile. Pour tous les forages du site, nous avons considéré un rayon de 50 m. Pour tester la sensibilité du modèle, aux variations de ce paramètre,

nous lui avons associé une incertitude de 50%. Comme le modèle prévoit une augmentation de la concentration en radon dans l'eau de la fracture quand le rayon b augmente, nous avons recalculé la concentration en radon dans l'eau des forages en considérant une valeur de b de 75 m, c'est-à-dire le rayon affecté d'une incertitude maximale : les concentrations en radon mesurées dans l'eau des forages demeurent toujours sous-estimées par le modèle, la concentration calculée étant encore inférieure de 30% à celle mesurée pour le forage B1 et inférieure de 65% pour le forage B3.

b) Influence des variations du débit, Q

La concentration en radon dans l'eau dépend du débit Q de l'eau dans la fracture dans des conditions de flux élevées ($Q \gg \lambda \pi h (b^2 - a^2)$). D'après l'équation 4, la concentration décroît inversement avec le débit dans ces conditions. Par ailleurs, les résultats du modèle mettent en évidence que seules les activités volumiques du radon dans l'eau des forages B1 et B3 sont susceptibles d'être influencées par le débit de l'eau dans la fracture. Cependant, même en tenant compte de l'incertitude analytique de 20% liée au débit, les concentrations calculées en utilisant le modèle sont toujours inférieures à celles mesurées. L'écart est de 305 Bq.L^{-1} pour le forage B1 et de 415 Bq.L^{-1} pour le forage B3.

En conclusion, les incertitudes liées au débit ne sont pas en mesure d'expliquer la différence observée entre les concentrations mesurées dans les forages B1 et B3 et les résultats obtenus en utilisant le modèle.

c) Influence des variations du flux d'exhalation du radon des roches, E

L'équation 5 met en évidence l'augmentation linéaire de la concentration en radon dans les eaux souterraines avec le flux d'exhalation de la roche encaissante. Théoriquement, un flux d'exhalation du radon plus important que celui mesuré sur nos échantillons de roche permettrait de calculer une concentration en radon dans l'eau proche de celle que nous avons mesurée dans l'aquifère en décembre 2004. Pour le forage B1 et B3, des flux d'exhalation du radon de $1,3$ et de $3 \text{ mBq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ seraient requis pour obtenir ce résultat. Bien que ces flux soient dans la gamme de taux d'exhalation rapportés dans la littérature pour les roches granitiques (Chapitre III), ils sont plus élevés que ceux que nous avons mesurés sur les échantillons de roche extraits du forage B1. En effet, le flux le plus important que nous ayons mesuré sur un échantillon de granite, dont les pores ne contenaient pas d'eau, est de $1,3 \text{ mBq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$, ce qui correspondrait à un flux d'environ $0,65 \pm 0,2 \text{ mBq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ pour un échantillon saturé en eau. En conclusion, si l'incertitude liée au flux d'exhalation du radon

permet de combler en partie l'écart observé entre les concentrations en radon dans l'eau mesurées et calculées, la différence reste cependant importante. En effet, en prenant en compte l'incertitude sur le flux, les activités volumiques du radon dans l'eau les plus importantes calculées pour le forage B1 et B3 sont respectivement de 470 et 190 Bq.L⁻¹. Il y a donc toujours un écart de 230 Bq.L⁻¹ pour le forage B1 et 430 Bq.L⁻¹ pour le forage B3 avec les concentrations du radon mesurées dans l'eau de ces forages en décembre 2004.

d) Influence des variations de l'épaisseur de la fracture, h

Selon la loi cubique (équation 6), si une fracture est représentée sous la forme de deux plans parallèles, son épaisseur varie en fonction du cube de sa transmissivité. Les incertitudes liées à l'estimation de la transmissivité des forages étant grandes, elle peut varier d'un facteur 2 par rapport à l'estimation qui en a été faite, une incertitude de 30% sur l'épaisseur des fractures semble une hypothèse réaliste.

L'épaisseur des fractures est l'un des deux facteurs, avec le flux d'exhalation du radon des roches, qui influence la concentration en radon maximum susceptible d'être théoriquement atteinte dans l'eau de la fracture (équation 5). Si le temps de résidence de l'eau dans la fracture est grand, l'activité volumique du radon varie inversement avec l'ouverture de la fracture. Selon le modèle de Nelson et al. (1983), l'eau circulant dans une fracture plus étroite aura donc une concentration en radon plus élevée. Cependant, réduire l'épaisseur des fractures ne permet pas d'atteindre les concentrations en radon mesurées dans l'eau des forages B1 et B3. En effet, il faudrait envisager des ouvertures de fracture comprises entre 0,4 et 0,6 mm afin de modéliser convenablement les activités volumiques mesurées dans ces forages. Ces épaisseurs de fractures sont incompatibles avec celles estimées à partir des transmissivités mesurées dans ces forages, qui sont respectivement de 1,2 et 2,3 mm pour les forages B1 et B3.

Nous avons appliqué un modèle, considérant une fracture unique, à un site dont les flux hydrauliques ne subissent pas d'influence anthropique. Afin de tester certaines des hypothèses formulées, notamment la dépendance de la concentration en radon au débit de l'eau, nous avons modifié les flux hydrauliques, en réalisant des essais de pompages dans les forages. Les résultats obtenus sont présentés ci-après.

I.2. Aquifère en conditions de flux imposés : essais de pompages.

Selon le modèle de Nelson et al. (1983), lorsque le temps de résidence de l'eau dans la fracture excède plusieurs demi-vies du radon-222, la concentration en radon maximum susceptible d'être mesurée est formulée par l'équation (5). Le flux d'exhalation de la roche, E et l'épaisseur de la fracture, h semblent alors avoir l'influence la plus importante sur l'activité volumique du radon dans l'eau. En revanche, le débit de l'eau dans la fracture, Q et le rayon du disque, b ont une influence plus réduite sur les variations de concentrations du radon dans l'eau. Cependant, il faut rappeler que les incertitudes sur les paramètres E et h ne sont pas en mesure d'expliquer les faibles concentrations calculées pour les forages B1 et B3. Afin d'estimer la validité du modèle à fracture unique, nous avons alors testé la relation entre le débit Q et la concentration en radon de l'eau, grâce à des expérimentations de terrain. Quand le débit de l'eau augmente dans la fracture, une diminution de l'activité volumique du radon dans l'eau est prévue par l'équation (4).

I.2.1. Evolution temporelle de la concentration en radon dans l'eau d'un forage au cours de son pompage.

Nous avons réalisé des essais de pompages dans les forages B1, B2, B3 et F22 du site de Stang-er-Brune en mai 2006. Nous avons effectué des pompages par palier, c'est-à-dire que le débit du pompage a été augmenté progressivement et ajusté en fonction du rabattement de la nappe observé dans chaque puits. Les débits et la durée des pompages sont indiqués dans le Tableau IV.3.

Avant de débiter les pompages, nous avons tout d'abord mesuré la concentration en radon dans l'eau des forages à différentes profondeurs, afin de disposer des concentrations de référence en conditions de flux hydrauliques naturelles. Puis, les pompages ont été réalisés successivement dans les forages B2, B3, F22 et pour terminer B1. Pendant le pompage dans un forage donné, nous avons suivi, à une profondeur constante, l'évolution de l'activité volumique du radon dans l'eau de ce forage. La Figure IV.6 présente les résultats obtenus dans les forages B1, B2 et B3.

Tableau IV.3 : Débit et durée des pompages réalisés dans les forages B2 B3, F22 et B1 en mai 2006.

Forage pompé	Date	Débit du pompage (L.s ⁻¹)	Durée du pompage (min)
B2	16/05/2006	0,10	30
		0,20	50
		0,75	145
		2,30	85
B3	16/05/2006	0,20	30
		0,80	130
		2,10	70
F22	17/05/2006	0,17	75
		0,47	45
		0,45	35
		0,68	85
B1	18/05/2006	0,16	70
		0,70	25
		0,70	35
		1,90	50

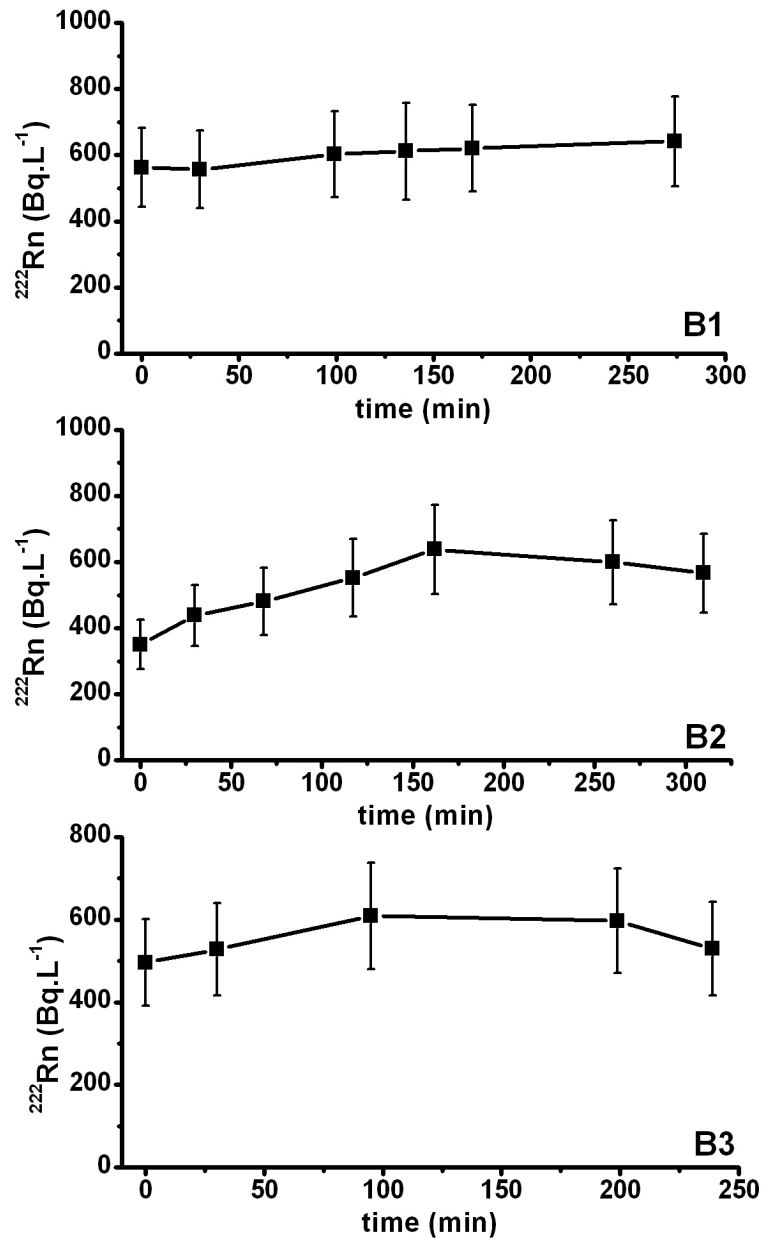


Figure IV.6 : Evolution de la concentration en radon dans l'eau des forages B1, B2 et B3 pendant les tests réalisés en mai 2006. Les concentrations ont été mesurées pendant la durée du pompage dans le forage concerné.

Aucune variation significative n'apparaît dans les forages B1 et B3. Dans le forage B2, une augmentation est visible pendant la première partie du pompage, suivie ensuite par une légère décroissance. Contrairement aux prévisions du modèle de Nelson et al. (1983), l'activité volumique du radon dans l'eau des forages du site croît ou reste constante lorsque le débit de l'eau dans les fractures augmente pendant le pompage.

I.2.2. Evolution temporelle de la concentration en radon dans les eaux souterraines pendant les pompages.

Afin d'étudier l'influence d'un pompage sur la concentration en radon dans les eaux souterraines de l'ensemble du site, nous avons procédé à des essais de pompages sur les forages B1, B2, B3 et F22. Pendant que l'eau d'un forage est pompée, la concentration en radon dans l'eau est mesurée à différents moments dans le forage pompé, ainsi que dans les 3 autres forages. Le graphique de la Figure IV.7 présente l'évolution de la concentration dans chacun des forages précités, au cours de l'ensemble des pompages réalisés du 16 au 18 mai 2006. Le premier point de chaque courbe représente la concentration mesurée avant le démarrage des tests.

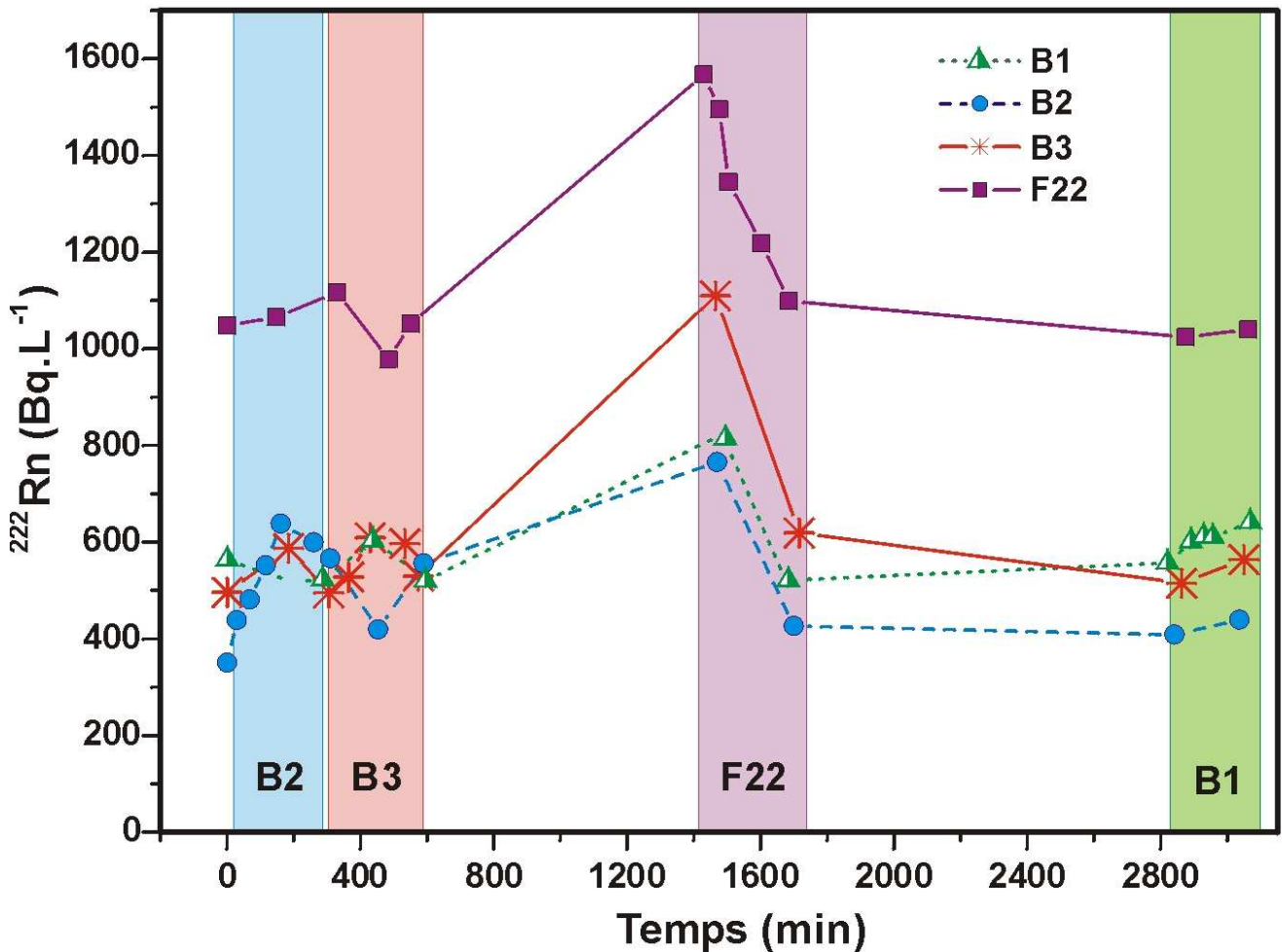


Figure IV.7 : Variation globale de la concentration en radon dans l'eau des forages du site de Stang-er-Brune, au cours de la durée totale des essais de pompages effectués en mai 2006. La concentration a été mesurée dans le forage pompé ainsi que dans les 3 autres forages afin d'étudier l'influence globale du pompage sur la concentration en radon dans les eaux souterraines du site. Les barres verticales colorées indiquent le forage pompé et la durée du pompage.

Après la première série de pompages réalisés le premier jour dans les forages B2 et B3, les pompes ont été arrêtées pour la nuit. Le lendemain, avant la reprise des tests, la concentration en radon a été mesurée dans chacun des puits. Une tendance particulière apparaît, après la première série de pompages réalisés. Pendant la durée où les pompes ont été arrêtées (environ 14 h), l'activité volumique du radon s'est clairement accrue dans l'eau de tous les forages. En effet, celle-ci a augmenté d'environ 50% dans les forages B1, B2 et F22 et d'un facteur deux dans le forage B3.

Cette réponse décalée de l'aquifère, par rapport aux pompages, est observée uniquement après les pompages successifs dans les forages B2 et B3. Ce pompage intensif pendant une journée a provoqué une diminution du niveau piézométrique sur l'ensemble du site (Figure IV.8). Bien qu'une remontée rapide de ce niveau ait été observée dans tous les forages immédiatement après l'arrêt de la pompe à la fin de chaque pompage, le temps nécessaire pour un retour à l'équilibre complet a été de 6 à 8h.

Par ailleurs, la concentration en radon dans l'eau, qui avait considérablement augmenté après la première série de pompage, décroît immédiatement dans tous les forages, après la mise en route du pompage dans le forage F22. Les concentrations atteignent rapidement les valeurs mesurées à la fin du pompage dans le forage B2.

Ces résultats mettent en avant deux phénomènes : (1) une augmentation importante de la concentration en radon dans l'eau visible après les tests de pompages les plus significatifs (c'est-à-dire lorsqu'une diminution importante du niveau piézométrique est observée) et (2) la disparition immédiate de cette augmentation dès qu'un léger pompage est à nouveau mis en route. Dans les paragraphes suivants, des hypothèses seront formulées pour tenter d'expliquer ces phénomènes.

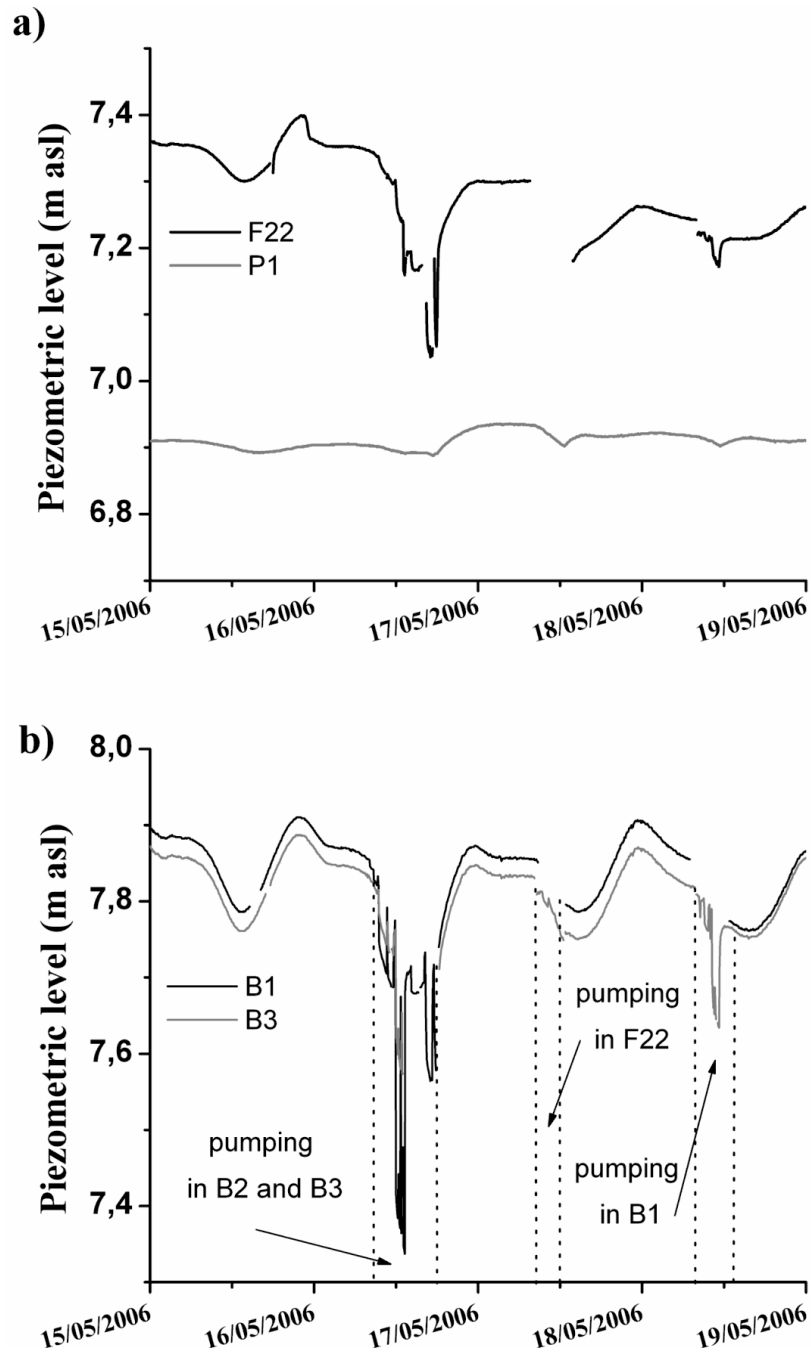


Figure IV.8 : Variations du niveau piézométrique dans les forages F22, B1 et B3 ainsi que dans le piézomètre P1 durant les essais de pompage. Les lignes en pointillé indiquent la durée des pompages dans les différents forages.

I.2.3. Rôle et influence de la matrice.

I.2.3.1 Les échanges fracture-matrice sont-ils une source potentielle de radon de l'eau ?

Afin d'expliquer l'augmentation de la concentration en radon dans l'eau après l'arrêt des pompages dans les forages B2 et B3 à la fin du premier jour de tests, plusieurs hypothèses sont

envisageables. Il est tout d'abord possible de considérer la contribution d'une eau enrichie en radon provenant d'une zone encore inconnue à ce jour. En d'autres termes, le réseau de fractures perméables serait connecté à une autre zone perméable où la concentration en radon dans l'eau serait beaucoup plus élevée. Toutefois, cette hypothèse semble devoir être écartée pour plusieurs raisons. Tout d'abord, l'existence, à proximité immédiate du site d'étude, d'une zone de l'aquifère où la concentration en radon de l'eau serait supérieure à celles mesurées dans la zone des forages n'a pas été mise en évidence à ce jour. Ensuite, cette hypothèse ne permet pas d'expliquer pourquoi une augmentation de la concentration en radon dans l'eau est observée uniquement après les pompages dans les forages B2 et B3 et pas après les pompages dans les autres puits. En effet, étant donné que les forages sont connectés les uns aux autres (Le Borgne et al., soumis), le pompage dans le forage F22 aurait dû provoquer une augmentation encore plus nette de l'activité volumique du radon dans l'eau au lieu de la faire décroître (Figure IV.7).

Une autre explication possible serait d'évoquer la contribution d'une eau enrichie en radon qui proviendrait de la matrice rocheuse. Les échanges fracture/matrice sont fortement dépendants des gradients de charge hydraulique. Les pompages successifs dans les forages B2 et B3 pourraient avoir provoqué un déséquilibre prolongé entre la charge hydraulique de la matrice et celle de la fracture. Le gradient de charge hydraulique lié à ce déséquilibre entraînerait la formation de légers flux d'eau de la matrice rocheuse vers les fractures. En d'autres termes, après le pompage majeur le premier jour, l'activité volumique dans l'eau du réseau de fractures n'aurait plus uniquement comme origine le flux d'exhalation des surfaces des fractures mais aussi un flux d'eau enrichie en radon provenant de la matrice rocheuse. Toutefois, cette hypothèse impliquerait que la concentration en radon de l'eau contenue dans les pores de la matrice rocheuse soit beaucoup plus élevée que celle mesurée dans l'eau circulant dans les fractures. L'estimation de cette concentration est développée dans la partie suivante.

Par ailleurs, l'implication de la roche encaissante serait en accord avec la réponse décalée de l'aquifère après les pompages dans B2 et B3. Bien que le déséquilibre entre les charges hydrauliques de la matrice et du réseau de fracture perméable soit maximum pendant le pompage, le temps de transfert de l'eau vers la matrice dépend de la perméabilité de la roche encaissante qui est relativement faible. Une réponse lente de la matrice est donc prévisible, mais peut être observée uniquement si un déséquilibre de charge hydraulique important existe entre les deux réservoirs (matrice et fractures). Dans le cas d'une zone faiblement perméable, les flux d'eau sont très lents, impliquant qu'une durée plus importante soit nécessaire pour recharger l'eau des fractures avec l'eau de la matrice. C'est ce qui semble être observé pendant les essais de pompage réalisés dans les

forages du site. En outre, cette interprétation serait en accord avec les études menées sur la chimie de l'eau dans des milieux hétérogènes semblables. Ces études suggèrent, en effet, que des sites microscopiques, localisés dans la matrice à faible perméabilité, peuvent servir de réacteurs biogéochimiques (Legout et al., 2005; Tarits et al., 2006). En effet, il a été mis en évidence que des biofilms bactériens peuvent se développer dans ces microsites et influencer sur la chimie de l'eau circulant dans les fractures.

De plus, étant donné que le réservoir constitué par le réseau de fractures présente un très faible emmagasinement, l'eau contenue dans les fractures peut être évacuée facilement par un faible pompage, tel que celui réalisé dans F22. En d'autres termes, il est envisageable que le faible pompage effectué dans le forage F22 ait eu un effet limité sur la charge hydraulique globale du site, mais qu'il ait contribué à renouveler entièrement et rapidement l'eau des fractures des forages avec celle qui circule habituellement dans cette zone de l'aquifère. La diminution immédiate de l'activité volumique du radon dans l'eau de l'ensemble des forages du site de Stang-er-Brune après le début du pompage dans le forage F22 renforce cette hypothèse.

1.2.3.2. Estimation de la concentration en radon de l'eau porale de la roche encaissante:

Les variations de l'activité volumique du radon dans l'eau et de la charge hydraulique dans les forages, pendant les essais de pompage, permettent de proposer un modèle conceptuel afin d'expliquer la différence entre les concentrations en radon mesurées dans l'eau des zones à forts débits du site (forages B1 et B3) et celles calculées en utilisant le modèle proposé par Nelson et al. (1983). Le modèle conceptuel que nous proposons consiste à considérer l'aquifère sous la forme d'un système à perméabilités multiples : le réseau de fracture, à perméabilité élevée et la matrice rocheuse, à faible perméabilité.

Selon cette hypothèse, le "réseau de fractures" serait constitué des zones d'écoulement d'eau préférentielles, alors que sous la dénomination "matrice rocheuse" seraient regroupés à la fois la roche mère non fracturée, les surfaces des fractures principales ainsi qu'éventuellement des réseaux de fractures secondaires de plus faible perméabilité (Figure IV.9). Ainsi, l'activité volumique du radon observée dans les eaux souterraines pourrait être interprétée comme résultant du mélange de deux type d'eaux de concentrations en radon différentes : une eau circulant dans le réseau de fractures perméables, de concentration variable, et une eau de concentration élevée qui serait issue de la matrice partiellement altérée et localisée à proximité du réseau de fracture.

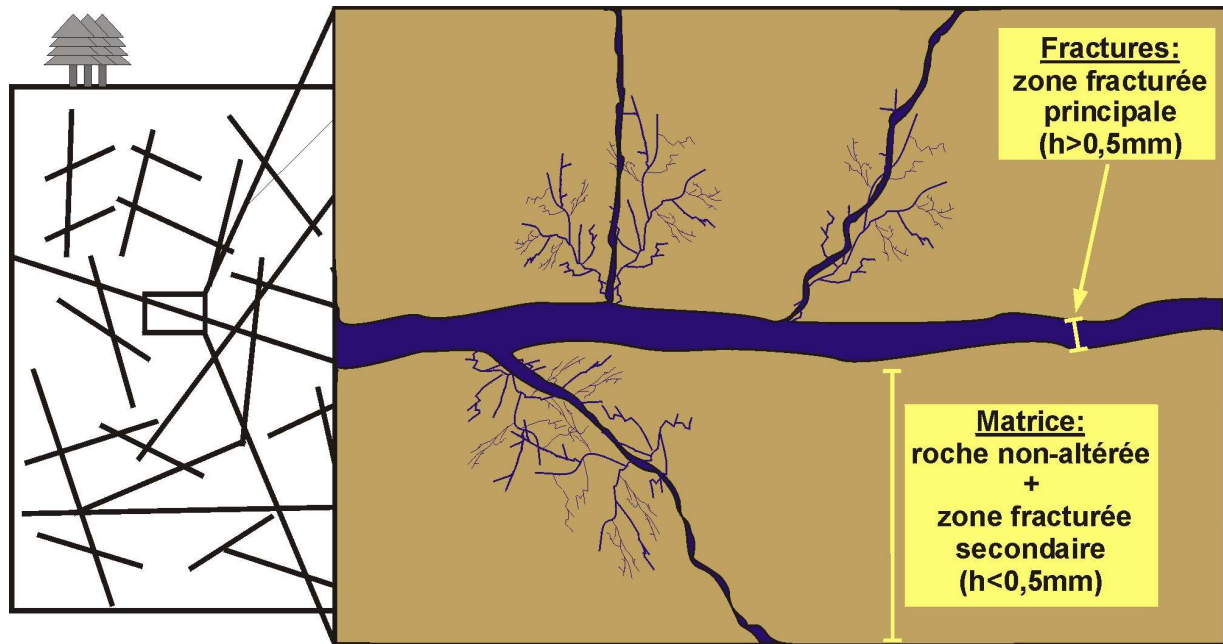


Figure IV.9 : Représentation schématique des notions de matrice et de réseau de fracture dans l'aquifère.

Comme il a été vu précédemment (§I.1.2.), la concentration en radon de l'eau circulant dans une fracture peut être estimée à l'aide d'un modèle de fracture unique tel que celui proposé par Nelson et al. (1983). Dans ce cas, l'activité volumique du radon dans l'eau dépend uniquement du flux d'exhalation du radon des surfaces de la fracture, de l'épaisseur de la fracture et du débit de l'eau dans cette dernière.

Les zones à faible perméabilité, connectées à cette fracture, ont des propriétés physiques proches de celle de la matrice rocheuse. Un modèle conçu pour calculer la concentration en radon dans les pores d'une roche peut donc être utilisé pour estimer la concentration en radon de l'eau contenue dans la matrice rocheuse. Wanty et al. (1992), ainsi que Przylibski (2000), ont proposé un modèle pour déterminer la concentration en radon dans l'eau des pores d'une roche, C_{Rn} (Bq.L^{-1}) dont l'activité massique en radium est connue :

$$C_{Rn} = K_{em} \times C_{Ra} \times \left(\frac{1-\phi}{\phi} \right) \times \rho \times (1 - e^{-\lambda t}) \quad (7)$$

- Avec,
- K_{em} , coefficient d'émanation de la roche (-) ;
 - C_{Ra} , concentration en radium de la roche ($Bq.kg^{-1}$) ;
 - ρ , masse volumique de la roche ($kg.dm^{-3}$) ;
 - ϕ , porosité de la roche (-) ;
 - λ , constante de désintégration du radon ($2,1.10^{-6} s^{-1}$) ;
 - t , temps de contact entre l'eau et la roche (s).

L'équation (7) peut être utilisée afin de calculer l'activité volumique du radon dans les eaux de la matrice, pour un temps de contact eau-roche supérieur à 10 demi-vies du radon-222 (32,8 jours). A l'aide de cette équation, nous avons tracé une série de courbes pour différentes valeurs de porosité et de coefficient d'émanation de la roche (Figure IV.10).

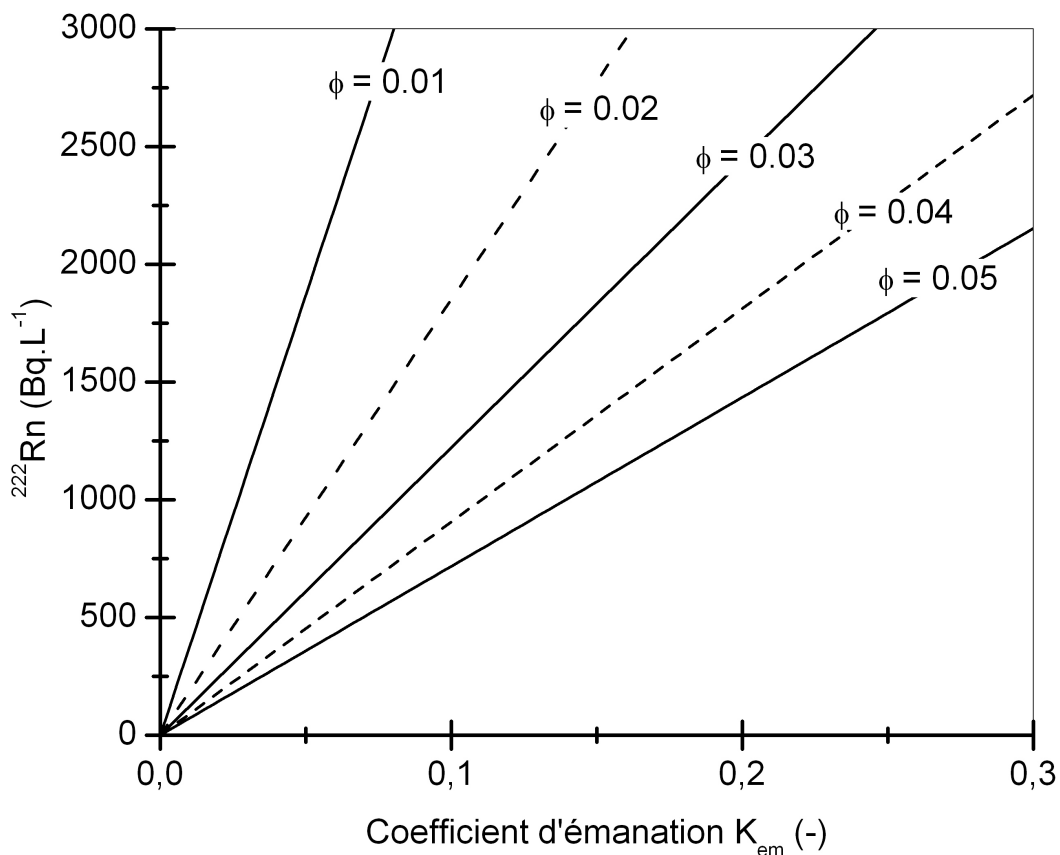


Figure IV.10 : Evolution de l'activité volumique du radon dans l'eau porale de la matrice rocheuse en fonction du coefficient d'émanation pour différentes valeurs de porosité de la roche.

La porosité de la roche est comprise entre 1 et 5%, la masse volumique moyenne de la roche est estimée à $2700 kg.m^{-3}$ et l'activité massique en radium-226 de la roche est de $150 Bq.kg^{-1}$

(moyenne des concentrations en radium mesurées sur les échantillons de granite extraits du forage B1). Comme le montre la figure IV-10, pour un coefficient d'émanation donné, la concentration en radon dans l'eau est plus importante pour les roches à faible porosité. Wanty et al. (1992) et Przylibski (2000) ont estimé des coefficients d'émanation pour les roches granitiques toujours inférieurs à 0,3. Pour une matrice granitique partiellement altérée, une porosité de 4-5% et un coefficient d'émanation de 0,2-0,3 semblent constituer de bonnes estimations. En conséquence, une gamme réaliste de concentrations en radon dans les pores de la matrice granitique s'étend de 1400 à 2700 Bq.L⁻¹. Ce résultat confirme que la concentration en radon, dans l'eau des pores de la roche encaissante granitique de l'aquifère de Ploemeur, peut être largement supérieure à celle mesurée dans l'eau des forages et provenant des fractures perméables.

La variabilité des activités volumiques du radon dans l'eau du site de Stang-er-Brune semble donc être influencée par la variation des caractéristiques hydrauliques et hydrogéologiques du réseau de fractures dans cette zone, ainsi que par des échanges hydrauliques entre la matrice et les fractures. L'estimation satisfaisante de la concentration en radon de l'eau des forages B2 et F22, en utilisant un modèle de fracture simple, appuie l'hypothèse de l'influence de l'ouverture de fractures sur l'activité volumique du radon dans l'eau. Par ailleurs, l'effet des pompages sur la concentration en radon dans l'eau des forages semble également indiquer un apport en radon dans l'eau du réseau de fractures sous la forme d'un faible flux hydraulique de la matrice granitique vers les fractures. Cette hypothèse permettrait d'expliquer les concentrations en radon mesurées dans B1 et B3.

Comme exposé précédemment, les eaux souterraines du site de Stang-er-Brune ne sont pas exploitées. Les flux hydrauliques ne sont donc pas perturbés par l'influence d'un pompage, à l'exception de la période où nous avons réalisés des tests hydrauliques. A l'opposé, le site de Kermadoye subit une pression anthropique importante car les réserves en eaux sont soumises à un pompage permanent. Dans ce qui suit, nous allons examiner les concentrations en radon mesurées dans l'eau de ce site ainsi que les résultats obtenus lors de leur modélisation.

II. CONDITIONS DE FLUX "ANTHROPIQUES" : SITE DE KERMADOYE

Ce chapitre est consacré à l'étude des activités volumiques du radon mesurées dans l'eau des forages du site de Kermadoye. Rappelons, que contrairement au site de Stang-er-Brune, environ 10^6 m^3 d'eau sont pompés chaque année dans cette zone, afin d'alimenter en eau potable les habitants de la commune de Ploemeur. Les débits moyens des pompes installées dans les trois forages F29, F31 et Pe sont respectivement d'environ 25, 35 et $80 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$. Les représentations de la Figure IV.11 illustrent les effets des pompages sur le niveau de la nappe dans les premières années de l'exploitation des réserves en eaux souterraines de Ploemeur.

Les activités volumiques du radon mesurées dans l'eau des forages du site de Kermadoye ont été présentées dans le chapitre III. Dans cette partie, nous nous intéressons plus particulièrement aux concentrations mesurées dans 6 forages du site : F11, F19, F28, F32, F34 et F35. Ces forages ont été sélectionnés en raison de la caractérisation plus détaillée de leurs propriétés hydrauliques réalisée par Le Borgne et al. (2006). En particulier, des mesures de débits et de transmissivités sont disponibles pour ces forages, contrairement aux autres puits du site.

Comme précédemment pour le site de Stang-er-Brune, nous comparons les concentrations mesurées dans l'eau des différents forages aux concentrations calculées en utilisant le modèle de fracture unique (Nelson et al., 1983), et discutons des résultats obtenus dans le but d'améliorer notre connaissance du fonctionnement hydrogéologique de ce site.

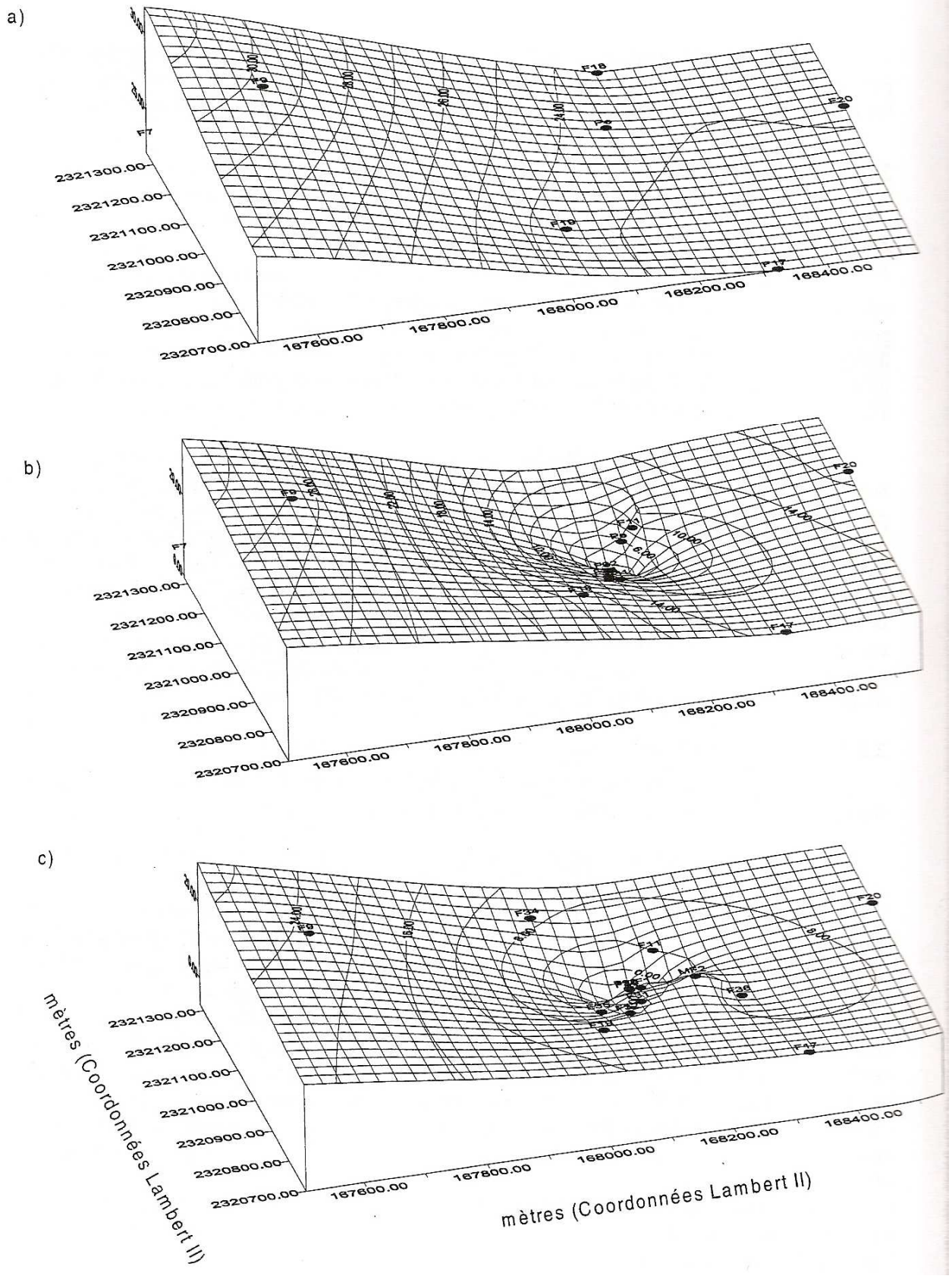


Figure IV.11 : Surfaces 3D du niveau piézométrique de la nappe à 3 dates différentes depuis la mise en exploitation de l'aquifère : a) 27/05/91, b) 25/02/94 et c) 27/02/97. (Touchard, 1999)

II.1. Rappels des caractéristiques du site de Kermadoye : hydrogéologie, géologie et activités volumiques du radon mesurées dans l'eau.

Une description de la géologie du site a été faite à partir des cuttings extraits lors de la réalisation des forages et a été résumée par Touchard (1999). Elle est détaillée dans le chapitre II. Les logs géologiques des forages F11, F19, F28, F32, F34 et F35 sont représentés pour rappel dans la figure IV-12.

L'hydrogéologie du site a été caractérisée lors de différentes études (Touchard, 1999, Le Borgne, 2004, Le Borgne et al., 2006 ; voir chapitre II). Les flux verticaux ont précédemment été déterminés par Le Borgne (2004) par débitmétrie en conditions de flux ambiants, puis en actionnant une pompe dans le forage étudié (Figure IV.13). Des flux verticaux ascendants ont été nettement mis en évidence dans les forages F11, F28, F32 et F34. Dans le forage F19, un très faible flux vertical ascendant a été mesuré. En revanche, dans le forage F35, le flux part à la profondeur de 26 m et se dirige vers le fond du puits jusqu'à la profondeur de 110 m. Le Borgne et al., 2006 ont également identifié la profondeur des arrivées d'eaux principales dans chacun de ces forages. Elles sont respectivement localisées à 70, 75, 75, 85, 80 et 26 m dans les forages F11, F19, F28, F32, F34 et F35 (Figure IV-12).

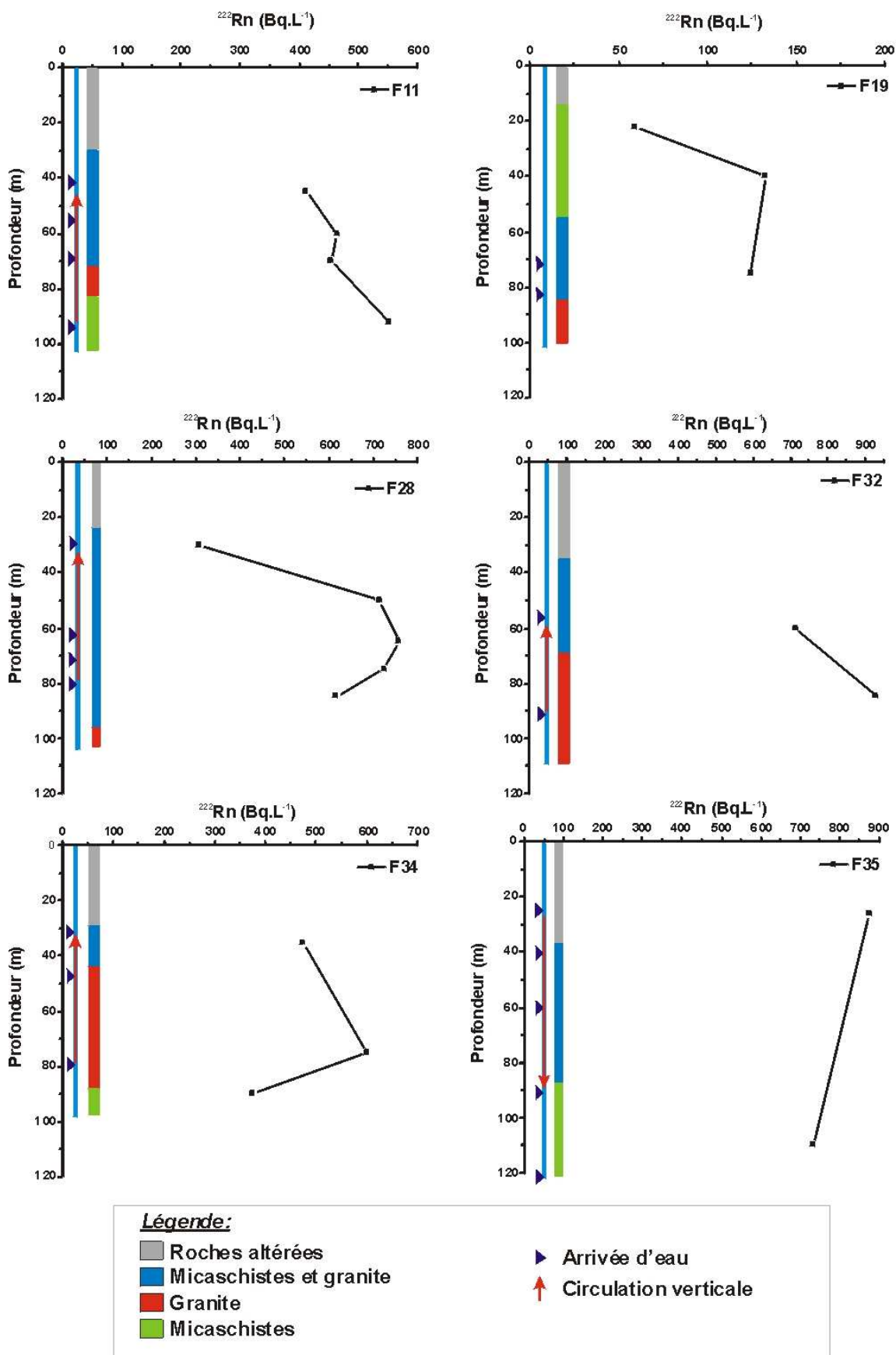


Figure IV.12 : Evolution de la géologie et de l'activité volumique du radon mesurée dans l'eau en fonction de la profondeur dans les forages du site de Kermadoye. Les caractéristiques hydrogéologiques de chaque forage (arrivées d'eau et flux verticaux) sont également reportées.

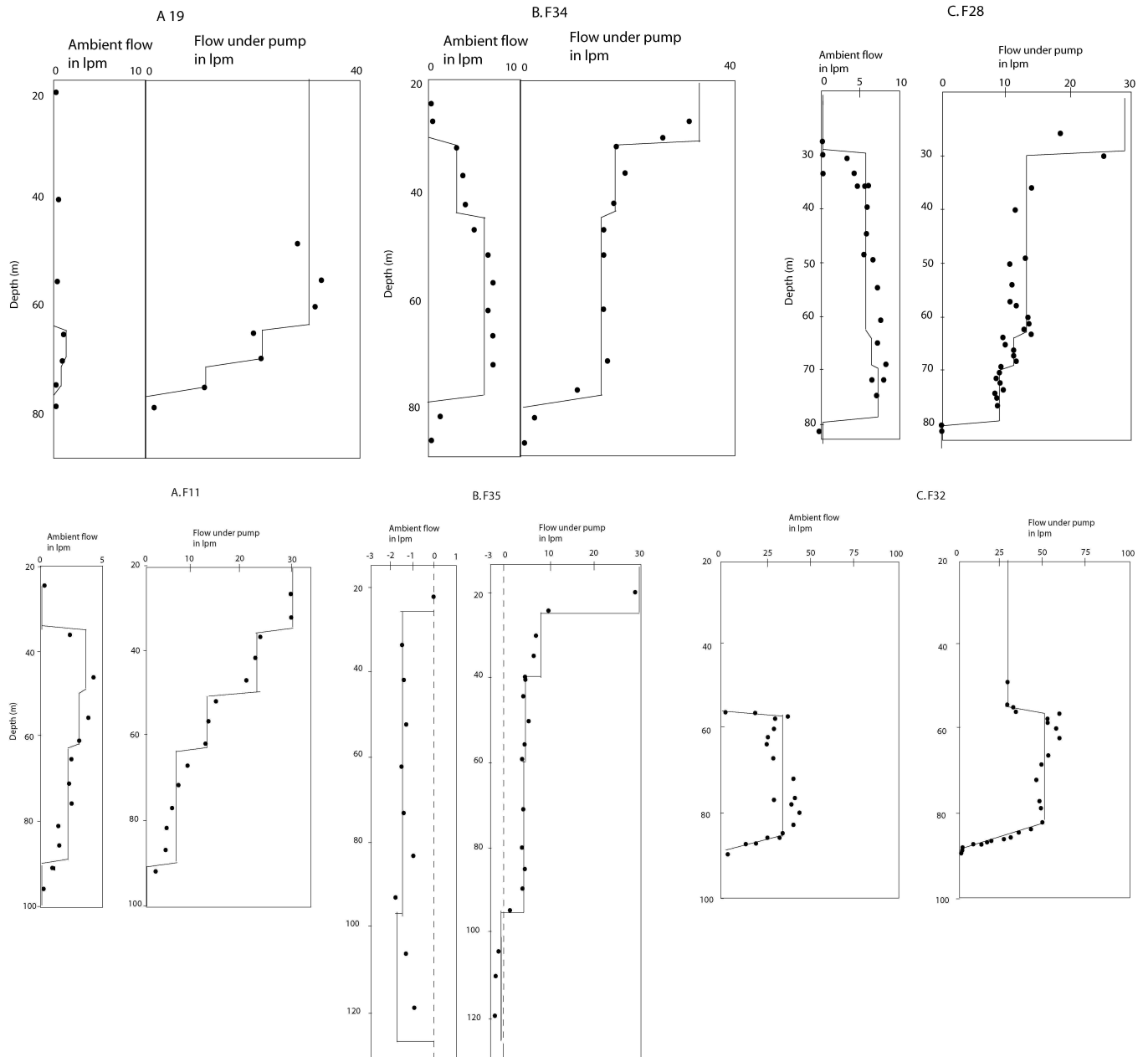


Figure IV.13 : Résultats des mesures de débits réalisées dans les forages F11, F19, F28, F32, F34 et F35 en conditions de flux ambiantes et pompées. (Le Borgne , 2006)

Les débits, les transmissivités et les coefficients d'emmagasinement mesurés ou calculés à ces profondeurs sont répertoriés dans le Tableau IV.4. Les débits sont compris entre $1,7 \cdot 10^{-5}$ (forage F19) et $5,8 \cdot 10^{-4} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ (forage F32) et les transmissivités entre $4 \cdot 10^{-5}$ (forage F11) et $3,5 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ (forage F19).

Tableau IV.4 : Propriétés hydrauliques des forages F11, F19, F28, F32, F34 et F35 : débit de l'eau dans les fractures (Q), transmissivité (T) et coefficient d'emmagasinement (S).

Forage	Profondeur (m)	Q ($\text{m}^3.\text{s}^{-1}$)	T ($\text{m}^2.\text{s}^{-1}$)	S (-)
F11	70	$3,7.10^{-5}$	$4,0.10^{-5}$	$2,0.10^{-3}$
F19	75	$1,7.10^{-5}$	$3,5.10^{-3}$	$1,7.10^{-3}$
F28	75	$1,2.10^{-4}$	$5,0.10^{-5}$	$1,3.10^{-5}$
F34	75	$1,0.10^{-4}$	$1,7.10^{-4}$	$3,2.10^{-3}$
F32	85	$5,8.10^{-4}$	$3,5.10^{-4}$	$3,0.10^{-3}$
F35	26	$2,5.10^{-5}$	$6,0.10^{-5}$	$2,0.10^{-3}$

Données d'après Le Borgne et al. (2006)

Nous reprenons le modèle proposé par Nelson et al. (1983) et l'appliquons aux arrivées d'eau principales de chacun de ces forages.

II.2. Application du modèle à fracture unique

II.2.1. Détermination des valeurs des paramètres du modèle pour les forages du site de Kermadoye.

a) Le flux d'exhalation, E

Tous les forages réalisés à Kermadoye ont été destructifs. Par conséquent, si des échantillons de cuttings ont été conservés, aucune carotte de roche n'est disponible pour ce site. De plus, comme l'altération en surface est importante, il n'y a pas d'affleurement rocheux. Nous n'avons pas pu prélever d'échantillon de roche entier sur lequel réaliser des mesures du flux d'exhalation du radon. Par défaut, nous avons donc considéré que le flux d'exhalation des surfaces des fractures du granite dans la zone de Kermadoye était identique à celui mesuré sur l'échantillon de granite du site de Stang-er-Brune. Pour un échantillon de roche saturé en eau, ce flux a été estimé à $0,65 \text{ mBq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$.

b) Epaisseur des fractures, h

Pour la fracture principale de chaque forage, une épaisseur équivalente a été calculée à partir des transmissivités (estimées par Le Borgne, 2004) en utilisant la loi cubique. La gamme des épaisseurs équivalentes obtenues ainsi, pour les forages du site de Kermadoye sélectionnés, s'étend de 0,8 à 3,5 mm (Tableau IV-5).

Tableau IV.5 : Epaisseurs équivalentes (h) calculées pour les fractures des forages du site à partir des transmissivités (T) en utilisant la loi cubique

Forage	Profondeur (m)	T ($m^2 \cdot s^{-1}$)	h (mm)
F11	70	$4,0 \cdot 10^{-5}$	0,8
F19	75	$3,5 \cdot 10^{-3}$	3,5
F28	75	$5,0 \cdot 10^{-5}$	0,9
F34	75	$1,7 \cdot 10^{-4}$	1,3
F32	85	$3,5 \cdot 10^{-4}$	1,6
F35	26	$6,0 \cdot 10^{-5}$	0,9

c) Débit de l'eau dans les fractures, Q

Dans les forages, un flux vertical se crée entre la fracture ayant la charge hydraulique la plus grande et celle ayant la charge hydraulique la plus faible. Le flux vertical mesuré dans chaque forage à la profondeur de la fracture principale (fracture ayant la charge hydraulique la plus élevée) est considéré comme proche du débit de l'eau circulant dans la fracture. Les débits mesurés à ces profondeurs sont compris entre $1,7 \cdot 10^{-5}$ et $5,8 \cdot 10^{-4} m^3 \cdot s^{-1}$ (Tableau IV.4).

d) Rayon du disque source, b

Pour le site de Kermadoye, la longueur des fractures est, en théorie, infinie. Cependant, le rayon du disque modélisant la fracture produisant du radon est limité par la décroissance radioactive du radon. En effet, on considère, qu'au-delà de 38 jours, il ne reste plus qu'environ 0,098 % du radon initialement présent dans l'eau. La valeur du paramètre b correspond donc à la distance que l'eau peut parcourir dans la fracture pendant cette durée.

Le rayon d'influence d'un pompage au terme d'un temps t est exprimé (de Marsily, 1986) par :

$$r_0 = \sqrt{2,25 \frac{T \cdot t}{S}}$$

Avec,

- r_0 le rayon d'influence du pompage
- T la transmissivité de l'aquifère ($m^2 \cdot s^{-1}$)
- S le coefficient d'emmagasinement de l'aquifère (-)
- t le temps depuis le début du test de pompage (s)

Les rayons obtenus pour les fractures principales des 6 forages du site de Kermadoye étudiés dans cette partie sont compris entre 320 et 4400 m (Tableau IV.6).

Tableau IV.6 : Estimation des rayons d'influence calculés pour les forages du site de Kermadoye.

Forage	Profondeur (m)	T ($\text{m}^2.\text{s}^{-1}$)	S (-)	$r_o = b$ (m)
F11	70	$4,0.10^{-5}$	$2,0.10^{-3}$	300
F19	75	$3,5.10^{-3}$	$1,7.10^{-3}$	3300
F28	75	$5,0.10^{-5}$	$1,3.10^{-5}$	4400
F34	75	$1,7.10^{-4}$	$3,2.10^{-3}$	400
F32	85	$3,5.10^{-4}$	$3,0.10^{-3}$	800
F35	26	$6,0.10^{-5}$	$2,0.10^{-3}$	500

Ces valeurs sont largement supérieures à celles que nous avons considérées pour le site de Stanger-Brune. En effet, les forages du site de Stanger-Brune sont localisés près d'une zone de décharge de l'aquifère. Le rayon d'influence des fractures à cet endroit est donc fortement limité. En revanche, à Kermadoye, il n'y a pas de limite physique et l'augmentation des flux sous l'effet du pompage municipal accroît l'aire drainée par la fracture.

II.2.2. Comparaison des activités volumiques du ^{222}Rn mesurées *in situ* avec les prévisions du modèle.

Le Tableau IV.7 récapitule les valeurs des paramètres estimées pour les forages F11, F19, F28, F32, F34 et F35.

Tableau IV.7 : Valeurs de transmissivité T, d'épaisseur équivalente h, de débit Q, de rayon du disque source b et de flux d'exhalation E utilisées pour modéliser les concentrations en radon dans l'eau des fractures. Les concentrations en radon mesurées sur site sont également mentionnées.

Forage	Profondeur de la fracture (m)	^{222}Rn (Bq.L^{-1})	Date	h (mm)	Q ($\text{m}^3.\text{s}^{-1}$)	b (m)	E ($\text{mBq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$)
F11	70	460	Juin 2004	0,8	$3,7.10^{-5}$	320	0,65
F19	75	125	Juin 2004	3,5	$1,7.10^{-5}$	3300	0,65
	-	205	Avril 2005	-	-	-	-
	-	245	Mai 2005	-	-	-	-
F28	75	730	Juin 2004	0,9	$1,2.10^{-4}$	4400	0,65
F34	75	602	Juin 2004	1,3	$1,0.10^{-4}$	400	0,65
	-	726	Avril 2005	-	-	-	-
F32	85	716	Mai 2005	1,6	$5,8.10^{-4}$	780	0,65
F35	26	780	Juin 2004	0,9	$2,5.10^{-5}$	520	0,65

Les concentrations en radon mesurées dans l'eau des forages F11, F28, F32 et F35 en juin 2004 sont respectivement de 460, 730, 716 et 780 Bq.L⁻¹. Dans ces forages, les variations temporelles de la concentration sont du même ordre de grandeur que l'incertitude analytique de la mesure.

En revanche, une variation temporelle non négligeable de l'activité volumique du radon a été notée dans les forages F19 et F34 (chapitre III). Dans F19, l'activité volumique du radon dans l'eau mesurée était de 125 Bq.L⁻¹ en juin 2004, 205 Bq.L⁻¹ en avril 2005 et 245 Bq.L⁻¹, en mai 2005. Dans le forage F34, la concentration en radon était respectivement de 602 et 726 Bq.L⁻¹ en juin 2004 et avril 2005.

Les graphiques de la Figure IV.14 présentent l'évolution théorique de la concentration en radon dans l'eau obtenue, en fonction du débit de l'eau pour les forages F11, F19, F28, F32, F34 et F35. Les courbes ont été calculées à partir de l'équation (3) et des valeurs des paramètres présentées dans le Tableau IV.7. La courbe continue a été calculée en utilisant un flux d'exhalation du radon de la roche de 0,65 mBq.m⁻².s⁻¹ et les courbes en pointillés en considérant l'incertitude analytique associée à ce flux (± 0.2 mBq.m⁻².s⁻¹). Les points rouges correspondent aux concentrations mesurées dans l'eau de la fracture majeure de chaque forage aux dates indiquées dans le Tableau IV.7 et les points bleus à celles calculées pour les valeurs de débit estimé dans la fracture.

Ces résultats mettent en avant que, pour les valeurs des débits estimées dans les forages, la concentration en radon calculée n'est plus influencée par la variation du débit de l'eau dans la fracture. En effet, selon l'équation (5) du modèle, les effets de débit de l'eau dans la fracture sur l'activité volumique du radon peuvent être négligés lorsque le rayon b du disque modélisant la fracture est grand.

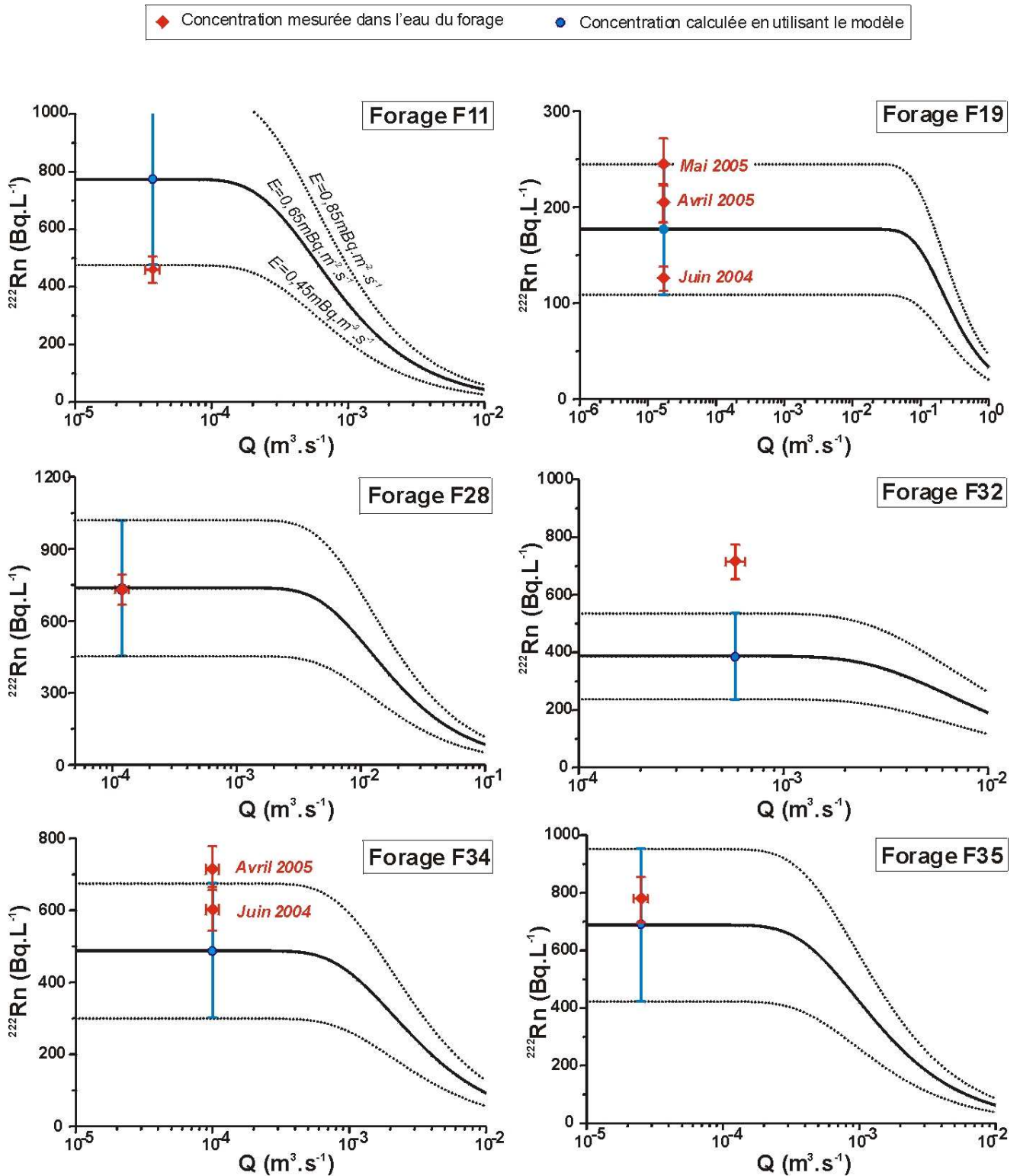


Figure IV.14 : Evolution théorique de la concentration en radon dans l'eau en fonction du débit de l'eau de la fracture et comparaison avec la concentration mesurée dans l'eau du forage. Les courbes ont été calculées en utilisant l'équation (3). Les points correspondent aux concentrations mesurées dans l'eau de la fracture principale de chaque forage.

Ensuite, les graphiques de la figure IV.14 indiquent que le résultat théorique obtenu pour le **forage F28** est très satisfaisant :

- Les activités volumiques du radon calculées dans l'eau de ce forage varient entre 453 et 1020 Bq.L⁻¹. L'écart entre la concentration mesurée en juin 2004 (731 Bq.L⁻¹) et celle, calculée en considérant un flux d'exhalation du radon de 0,65 mBq.m⁻².s⁻¹ (731 Bq.L⁻¹), est inférieur à l'incertitude analytique liée à la mesure de l'activité volumique du radon dans l'eau.

Les valeurs calculées pour les forages F19, F34 et F35 sont aussi relativement cohérentes :

- Les concentrations obtenues pour le **forage F19** varient entre 110 et 244 Bq.L⁻¹. Les activités volumiques du radon mesurées dans l'eau du forage varient entre juin 2004 et mai 2005, de 125 à 245 Bq.L⁻¹. Elles sont sensiblement similaires aux concentrations calculées.
- Les activités obtenues pour le **forage F34** sont comprises entre 300 et 675 Bq.L⁻¹. La concentration calculée avec un flux d'exhalation de 0,65 mBq.m⁻².s⁻¹ sous-estime la concentration mesurée dans l'eau du forage en juin 2004 d'environ 110 Bq.L⁻¹ mais celle calculée avec un flux de 0,85 mBq.m⁻².s⁻¹ la surestime d'environ 70 Bq.L⁻¹. Ainsi, les concentrations, calculées en considérant l'incertitude analytique sur le flux d'exhalation du radon de la roche, sont elles proches de la concentration mesurée en juin 2004. En revanche, la concentration mesurée en avril 2005 (726 Bq.L⁻¹) est légèrement supérieure à la gamme de concentration obtenue en appliquant le modèle.
- Enfin, pour le **forage F35**, les concentrations calculées s'étendent de 425 à 950 Bq.L⁻¹. L'activité volumique du radon dans l'eau calculée avec un flux d'exhalation de 0,65 mBq.m⁻².s⁻¹ est inférieure d'environ 100 Bq.L⁻¹ à celle mesurée dans l'eau du forage en juin 2004. Cette différence est néanmoins peu significative car elle est du même ordre de grandeur que l'incertitude analytique liée à la mesure de la concentration en radon dans l'échantillon d'eau prélevé.

Toutefois, il est à noter que pour les forages F11 et F32, des écarts significatifs existent entre la concentration en radon dans l'eau mesurée et celle calculée :

- La gamme des concentrations calculées pour le **forage F11** avec la valeur de débit mesurée dans le forage à 75 m ($Q = 3,7 \cdot 10^{-5} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$) et en tenant compte de l'incertitude liée au flux

d'exhalation s'étend de 475 à 1070 Bq.L^{-1} . L'activité volumique du radon mesurée dans l'eau du forage en juin 2004 (460 Bq.L^{-1}) est légèrement inférieure à ces valeurs.

- Dans le **forage F32**, la gamme des concentrations calculées s'étend de 240 à 535 Bq.L^{-1} . La concentration en radon mesurée en mai 2005 est supérieure de 180 Bq.L^{-1} à la concentration maximum calculée avec les valeurs des paramètres estimées pour ce forage.

II.2.3. Synthèse et discussion sur l'application du modèle de Nelson à un site pompé.

Pour le site de Kermadoye, soumis à l'influence permanente d'un pompage, les résultats obtenus en utilisant l'équation du modèle à fracture unique apparaissent majoritairement satisfaisants.

En effet, pour les forages F19, F28, F34 et F35, les différences observées entre les concentrations en radon dans l'eau modélisées et celles mesurées dans les forages peuvent être expliquées par les incertitudes analytiques associées à la mesure de la concentration en radon dans l'eau et à celle du flux d'exhalation du radon des surfaces des fractures (cf § I.1.2.3.).

Pour le forage F11, l'activité volumique du radon mesurée dans l'eau est légèrement inférieure à la gamme d'activités calculées en considérant l'incertitude sur le flux. Toutefois, si l'on tient compte de l'incertitude analytique liée à la mesure de la concentration en radon dans l'échantillon d'eau (10%), on peut considérer la différence entre les concentrations mesurée et calculée comme acceptable.

En revanche, pour le forage F32, la différence est trop grande pour être uniquement expliquée par les incertitudes analytiques associées à la mesure de la concentration en radon dans l'eau et à celle du flux d'exhalation du radon des surfaces des fractures. En effet, il faudrait envisager des flux d'exhalation environ deux fois supérieurs ($1,2 \text{ mBq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$) au flux maximum mesuré, pour calculer correctement l'activité volumique du radon mesurée dans l'eau de ce forage. Etant donné que nous ne disposons pas d'information directe sur le flux d'exhalation des roches de Kermadoye (les échantillons disponibles provenant uniquement de Stang-er-Brune), la possibilité d'une valeur plus élevée, pour caractériser le flux d'exhalation des roches sur ce site, n'est pas à exclure. Il serait donc envisageable qu'une zone drainée par le réseau de fracture du forage F32 présente un flux d'exhalation plus important. Cependant, cette hypothèse semble être contredite par les résultats obtenus dans les deux forages les plus proches de F32 : F28 et F35. En effet, ces deux forages sont situés à moins de 50 m du forage F32 et présentent un rayon d'influence b du même ordre de grandeur ou supérieur à celui estimé pour le forage F32. De plus, ces trois forages sont

partiellement connectés entre eux. Si une zone de l'aquifère était caractérisée par une concentration en radon plus élevée, son influence devrait être également visible dans les forages F28 et F35. Les résultats fournis par le modèle sous-estimeraient donc aussi la concentration en radon mesurée dans l'eau de ces forages. L'écart entre les activités volumiques du radon mesurée et calculée dans l'eau du forage F32 ne semble donc pas être lié à une mauvaise estimation du flux d'exhalation. Par ailleurs, il faut noter que le forage F32 est celui dans lequel le débit le plus élevé a été mesuré ($Q = 5,8 \cdot 10^{-4} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$). Il semblerait donc que la tendance observée pour le site de Stang-er-Brune soit confirmée. En effet, le modèle à fracture unique sous-estimerait la concentration en radon dans l'eau des fractures ayant un débit important.

En outre, les résultats obtenus pour le forage F19 sont également intéressants. En effet, des concentrations en radon différentes ont été mesurées dans l'eau de ce forage au cours des campagnes de mesures. Ces variations sont vraisemblablement liées à des changements de vitesse de circulation de l'eau dans les fractures liées à la diminution consécutive du niveau piézométrique de la nappe (chapitre III, §I.3.). Or, selon le modèle, les variations de débit ont une influence négligeable sur l'activité volumique du radon dans l'eau de ce forage (Figure IV.14). Toutefois, les activités volumiques du radon mesurées dans l'eau se situent dans la gamme de concentrations calculées en considérant les incertitudes analytiques, associées à la mesure de la concentration en radon dans l'eau et à celle du flux d'exhalation du radon des surfaces des fractures. Il est cependant peu vraisemblable que les changements de concentrations observés puissent être liés à des variations du flux d'exhalation du radon des roches. L'hypothèse du rôle prépondérant joué par les variations de débit de l'eau dans les fractures, reliée à la baisse du niveau global de la nappe, reste la plus plausible pour expliquer les variations temporelles des concentrations en radon dans l'eau observées dans le forage F19.

Les résultats obtenus pour les forages F19 et F32 soulèvent donc à nouveau la question de la pertinence à assimiler le réseau de fractures à une paire de plans parallèles et de l'importance que peut avoir l'influence du débit de l'eau sur la concentration en radon. En effet, pour ces deux forages, le débit joue un rôle particulier : le forage F32 est celui qui présente le flux vertical mesuré le plus important et des variations du débit dans le forage F19 semblent être à l'origine des changements de la concentration en radon dans l'eau mesurée. Pour ces deux forages, les résultats obtenus par le modèle de Nelson et al. (1983) sont moins satisfaisants que pour les autres forages du site. L'influence d'une eau provenant de la matrice, si elle n'est pas à exclure, ne semble pas en mesure d'expliquer les variations observées entre les forages dans la modélisation de ce site. En effet, dans cette zone les effets du pompage à long terme, débuté en 1990, sont très certainement

identiques dans tous les forages localisés dans le périmètre immédiat du pompage. Dans ces conditions, l'aquifère a probablement atteint un nouvel équilibre hydraulique entre la matrice rocheuse et le réseau de fractures. L'influence de la matrice ne semble donc pas en mesure d'expliquer les résultats moins satisfaisants fournis par le modèle pour les forages F19 et F32.

III. DISCUSSION

La mise en évidence d'une forte variabilité spatiale des activités volumiques du radon dans les eaux souterraines de l'aquifère de Ploemeur apporte des indications sur les mécanismes qui influencent la concentration en radon dans l'eau circulant dans les fractures. Les deux sites sélectionnés pour cette étude (Stang-er-Brune et Kermadoye) présentent une différence majeure. En effet, les flux hydrauliques du site de Stang-er-Brune sont naturels alors que ceux du site de Kermadoye sont influencés par le pompage d'exploitation de l'aquifère.

Dans un premier temps, nous avons mis en application un modèle simple de fracture unique, développé par Nelson et al. (1983), qui permet de calculer la concentration en radon dans l'eau d'une fracture à partir de paramètres tels que l'épaisseur de la fracture, le débit de l'eau dans les fractures et le flux d'exhalation du radon de la roche. Les résultats des tests de modélisation obtenus sur les deux sites, mettent en avant que les calculs sont cohérents avec les observations de terrain, pour les forages caractérisés par des temps de circulation dans les fractures importants. C'est-à-dire, soit la vitesse de circulation de l'eau dans les fractures est lente, comme c'est le cas à Stang-er-Brune, soit le rayon du disque modélisant la fracture est grand, comme c'est le cas à Kermadoye sous l'effet du pompage. En d'autres termes, les résultats sont satisfaisants lorsque les conditions sont telles que la concentration en radon dans l'eau dépend uniquement du flux d'exhalation des roches et de l'épaisseur de la fracture (simplification du modèle donnée par l'équation 5). Dans le site de Kermadoye (où l'aquifère est exploité), les aires drainées par les fractures sont considérablement plus grandes que celles du site de Stang-er-Brune. Les résultats obtenus en utilisant le modèle à fracture unique sont, majoritairement, très satisfaisants.

En revanche, pour les forages présentant des fractures caractérisées par des débits importants ou des rayons d'influence moyens (forages B3 et F22 de Stang-er-Brune et F32 à Kermadoye) le modèle aboutit à des résultats moins cohérents. Cela illustre les limites de l'hypothèse d'une fracture représentée par deux plans parallèles. L'épaisseur équivalente de fracture calculée à partir de la transmissivité ne semble pas en mesure de prendre en compte correctement l'influence du débit de l'eau dans les fractures. Par conséquent, les résultats des calculs sont moins satisfaisants pour les fractures pour lesquels l'effet du débit ne peut être négligé.

Dans un deuxième temps, les résultats obtenus au cours des tests de pompages réalisés sur le site non exploité de Stang-er-Brune ont permis de formuler l'hypothèse que des flux hydrauliques pourraient exister, de la matrice très peu perméable vers le réseau de fractures perméables, suite au

déséquilibre de charge hydraulique créé entre ces deux compartiments, sous l'effet d'un pompage important. De plus, les calculs réalisés, pour modéliser l'activité volumique du radon dans l'eau contenue dans les pores de la roche, indiquent que celle-ci est largement supérieure à celle de l'eau circulant dans les fractures. Le flux d'eau enrichie en radon se dirigeant de la matrice vers les fractures entraîne alors une augmentation de l'activité volumique du radon dans l'eau circulant dans le réseau de fractures. Dans ce type de situation, c'est-à-dire lorsqu'un déséquilibre de charge est provoqué entre la matrice et le réseau de fractures, l'utilisation de la variabilité des concentrations en radon dans l'eau semble être un outil intéressant pour discriminer la contribution de l'eau des pores de la roche encaissante au flux d'eau circulant dans la fracture. Néanmoins, lorsque l'aquifère n'est pas soumis à un pompage ponctuel, il est plus difficile de quantifier les échanges hydrauliques entre la roche et la fracture, voire même de simplement déterminer si de tels échanges existent, lorsque ce système a atteint un équilibre hydraulique. Cette difficulté est rencontrée à Kermadoye, où le pompage à long terme qui y est appliqué a probablement abouti à un nouvel équilibre hydraulique entre la matrice et le réseau de fracture.

En conclusion de ce chapitre, il est possible de distinguer deux mécanismes qui contrôlent les concentrations en radon dans l'eau de l'aquifère granitique fracturé de Ploemeur :

- 1- **Les caractéristiques géométriques des fractures** – les résultats satisfaisants obtenus lors de la modélisation des activités volumiques dans l'eau semblent indiquer que l'épaisseur de la fracture est l'un des paramètres qui détermine fortement la concentration en radon. Cependant, dans tous les modèles disponibles, à l'heure actuelle, dans la littérature (chapitre 1, §I.1.2.), dont celui que nous avons utilisé, la représentation géométrique choisie pour modéliser la fracture est une paire de plans parallèles. La surface d'une fracture présentant une certaine rugosité, l'assimiler à un plan lisse est éloignée de la réelle géométrie des fractures. De ce fait, la surface de contact entre l'eau et la roche, c'est-à-dire la surface d'exhalation de la roche, est certainement sous-estimée.
- 2- **Les échanges hydrauliques matrice/fracture** – L'hypothèse d'échanges hydrauliques éventuels entre la matrice rocheuse et le réseau de fractures semble devoir être considérée plus attentivement. Toutefois, il est encore difficile de pouvoir apprécier le rôle de l'eau contenue dans la matrice en conditions naturelles. De plus, les résultats satisfaisants obtenus lors de l'application du modèle à fracture unique au site de Kermadoye soulèvent une nouvelle question. En effet, ce site est soumis à un pompage de longue durée et a donc atteint

un nouvel équilibre. Des échanges hydrauliques entre la matrice et les fractures existent-ils dans un tel système ? En d'autres termes, la concentration en radon dans l'eau des fractures des forages est-elle simplement liée à la surface de contact entre la roche et l'eau ainsi qu'au débit de l'eau ou peut-on aussi envisager, dans ces conditions, une contribution d'une eau enrichie en radon qui serait issue de la matrice rocheuse ?

Pour répondre à ces questions, il est permis de proposer une évolution du modèle physique que nous avons utilisé, afin d'également prendre en compte la contribution éventuelle de la matrice rocheuse. Il serait utile de déterminer si les équations proposées par Nelson et al. (1983) peuvent être adaptées pour modéliser un mélange entre une eau circulant dans le réseau de fractures et une eau provenant de la matrice rocheuse (Figure IV.15).

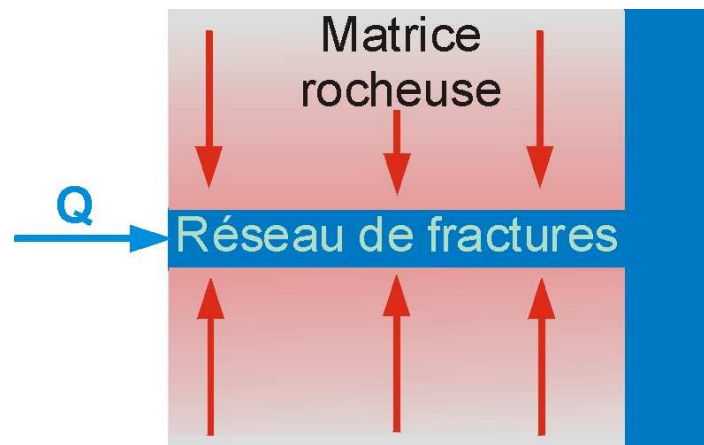


Figure IV.15 : Représentation schématique d'un mélange entre une eau circulant dans le réseau de fractures et une eau issue des pores de la matrice rocheuse.

Cette perspective nécessiterait cependant de réaliser des expérimentations de terrain supplémentaires. En effet, lors de tests de pompages effectués à Stang-er-Brune en mai 2006, le nombre de mesures de la concentration en radon dans l'eau réalisées après les pompages importants est limité. La phase d'augmentation de l'activité volumique du radon qui est apparue n'a donc pas pu être observée précisément. La caractérisation plus détaillée de ce phénomène, au cours de nouveaux pompages, permettrait d'obtenir des informations essentielles à une meilleure compréhension des flux hydrauliques, entre la matrice rocheuse et les fractures, lorsque le système est soumis à un pompage. Des essais de pompages similaires peuvent aussi être envisagés sur le site de Kermadoye, bien que le débit important du pompage permanent mis en place sur ce site semble atténuer fortement les effets de tout pompage additionnel.

Suite à ces premiers résultats, obtenus grâce à l'étude du radon dans l'eau, il apparaît intéressant de les confronter à ceux fournis par d'autres traceurs. Ainsi, les concentrations en nitrates et en sulfates des eaux, ainsi que la teneur en SF_6 , sont elles susceptibles d'apporter des informations complémentaires permettant de préciser le rôle de la matrice dans les transferts hydrauliques dans l'aquifère. En effet, ces éléments ont des origines et des comportements dans l'aquifère qui diffèrent de ceux du radon. Dans le chapitre V, nous allons examiner si ces traceurs peuvent effectivement contribuer à la compréhension du système hydrogéologique étudié.

Chapitre V : Analyse multi traceurs et proposition d'un modèle conceptuel de flux hydrauliques dans l'aquifère

Dans le dernier chapitre, en complément des informations apportées par le radon, celles fournies par d'autres traceurs chimiques, tels que les concentrations en nitrates et en SF₆ de l'eau, sont discutées afin de préciser les relations hydrogéologiques susceptibles d'exister entre la matrice rocheuse et les fractures. La comparaison des différents éléments, nous permet de proposer un modèle conceptuel de fonctionnement hydrogéologique de l'aquifère de Ploemeur.

I. INTRODUCTION

Dans le chapitre IV, les résultats globalement satisfaisants obtenus à l'aide d'un modèle considérant une fracture unique et le flux de radon émanant des surfaces de cette dernière ont été exposés. Cependant, des écarts plus ou moins significatifs apparaissent entre l'activité volumique du radon dans l'eau calculée et celle mesurée dans certains forages. L'hypothèse formulée pour expliquer ces différences consiste à évoquer la participation au flux d'eau circulant dans la fracture, d'une eau enrichie en radon issue de la matrice rocheuse.

Afin de préciser l'existence d'échanges hydrauliques entre le réseau de fractures perméables et la matrice rocheuse, la distribution spatiale dans l'aquifère de traceurs supplémentaires, soumis à d'autres contraintes et ayant des comportements différents, a été étudiée et comparée à celle du radon :

- La variabilité des concentrations en nitrates et en sulfates dans l'aquifère a été étudiée dans des travaux antérieurs (Ayraud, 2006 ; Tarits et al., 2006) qui ont permis de distinguer plusieurs catégories d'eaux. La distribution de ces éléments est étroitement liée à l'état d'oxydation du système et aux réactions biogéochimiques se déroulant dans l'aquifère. Ces dernières sont influencées par le développement de films bactériens dans les zones fracturées et la microporosité. La surface de contact entre l'eau et la roche, ainsi que la vitesse de circulation de l'eau dans l'aquifère jouent un rôle prépondérant dans la croissance de ces biofilms.
- Les concentrations en SF₆ dans les eaux souterraines sont également susceptibles d'apporter de nouvelles informations permettant de caractériser les échanges hydrauliques entre la matrice et le réseau de fractures. L'hexafluorure de soufre est un gaz dissous dans l'eau, dont l'origine est supposée anthropique ((Maiss *et al.*, 1996; Maiss and Brenninkmeijer, 1998, INRS, 2000). Cependant, en milieu granitique, il semblerait qu'une part non négligeable de ce gaz soit produite par la roche elle-même (Harnisch et Eisenhauer, 1998; Harnisch et al., 2000). Le comportement chimique du SF₆ est similaire à celui du radon et sa concentration dans l'eau dépend donc également de la surface de contact entre l'eau et la roche. Néanmoins, ce gaz n'étant pas radioactif, son accumulation dans le milieu géologique peut être plus importante que celle du radon.

II. CONCENTRATIONS EN NITRATES ET EN SULFATES DES EAUX DE L'AQUIFERE DE PLOEMEUR

II.1. Caractérisation de l'évolution chimique des eaux du site de Kermadoye : influence d'un pompage à long terme

II.1.1. Différenciation chimique des forages

Pour rappel (chapitre II), le site de Kermadoye est l'un des sites de recherche privilégié de l'ORE H+ (Observatoire de recherche en environnement) et de nombreuses études y sont réalisées afin de caractériser et de comprendre le fonctionnement physique, chimique et hydrogéologique de l'aquifère. Dans ce cadre, un suivi chimique régulier des eaux a été effectué sur le site de Kermadoye depuis le début de l'exploitation des eaux souterraines de l'aquifère de Ploemeur. Une évolution à long terme des concentrations en ions nitrates, sulfates et chlorures de l'eau du forage exploité a ainsi pu être mise en évidence (Ayraud, 2006, Tarits et al. 2006 ; Figure V.1).

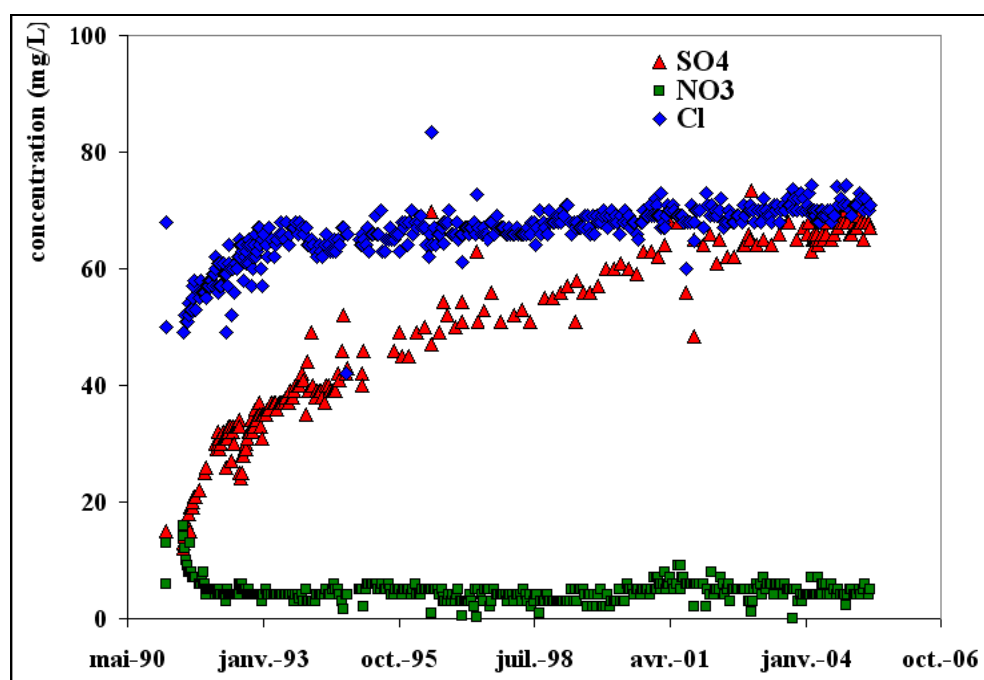


Figure V.1 : Evolution des concentrations en nitrates, sulfates et chlorures (en mg.L^{-1}) dans le puits exploité, Pe (Ayraud, 2006, Tarits et al. 2006)

La qualité de l'eau extraite de l'aquifère de Ploemeur à Kermadoye a subi des changements importants depuis le début de son suivi en 1991. Tout d'abord, une diminution rapide de la

concentration en nitrates a été observée, immédiatement après le début de l'exploitation. Une augmentation importante de la concentration en sulfates et chlorures a également été notée. Les variations en nitrates et sulfates sont avérées inversement corrélées après la mise en route du pompage en 1991.

L'étude hydrochimique du site, réalisée au travers de sept campagnes d'échantillonnage globales s'étalant de 1996 à 2003 et du suivi continu par la municipalité de la chimie de l'eau pompée, a permis la mise en évidence de trois groupes d'eau distincts (Figure V.2).

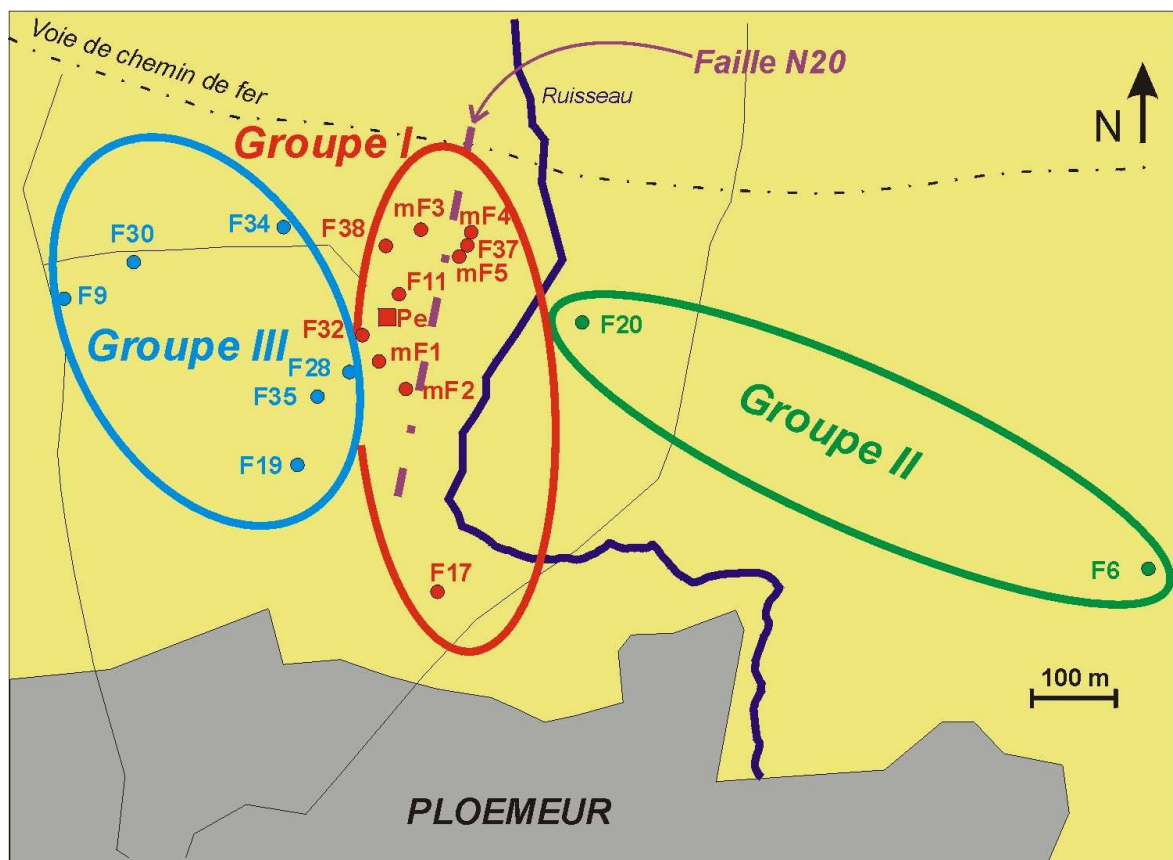


Figure V.2 : Localisation des trois groupes d'eau mis en évidence sur le site de Ploemeur par l'analyse hydrochimique globale. La ligne pointillée indique la direction de la faille N20° présente sur le site. (Ayraud, 2006)

Le groupe I regroupe les puits situés sur la zone de pompage au droit de la faille d'orientation N20 ou de sa faille conjuguée, N150 : forages mF1, mF2, mF3, mF4, mF5, Pe, F11, F17, F28, F32, F37 et F38. Les concentrations en nitrates observées dans les eaux prélevées sont inférieures à 15 mg.L^{-1} et celles en sulfates toujours supérieures à 60 mg.L^{-1} . Les forages superficiels, qui sont profonds d'environ 25m (mF1, mF2, mF3, mF4, mF5) et qui échantillonnent la zone altérée, appartiennent à ce groupe.

Le groupe II, quant à lui, est situé à l'est de la zone de pompage. L'eau des forages F6 et F20 présente des caractéristiques d'anthropisation forte, avec des concentrations en nitrates dépassant 70 mg.L^{-1} . Une légère baisse de ces dernières a néanmoins été notée ces dernières années. Dans l'eau de ces forages, le rapport $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ est très élevé.

Enfin, le groupe III, situé à l'ouest de la zone de pompage, comprend des puits dont la chimie des eaux est proche de celle classiquement observée dans des milieux cristallins sans observer d'influence anthropique trop importante.

Une synthèse hydrochimique des variations verticales et spatiales des concentrations est présentée dans la Figure V.3. Les sources anthropogéniques importantes sont localisées dans la zone à l'est du site de pompage (eaux du groupe II, forages F6 et F20).

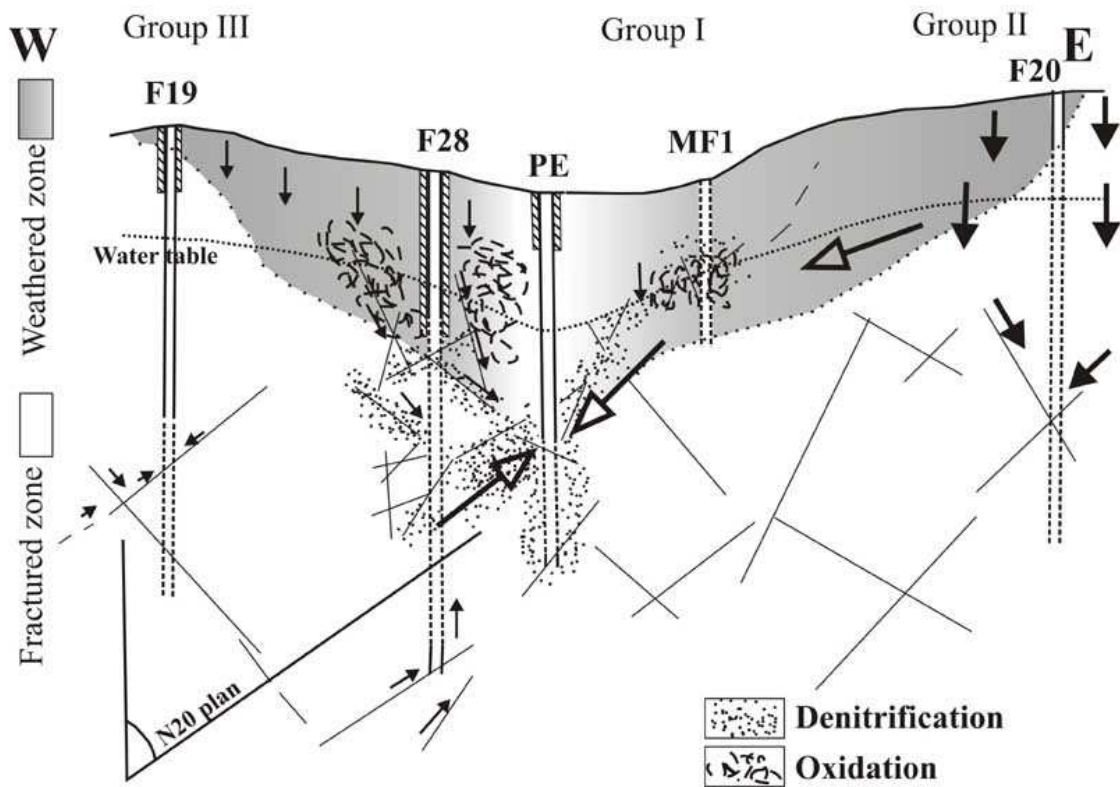


Figure V.3 : Modèle hydrochimique du site de Kermadoye (Tarits et al. 2006)

Les flux d'eaux marquées par une influence anthropogénique, parcourent rapidement la zone altérée de l'aquifère et circulent ensuite dans les fractures. Les flux d'eau et les vitesses de circulation sont plus limités dans la zone localisée à l'ouest de la zone de pompage (eaux du groupe III). La composition chimique des eaux est stable dans ces forages et les concentrations en nitrates sont intermédiaires entre celles mesurées dans l'eau des forages du site de pompage (groupe I) et

celles des eaux des forages du groupe II. A proximité du puits exploité Pe, trois types de flux différents sont observés :

- des **flux hydrauliques profonds** provenant de l'ouest de l'aquifère (comme la partie inférieure du forage F28) caractérisés par des concentrations en nitrates et sulfates moyennes comparables à celles du groupe III ;
- des **flux hydrauliques superficiels** caractérisés par des eaux présentant des rapports $\text{NO}_3^- / \text{SO}_4^{2-}$ élevés, comparables à ceux des eaux du groupe II. Ils proviennent majoritairement de la partie altérée de l'aquifère, le long de la faille d'allongement N20 (comme observé dans le forage F28) ;
- des **flux hydrauliques du forage Pe** dont la composition chimique évolue depuis le début de l'exploitation des eaux souterraines. La composition chimique de l'eau était initialement proche de celle des eaux du groupe III, caractérisées par des rapports $\text{NO}_3^- / \text{SO}_4^{2-}$ élevés, bien que plus bas que ceux des eaux du groupe II.

A Ploemeur, la répartition spatiale semble plus importante dans la direction horizontale (avec trois groupes de qualités d'eau souterraine) que dans la direction verticale. De plus, au niveau de la zone de pompage (groupe I), la stratification verticale mise en évidence est inverse par rapport à celle communément observée dans les milieux souterrains. En effet, généralement, plus la profondeur est importante, plus les conditions deviennent réductrices. Or, sur ce site, ce sont les eaux les plus superficielles (dans les puits MF1, MF2) qui présentent les conditions les plus réductrices, alors qu'en profondeur (dans le forage F28 à 70m ou dans la totalité du forage F35) les eaux sont plutôt de type oxydantes (présence de nitrates).

II.1.2. Relation entre les réactions biogéochimiques et les flux hydrauliques

L'évolution chimique en fonction du temps, qui est observée dans l'aquifère de Ploemeur sur le site de Kermadoye, est liée aux effets du pompage à long terme sur les zones de circulations de l'eau ainsi que sur les conditions redox du système. L'évolution de la chimie de l'eau semble limitée à une zone s'étendant du Nord au Sud, le long de la faille d'allongement N20 traversant le site de pompage. Aucune dénitrification n'est observée dans l'eau des forages à l'est ou à l'ouest de cette faille.

Autour des forages d'exploitation de Kermadoye, les flux hydrauliques, qui proviennent de la partie superficielle à l'est de la zone de failles (forages F6 et F20) et qui se dirigent vers la partie fracturée profonde des forages situés immédiatement à côté du pompage (forage F28), semblent s'accélérer. En d'autres termes, le rayon d'influence du pompage augmente.

L'évolution chimique observée dans l'aquifère de Ploemeur résulte d'un équilibre entre les réactions biogéochimiques, cinétiquement limitées, et le gradient physique, provoqué par le pompage, qui détermine la vitesse de circulation de l'eau dans les fractures. L'augmentation du gradient hydraulique modifie à la fois la vitesse et le chemin emprunté par l'eau dans les fractures, qui peuvent à leur tour influencer les paramètres chimiques de la réaction de dénitrification, en modifiant la surface de réaction disponible et en accélérant la cinétique de réaction.

Dans le cas de l'aquifère de Ploemeur, il apparaît que l'influence du pompage sur l'intensité et la distribution des flux hydrauliques a créé les conditions requises pour qu'une réaction de dénitrification apparaisse, ce qui suppose que des conditions plus réductrices soient créées. Les données chimiques indiquent le contraire, traduisant un apport d'eaux riches en oxygène depuis la partie est de l'aquifère sous l'effet du pompage. Puisque la réaction de dénitrification est notée dès le début de l'exploitation des eaux souterraines, elle ne peut pas être liée à l'introduction d'eaux de composition chimique nouvelle dans l'aquifère. L'évolution opposée des nitrates et des sulfates, observée après la forte augmentation de l'intensité du pompage (environ un an après le début de l'exploitation, Figure V.1), est un bon indicateur de la dépendance de la réaction biogéochimique à la vitesse de circulation de l'eau.

A partir de ces observations, deux modèles ont été proposés par Tarits et al. (2006) :

- (1) La dénitrification est liée à une diminution de la vitesse de circulation de l'eau engendrée par une augmentation du flux hydraulique sous l'effet du pompage (Figure V.4). Cette augmentation peut provoquer une modification de la distribution des vitesses dans cette zone de l'aquifère en augmentant le nombre de zones où l'eau circule plus lentement. La diminution de la vitesse moyenne de circulation induirait un accroissement des réactions chimiques consommant de l'oxygène, ce qui, à terme après consommation de l'oxygène, laisserait les réactions de dénitrification (consommation des nitrates) devenir des processus chimiques très importants dans le système.
- (2) Le pompage provoque l'augmentation de la vitesse de l'eau dans les fractures sans modifier les zones de circulation dans l'aquifère. Une vitesse de circulation plus importante accélérerait la cinétique des réactions chimiques, en limitant l'épaisseur de la

couche de diffusion, rendant ainsi plus disponible la surface de roche impliquée dans les réactions biogéochimiques. En effet, les produits de la réaction seraient alors transportés plus rapidement. Finalement, l'oxygène de l'eau serait consommé rapidement avec comme conséquence une influence de plus en plus grande de la réaction de dénitrification.

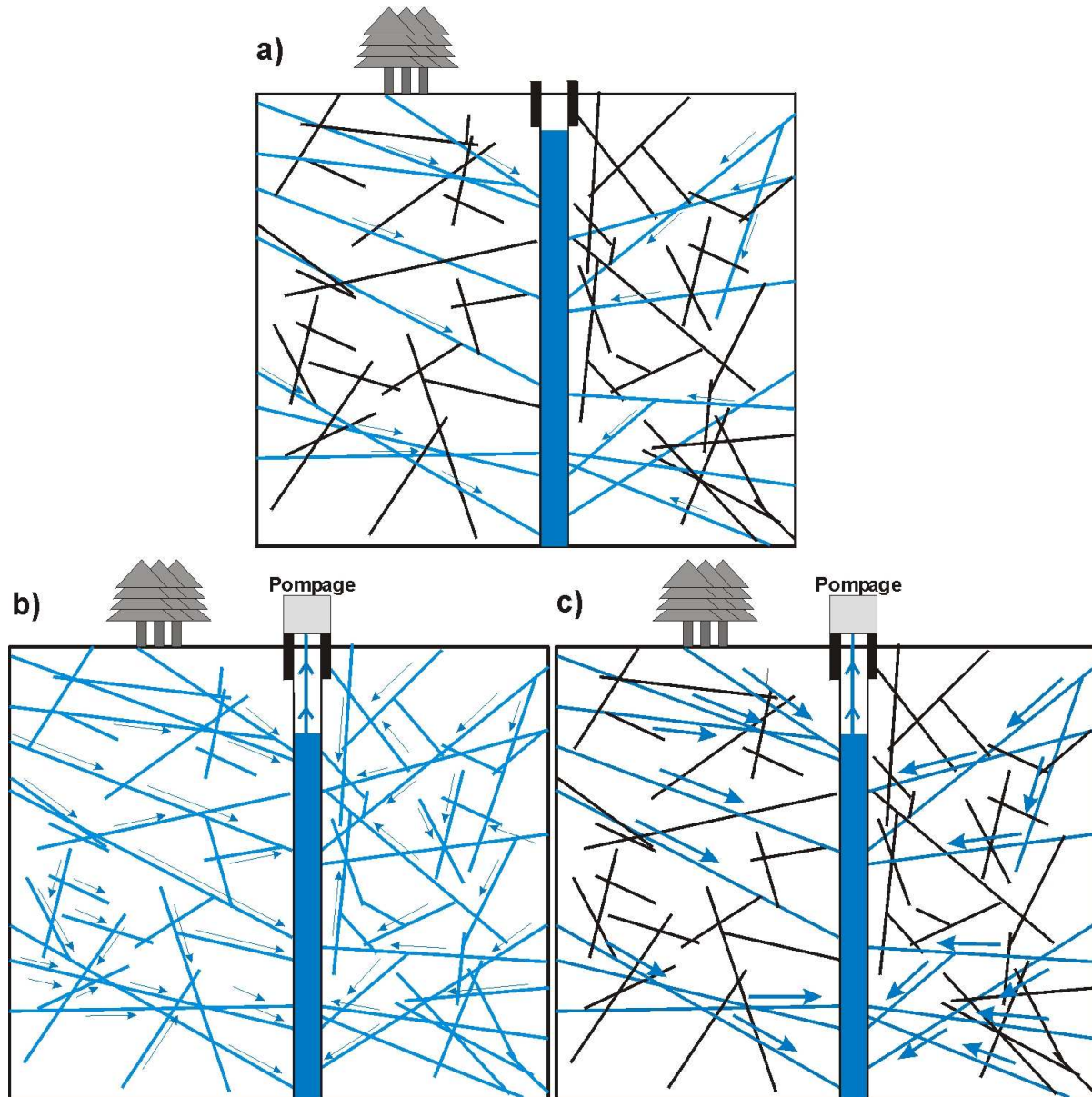


Figure V.4 : Représentations des conditions de flux hydrauliques, a) sans influence du pompage, b) le pompage entraîne la diminution de la vitesse de circulation de l'eau et une augmentation du nombre de zones où l'eau circule, c) le pompage provoque l'augmentation de la vitesse de circulation de l'eau.

Les modèles de fonctionnement hydrogéochimiques ont montré que, dans les puits du groupe I, une évolution en trois stades existe (Ayraud, 2006 ; Tarits et al., 2006) avec en premier lieu (1) une consommation de l'oxygène, (2) une dénitrification par oxydation de la pyrite aboutissant à une faible concentration en nitrates et des teneurs en sulfates élevées et (3) un emballement de la

réaction avec une oxydation des pyrites par l'action du Fe^{3+} en solution, conduisant à des teneurs en sulfates très fortes.

La mise en service du pompage sur le site a conduit non seulement à une redistribution des flux mais aussi de la vitesse de l'eau. Il est clairement établi que le développement de processus biogéochimiques de dénitrification est lié à la mise en service du pompage (évolution antagoniste des nitrates et des sulfates, renouvelée lors de la mise en route d'un nouveau pompage). Bien que le système semble avoir atteint un certain équilibre (la concentration en nitrates est plus ou moins stabilisée), les concentrations en sulfates et en chlorures continuent d'augmenter. L'augmentation des teneurs en sulfates pourrait être liée à la mise en place de l'étape 3 de l'oxydation des sulfures (oxydation par le fer), alors que l'augmentation des concentrations en chlorures (éléments constitutifs de certains engrais et fertilisants) peut indiquer une influence anthropique et donc un apport de nitrates de plus en plus importante conduisant à une production de sulfates par dénitrification couplée à l'oxydation des sulfures plus grande.

II.2. Hydrochimie et activités volumiques du radon dans l'eau de l'aquifère de Ploemeur

La comparaison des activités volumiques du radon et du rapport $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ dans l'eau a pour objectif de déterminer si le radon peut être un indicateur de la contribution d'une eau issue de la matrice (ou d'une zone de perméabilité inférieure à celle des fractures) au flux d'eau circulant dans l'aquifère. En effet, il a été démontré dans le chapitre 4 (§I.2.3.) que l'eau des pores de la matrice ou d'une zone à faible perméabilité est enrichie en radon par rapport à l'eau qui circule dans les fractures. Il est également possible d'émettre l'hypothèse que cette eau est caractéristique de conditions chimiques plus réductrices que celle circulant dans le réseau très perméable des fractures principales, en raison des transferts plus limités et moins rapides dans la matrice. Par conséquent, l'influence de cette zone moins perméable se traduirait par un enrichissement en radon et une diminution du rapport $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ de l'eau des fractures.

Ainsi, dans ce paragraphe, nous rappellerons les résultats obtenus pour le site de Kermadoye, en nous appuyant sur les conclusions auxquelles ont abouti Ayraud (2006) et Tarits et al. (2006). Puis, afin de compléter l'étude des activités volumiques du radon et du rapport $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ dans l'eau de l'aquifère de Ploemeur, nous discuterons des résultats obtenus dans les forages du site de Stang-er-Brune.

II.2.1. Comparaison des activités volumiques du radon et des teneurs en nitrates et sulfates des eaux.

II.2.1.1. Site de Kermadoye

La comparaison de l'activité volumique du radon et du rapport $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ dans les eaux des forages du site de Kermadoye permet d'étudier l'évolution de la concentration en radon dans l'eau des groupes différenciés par leur chimie (Figure V.5).

Les concentrations en nitrates et en sulfates dans l'eau, analysées à la date la plus proche de la mesure de l'activité volumique du radon, ont été considérées comme représentatives de celles de l'eau pendant les campagnes de mesure du radon. Le décalage entre les mesures du radon et des deux anions est au maximum de 3 semaines.

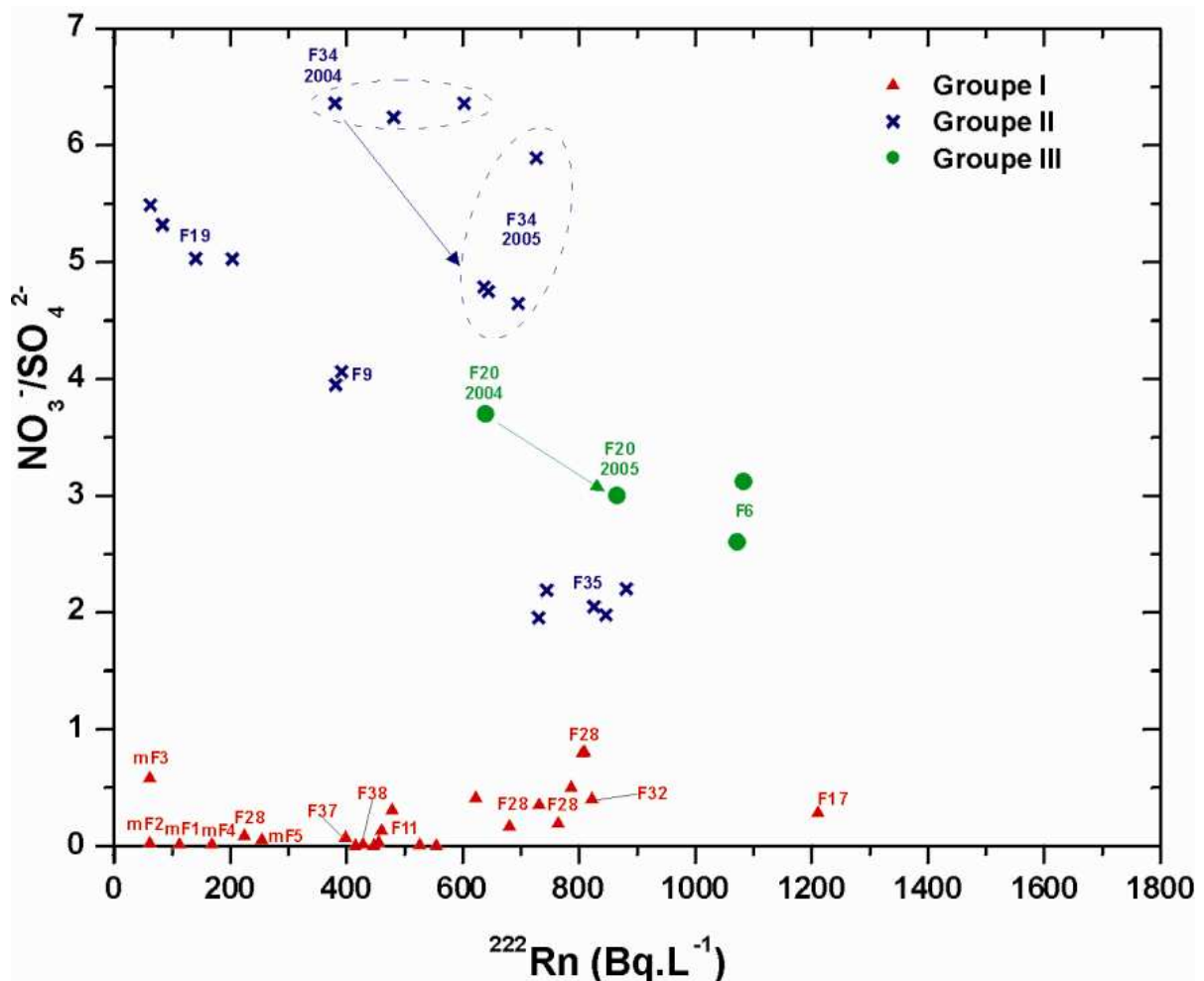


Figure V.5 : Activité volumique du radon en fonction du rapport $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ dans les eaux analysées à Kermadoye (avril 2004 et juin 2005).

Dans les eaux du groupe I, la dénitrification a atteint un stade avancé. Les eaux des forages situés dans cette zone contiennent donc très peu de nitrates et ont des concentrations en sulfates élevées (>60 mg.L⁻¹). Le rapport NO₃⁻/SO₄²⁻ des eaux est compris entre 0 (forage F11) et 0,8 (forage F28), alors que l'activité volumique du radon dans l'eau s'étend de 60 Bq.L⁻¹ (forages mF2 et mF3) à 1210 Bq.L⁻¹ (forage F17) (Figure V.6). Dans les forages appartenant à ce groupe, une corrélation existe entre le rapport NO₃⁻/SO₄²⁻ et l'activité volumique du radon dans l'eau. Contrairement à la tendance observée dans les forages du groupe III, la concentration en radon semble augmenter avec l'accroissement du rapport NO₃⁻/SO₄²⁻.

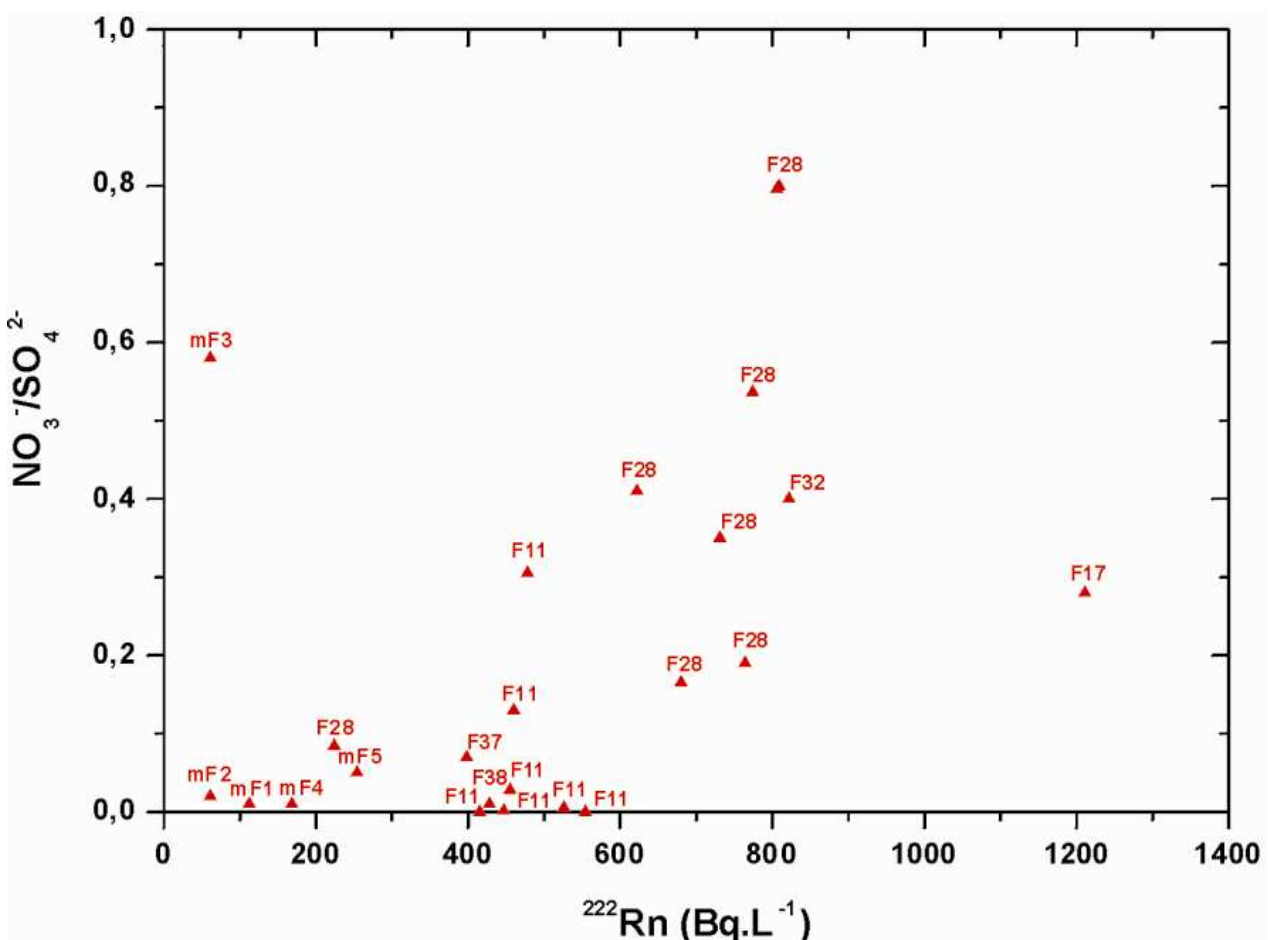


Figure V.6 : Activité volumique du radon en fonction du rapport NO₃⁻/SO₄²⁻ dans les eaux du groupe I identifié à Kermadoye (avril 2004 et juin 2005). A noter, la différence d'échelle pour le rapport NO₃⁻/SO₄²⁻ par rapport au graphique de la figure V.5.

II.2.1.2. Site de Stang-er-Brune

Les activités volumiques du radon dans l'eau du site de Stang-er-Brune présentées sont celles des campagnes de mesure de décembre 2004. Conjointement à ces mesures, une analyse des concentrations des nitrates et des sulfates dans l'eau a été réalisée (Figure V.7).

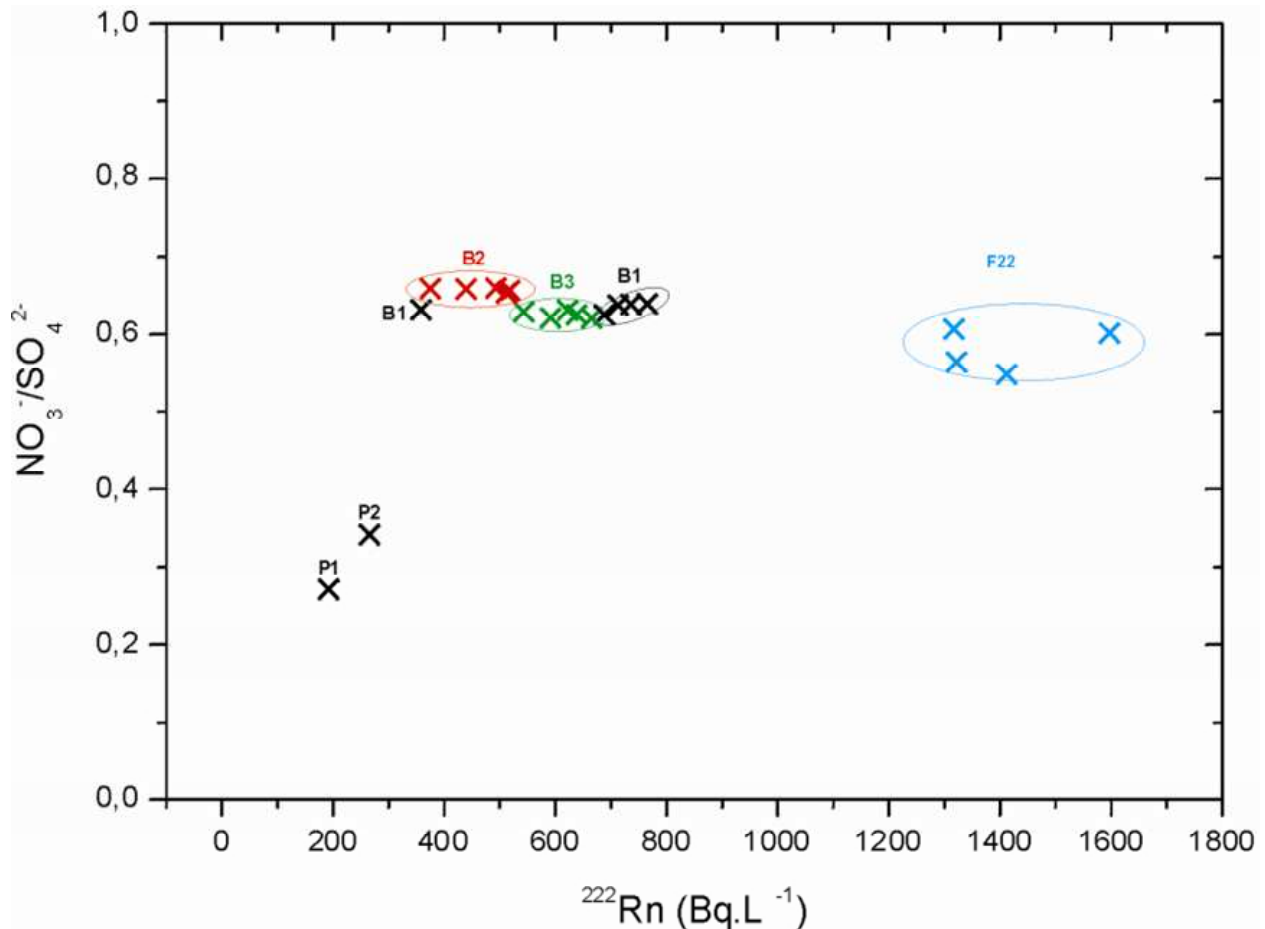


Figure V.7 : Activité volumique du radon en fonction du rapport $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ dans les eaux prélevées à Stanger-Brune en décembre 2004.

La variabilité importante des concentrations en radon dans l'eau, mise en évidence dans cette partie de l'aquifère de Ploemeur, a été étudiée dans le chapitre III, §I, et dans le chapitre IV, §I. La gamme des activités volumiques du radon dans l'eau des forages est comprise entre 192 et 1597 Bq.L⁻¹ dans le piézomètre P1 et le forage F22 respectivement. En revanche, les teneurs en nitrates et en sulfates des eaux sont relativement stables. En effet, dans les forages profonds (B1, B2, B3 et F22) la concentration en nitrates est comprise entre 17 et 19 mg.L⁻¹ et la concentration en sulfates varie entre 27 et 31 mg.L⁻¹. La concentration en nitrates est plus faible dans les forages superficiels P1 et P2, avec des valeurs respectives de 8 et 10 mg.L⁻¹. Les teneurs en nitrates des eaux de ce site sont faibles et sont du même ordre de grandeur que celles mesurées dans les puits du groupe I du site de Kermadoye. Le rapport $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ des eaux est relativement stable dans les eaux des forages profonds : il est compris entre 0,55 et 0,65. Il est plus faible dans les eaux des forages superficiels P1 et P2 (0,27 et 0,34 respectivement) en raison de la concentration en nitrates moins élevée dans ces piézomètres.

II.2.2. Formulation d'un modèle de flux hydrauliques dans l'aquifère : apport des concentrations en radon, en nitrates et en sulfates

Plusieurs tendances semblent se dégager de la comparaison des activités volumiques du radon et du rapport $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ dans les eaux souterraines.

Premièrement, dans les eaux des groupes hydrochimiques II et III mis en évidence par Tarits et al. (2006) sur le site de Kermadoye, il semble qu'une relation existe entre l'évolution du rapport $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ et celle de l'activité volumique du radon dans l'eau. En effet, l'augmentation de la concentration en radon dans l'eau et la diminution simultanée du rapport $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ permettent d'évoquer l'hypothèse des effets du pompage de Kermadoye sur les circulations hydrauliques de l'aquifère. Une contribution plus grande des zones de l'aquifère de perméabilités plus faibles où l'eau circulerait plus lentement, serait dénitrifiée et enrichie en radon est cohérente avec la tendance générale observée dans les forages du groupe II et III. De plus, cette hypothèse fournit également une explication aux variations observées dans les forages F34 et F20 entre juin 2004 et avril 2005. En effet, la sollicitation plus importante des zones moins perméables pendant cette période, sous l'effet de la baisse générale du niveau de la nappe, aurait entraîné l'augmentation de l'activité volumique du radon et la diminution de la concentration en nitrates dans l'eau.

Dans les forages localisés à proximité du site de pompage (eaux du groupe I ; Kermadoye), la corrélation entre la concentration en radon et le rapport $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ des eaux observée est beaucoup moins marquée. Cette observation pourrait être expliquée par la très grande influence du pompage d'exploitation sur les flux des forages de ce groupe. Ayraud (2006) ainsi que Tarits et al. (2006) ont démontré que le pompage provoquait une accentuation des réactions biogéochimiques de dénitrification. Par conséquent, les eaux de cette zone sont appauvries en nitrates et le rapport $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$, tendant vers zéro, ne permet pas de discriminer les forages de manière aussi nette. Néanmoins, l'hypothèse suivante peut être formulée : les augmentations conjointes de la concentration en radon et du rapport $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ indiqueraient que l'accroissement des flux hydrauliques dans les puits proches du pompage renforce l'influence de l'épaisseur des fractures sur la concentration en radon dans l'eau de cette partie de l'aquifère. L'apport en radon d'une eau provenant d'une zone moins perméable serait dilué par l'augmentation des flux dans le réseau de fracture principal. La différence des propriétés géométriques des fractures, telles que leur épaisseur et la rugosité de leurs surfaces, contrôlant le rapport entre la surface de roche et le volume d'eau circulant dans la fracture, serait le facteur prédominant qui expliquerait la variabilité des concentrations en radon dans le périmètre d'influence immédiat du pompage.

Pour le site de Stang-er-Brune, une absence de corrélation est notée entre les deux paramètres. En effet, le rapport $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ dans l'eau des forages est proche de zéro et ses variations sont très faibles dans cette zone de l'aquifère. La concentration en sulfates est stable dans les eaux du site. Les variations du rapport $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ sont principalement liées à une concentration en nitrates légèrement plus faible dans les forages superficiels P1 et P2 (9 mg.L^{-1} en moyenne) que dans les forages profonds ($18,5 \text{ mg.L}^{-1}$ en moyenne) probablement due à des conditions physico-chimiques plus réductrices dans la zone altérée de surface. Cependant les concentrations en nitrates sont relativement faibles en comparaison de celles mesurées dans l'aquifère à Kermadoye et ne permettent ni de distinguer les forages les uns des autres, ni de mettre en évidence l'influence d'une eau originaire de la roche encaissante. En revanche, il a été exposé dans le chapitre 4, §I.1, que les différentes épaisseurs des fractures dans les forages seraient à l'origine des variations de la concentration en radon dans l'eau observées.

En conclusion, les éléments apportées par la comparaison des activités volumiques du radon et du rapport $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ appuient l'une des deux hypothèses formulées par Tarits et al. (2006), afin de prédire l'effet des changements de l'intensité des flux hydrauliques sur le système. Sur le site de Kermadoye, il apparaît qu'une augmentation de la distribution des vitesses se traduit par une augmentation du nombre de zones où l'eau circule plus lentement, expliquant ainsi les réactions de dénitrification observées dans les forages à proximité de la zone de pompage. Seule cette hypothèse est compatible avec, simultanément, une augmentation de la concentration en radon dans l'eau et une diminution du rapport $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ observée dans les forages des groupes II et III. La tendance inverse mise en évidence dans les eaux du groupe I peut être expliquée par le stade très avancé atteint par la réaction de dénitrification dans cette zone soumise directement aux effets du pompage.

III. FORMULATION D'UN MODELE DE FLUX HYDRAULIQUES DANS L'AQUIFERE : APPORT DES ACTIVITES VOLUMIQUES DU RADON ET DES TENEURS EN SF₆ DES EAUX

L'intérêt du SF₆ est lié en partie à son origine. Jusqu'à récemment, la source de ce gaz était considérée comme purement anthropique. Cependant, des études ont montré que certaines roches comme les granites pouvaient produire une quantité non négligeable de ce gaz. Le SF₆ et le ²²²Rn sont donc deux gaz produits par la roche. Leur principale différence tient au caractère radioactif du radon qui se désintègre rapidement avec le temps. Il est donc envisageable que le SF₆ s'accumule de manière plus conséquente dans les zones peu perméables de l'aquifère, telles que la matrice rocheuse. Dans ce cas, ce gaz peut être un bon indicateur des échanges hydrauliques entre les zones très perméables et peu perméables de l'aquifère.

III.1. Origine du SF₆

III.1.1. Concentration en SF₆ dans l'air atmosphérique : une origine anthropique.

L'hexafluorure de soufre (SF₆) est un gaz incolore, inodore et chimiquement inerte. Le SF₆ est non toxique pour l'homme et ne contient aucun polluant nocif. Cependant, en raison de son temps de résidence atmosphérique important (3200 ans), de son classement comme gaz à effet de serre et de sa rapide accumulation dans la deuxième moitié du XX^{ème} siècle, il a été inclus dans le protocole de Kyoto de 1997 pour la protection du climat. De nos jours, les principales émissions atmosphériques sont dues à son utilisation dans les équipements à haute tension et à la production de magnésium. Ce composé ne semble affecté par aucun processus tant chimique que biologique et est donc susceptible de résider longtemps dans l'atmosphère et l'hydrosphère (INRS, 2000). La Figure V.8 présente l'évolution de la concentration atmosphérique en SF₆ depuis 1930.

En accord avec la loi de Henry, les eaux de pluie sont généralement en équilibre avec la concentration atmosphérique en SF₆. La concentration en SF₆ des eaux souterraines dépend donc des variations de celle de l'atmosphère et de la température de l'eau de recharge de l'aquifère.

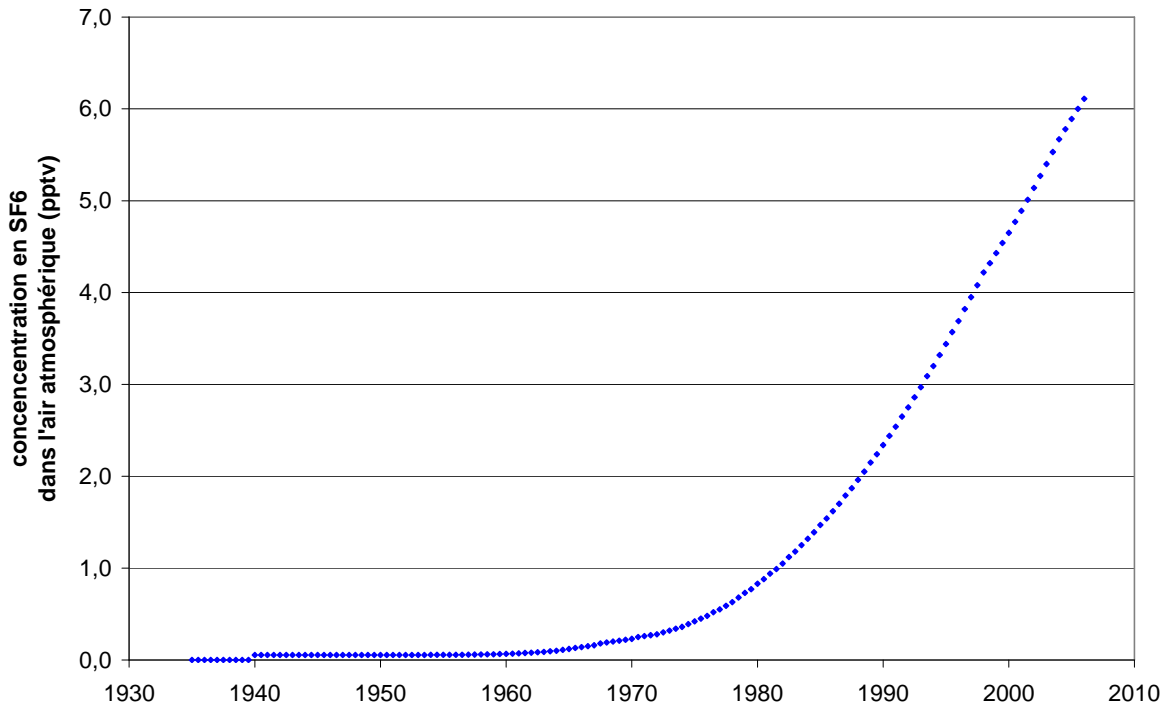


Figure V.8 : Evolution de la concentration dans l'air atmosphérique du SF₆

La teneur en SF₆ des eaux souterraines peut donc théoriquement être utilisée comme un outil de datation des eaux. La méthode consiste à recalculer la concentration théorique en SF₆ dans l'air au moment de la recharge de l'aquifère, à partir de celle mesurée dans l'eau prélevée dans les forages.

III.1.2. Concentration en SF₆ dans les eaux souterraines : une origine anthropique et géologique ?

Des études récentes (Harnisch et Eisenhauer, 1998; Harnisch et al., 2000) ont démontré que la concentration en SF₆ dans les eaux souterraines pouvait également avoir une origine géologique. En effet, la plupart des roches et minéraux ont des concentrations importantes en certains gaz (CO₂, CO, He, Ar, H₂, N₂, CH₄), ces gaz étant piégés dans les inclusions fluides des minéraux. Les concentrations peuvent être extrêmement variées et dépendent de la composition chimique et de la nature géologique de la roche.

Harnisch et Eisenhauer (1998) et Harnisch et al., (2000) ont mis en évidence que la présence de SF₆ est limitée à la fluorite et aux granites, roches dans lesquelles ce minéral accessoire existe avec une proportion en masse d'environ 0,1%. Ils ont mesuré la concentration en SF₆ de différentes roches et ont déterminé qu'elle varie entre 0,2 et 45 ppt dans les roches granitiques.

Si la présence de SF₆ dans certaines roches a été mise en évidence, son mécanisme de formation soulève encore de nombreuses interrogations. Kranz, (1966) a émis l'hypothèse que des composés fluorocarbonés pourraient être produits dans des fluorites par réaction de la fluorine avec de la matière organique. Il suggère que l'énergie nécessaire à cette réaction pourrait être fournie par celle des particules émises lors de la décroissance radioactive de l'uranium, du thorium et de leurs descendants. Toutefois, Harnisch et Einsenhauer (1998) n'ont pas mis en évidence de corrélation entre la concentration en SF₆ et la radioactivité d'un échantillon de roche. Néanmoins, s'ils n'apportent pas d'éléments supplémentaires expliquant la formation de SF₆ dans certains minéraux, ils suggèrent que le transfert de ce gaz, de la roche vers le milieu environnant, soit majoritairement favorisé par la dissolution de la fluorite par l'eau et par la déstabilisation du réseau cristallin de cette dernière, sous l'effet des phénomènes de désintégration radioactive se déroulant dans la roche.

Ainsi, dans un aquifère en milieu granitique fracturé, le SF₆ dissous dans l'eau proviendrait non seulement d'un transfert entre l'eau et l'atmosphère au moment de la recharge, mais également de la roche encaissante de l'aquifère. Dans le cas où la teneur en SF₆ est liée à celle de l'air atmosphérique, la gamme des concentrations mesurées dans l'eau varie entre 0,01 et 0,2 fmol.L⁻¹. Théoriquement, plus la durée et la surface du contact entre l'eau et la roche est importante plus la composante "géologique" en SF₆ de l'eau est supposée être grande. Ainsi, Harnisch et Einsenhauer (1998) rapportent qu'ils ont observé des eaux souterraines sursaturées en SF₆ en Allemagne et au Danemark avec des concentrations dépassant 80 fmol.L⁻¹.

III.2. Concentration en SF₆ et activité volumique du radon dans les eaux de l'aquifère de Ploemeur.

III.2.1. Concentrations en SF₆ mesurées dans les eaux souterraines de Ploemeur

Le Tableau V.1 présente les concentrations en SF₆ mesurées dans l'eau de certains forages de l'aquifère de Ploemeur par l'équipe du CAREN (Université de Rennes 1) entre janvier et juin 2006. La méthode d'analyse est proche de celle utilisée pour les CFC avec une préconcentration initiale de type purge-and-trap et une analyse en GC-ECD.

Tableau V.1 : concentrations en SF₆ mesurées dans l'eau de l'aquifère de Ploemeur.

Forage	SF ₆ (fmol.L ⁻¹)	Forage	SF ₆ (fmol.L ⁻¹)
B1	1,50.10 ⁻³	F28	4,08.10 ⁻³
B3	1,60.10 ⁻³	F32	3,13.10 ⁻³
F6	1,93.10 ⁻³	F34	3,75.10 ⁻³
F9	1,51.10 ⁻³	F35	2,44.10 ⁻³
F11	2,40.10 ⁻³	F37	3,61.10 ⁻³
F13	4,70.10 ⁻⁴	F38	3,22.10 ⁻³
F17	2,35.10 ⁻⁴	mF1	1,92.10 ⁻³
F19	1,19.10 ⁻³	mF2	1,73.10 ⁻³
F21	5,62.10 ⁻⁴	mF4	2,41.10 ⁻³
F22	1,34.10 ⁻³	mF5	2,10.10 ⁻³
F26	7,21.10 ⁻⁴		

La concentration en SF₆ dans l'eau du site varie de 2,35.10⁻⁴ fmol.L⁻¹ dans le forage F17 à 4,08.10⁻³ fmol.L⁻¹ dans le forage F28. La concentration d'une eau de pluie actuellement en équilibre avec l'air atmosphérique est d'environ 2,2.10⁻³ fmol.L⁻¹. Par conséquent, les eaux de 6 forages ont des concentrations en SF₆ proches de celle d'une eau de pluie actuelle (mF1, mF4, mF5, F6, F11 et F35) et celles de 5 forages présentent un net excès en hexafluorure de soufre (F28, F32, F34, F37 et F38).

III.2.2. Consolidation du modèle hydrogéologique proposé : comparaison des concentrations en SF₆ et en ²²²Rn dans l'eau

La comparaison des concentrations en radon et en SF₆ mesurées dans l'eau (Figure V.9) fait tout d'abord ressortir un groupe d'eaux constitué des forages localisés à proximité du pompage de Kermadoye : F11, F28, F32, F34, F35, F37 et F38. Ces eaux, soumises à l'influence immédiate du pompage, présentent de fortes concentrations en SF₆, très supérieures à celle d'une eau de pluie actuelle pour les forages F28, F32, F34, F37 et F38. De plus, les activités volumiques du radon dans les eaux de ce groupe sont relativement élevées, les concentrations étant supérieures à 670 Bq.L⁻¹ dans l'eau des forages F28, F32, F34 et F35.

Les forages superficiels (mF1, mF2, mF4 et mF5) forment aussi un groupe distinct, avec des concentrations en SF₆ relativement proches de celle d'une eau de pluie actuelle et des activités volumiques du radon relativement faibles et comprises entre 110 et 250 Bq.L⁻¹.

Pour les forages F9, F13, F19, F21 et F26, il semble que les concentrations en SF₆ et en radon soient relativement bien corrélées (augmentation des concentrations), alors que dans l'eau des forages présentant les activités volumiques en radon les plus élevées (F6, F17 et F22) aucune

corrélation n'est notée avec la concentration en SF₆. Enfin, dans les autres forages du site de Stanger-Brune, B1 et B3, les concentrations en SF₆ et en radon varient peu et sont respectivement d'environ $1,5 \cdot 10^{-4}$ fmol.L⁻¹ et 625 Bq.L⁻¹.

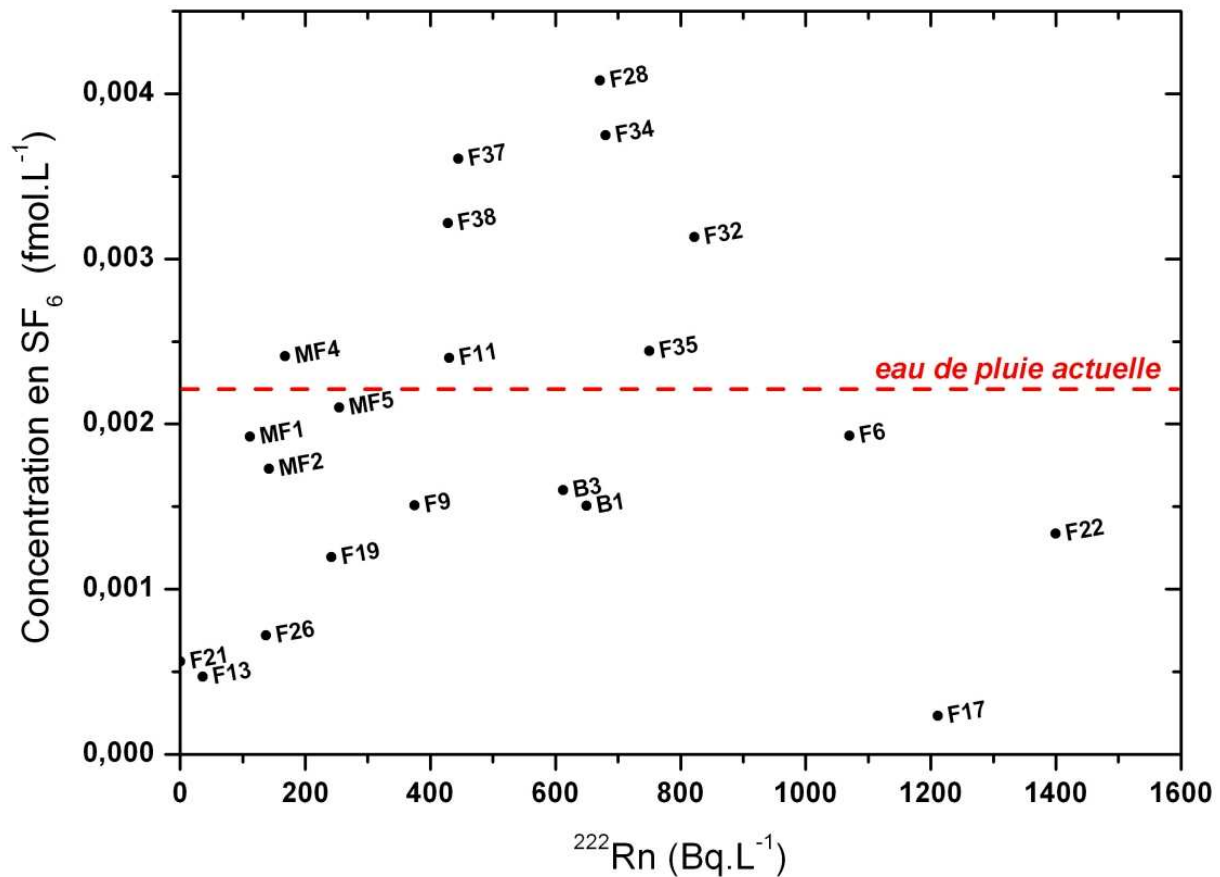


Figure V.9 : Concentration en SF₆ en fonction de l'activité volumique du radon dans l'eau. La ligne rouge en pointillés indique la concentration en SF₆ d'une eau de pluie actuelle en équilibre avec l'air atmosphérique. Les concentrations en radon ont été mesurées en avril 2005, à l'exception de celles des forages B1, B3 et F22, mesurées en décembre 2004.

Ayraud (2006) a proposé une estimation de l'âge apparent des eaux dans les différents forages du site de Kermadoye à partir des concentrations en CFC-11, CFC-12, CFC-113 et CCl₄ mesurées dans l'eau. Ces âges permettent de recalculer la concentration théorique en SF₆ de l'eau à l'équilibre avec l'air atmosphérique au moment de la recharge. Si l'origine du SF₆ dissous dans l'eau est uniquement atmosphérique, l'écart entre les concentrations mesurées et calculées devrait être minime. Les résultats présentés dans le Tableau V.2 indiquent, qu'à l'exception du forage F17, tous les forages ont une concentration en SF₆ supérieure à celle estimée à partir de l'âge de l'eau. L'écart est particulièrement important pour les forages situés à proximité de la zone de pompage (F11, F28, F32, F34, F35, F37, F38, mF1, mF2, mF4 et mF5).

Tableau V.2 : âges de l'eau dans les forages estimés par la méthode CFC, concentration en SF₆ mesurées dans l'eau, concentration en SF₆ théorique calculée à partir de l'âge de l'eau et écart entre concentrations en SF₆ mesurées et théoriques.

Forage	âge de l'eau (en années)	Concentration en SF ₆ mesurée (fmol.L ⁻¹)	Concentration en SF ₆ calculée (fmol.L ⁻¹)	Δ SF ₆ (fmol.L ⁻¹)
B1	24	1,50.10 ⁻³	4,34.10 ⁻⁴	1,07.10 ⁻³
B3	23	1,60.10 ⁻³	5,06.10 ⁻⁴	1,09.10 ⁻³
F6	21	1,93.10 ⁻³	5,78.10 ⁻⁴	1,35.10 ⁻³
F9	18	1,51.10 ⁻³	7,95.10 ⁻⁴	7,15.10 ⁻⁴
F11	39	2,40.10 ⁻³	7,20.10 ⁻⁵	2,33.10 ⁻³
F13	47	4,70.10 ⁻⁴	3,60.10 ⁻⁵	4,34.10 ⁻⁴
F19	20	1,19.10 ⁻³	6,50.10 ⁻⁴	5,40.10 ⁻⁴
F21	38	5,62.10 ⁻⁴	7,20.10 ⁻⁵	4,90.10 ⁻⁴
F22	32	1,34.10 ⁻³	1,45.10 ⁻⁴	1,20.10 ⁻³
F26	41	7,21.10 ⁻⁴	3,60.10 ⁻⁵	6,85.10 ⁻⁴
F28	21	4,08.10 ⁻³	5,78.10 ⁻⁴	3,50.10 ⁻³
F32	25	3,13.10 ⁻³	3,97.10 ⁻⁴	2,73.10 ⁻³
F34	18	3,75.10 ⁻³	7,95.10 ⁻⁴	2,96.10 ⁻³
F35	24	2,44.10 ⁻³	4,34.10 ⁻⁴	2,01.10 ⁻³
F37	16	3,61.10 ⁻³	9,03.10 ⁻⁴	2,71.10 ⁻³
F38	38	3,22.10 ⁻³	7,20.10 ⁻⁵	3,15.10 ⁻³
mF1	22	1,92.10 ⁻³	5,42.10 ⁻⁴	1,38.10 ⁻³
mF2	27	1,73.10 ⁻³	2,89.10 ⁻⁴	1,44.10 ⁻³
mF4	24	2,41.10 ⁻³	4,34.10 ⁻⁴	1,98.10 ⁻³
mF5	21	2,10.10 ⁻³	5,78.10 ⁻⁴	1,52.10 ⁻³
F17	21	2,35.10 ⁻⁴	5,78.10 ⁻⁴	-3,43.10 ⁻⁴

L'influence de la nature de la roche encaissante de l'aquifère sur la concentration en SF₆ de l'eau est indéniable puisque la majorité des eaux des forages du site ont des concentrations très supérieures à celle apportées uniquement par dissolution du SF₆ atmosphérique.

Aucune relation entre la concentration en SF₆ et l'activité volumique du radon dans l'eau n'apparaît distinctement dans l'aquifère de Ploemeur. Si une corrélation semble exister entre l'augmentation de ces deux gaz dans l'eau d'un nombre restreint de forages (F9, F13, F19, F21 et F26), celle-ci n'est pas vérifiée dans l'ensemble des eaux souterraines. En revanche, les concentrations en SF₆ élevées mesurées dans les forages du site de Kermadoye, en particulier pour ceux soumis à un débit de pompage important, semblent confirmer le modèle hydrogéologique proposé précédemment lors de l'étude des concentrations en nitrates, sulfates et radon des eaux. En effet, l'apport d'une eau, enrichie en SF₆ et issue des zones moins perméables de l'aquifère, au flux d'eau circulant dans le réseau de fractures principal, paraît être confirmé par les concentrations en SF₆ mesurées à Kermadoye.

Comme l'illustre la Figure V.10, l'eau contenue dans les zones moins perméables de l'aquifère est susceptible d'être enrichie en SF₆ et en radon par rapport à celle circulant dans le réseau de fracture

très perméable. En effet, comme pour le radon, plus le rapport entre la surface de roche exhalant le gaz et le volume d'eau disponible est grand, plus la concentration de ce gaz dans l'eau est élevée. Par conséquent, plus la perméabilité d'un milieu est faible, plus la concentration est élevée. De plus, contrairement au radon, le SF₆ ne se désintègre pas avec le temps : il est donc susceptible de s'accumuler de manière plus conséquente.

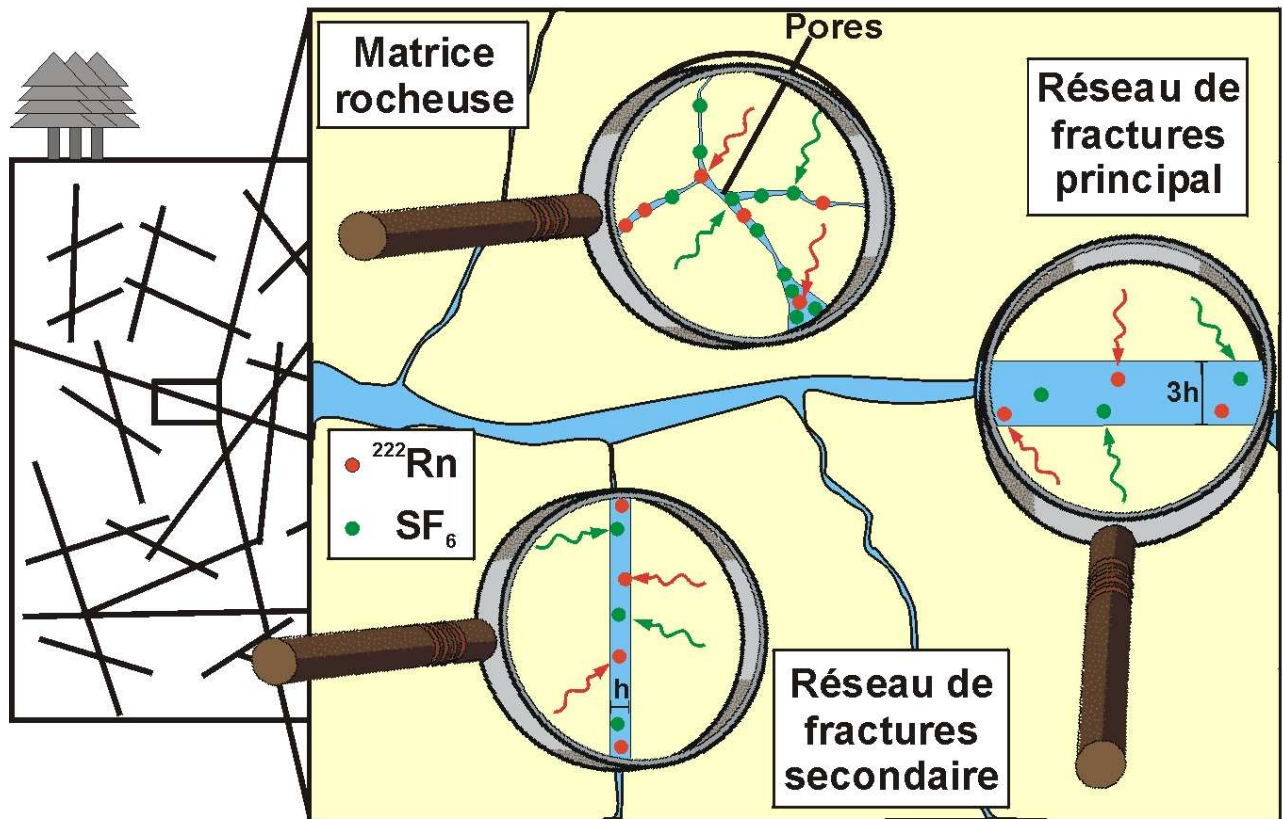


Figure V.10 : Représentation schématique de l'influence de l'épaisseur des fractures sur les concentration en SF₆ et ²²²Rn dans l'eau.

Les concentrations en SF₆ mesurées dans l'eau sont donc en mesure de fournir des renseignements précieux sur les échanges hydrauliques entre les zones perméables et peu perméables de l'aquifère.

En effet, si l'on suppose un flux en SF₆ de la roche vers l'eau constant dans l'aquifère, une augmentation des flux hydrauliques dans les fractures entraînerait théoriquement une diminution de la concentration en SF₆ dans l'eau. En revanche, si l'augmentation des flux hydrauliques se traduit par une contribution plus importante de zones moins perméables, il est possible d'accroître la teneur en SF₆ dans l'eau des forages. A Kermadoye, la sursaturation élevée en SF₆ des forages situés dans le périmètre d'influence immédiat du pompage laisse supposer une contribution des zones moins perméables de l'aquifère, caractérisées par des eaux enrichies en SF₆. Pour les forages influencés

directement par le pompage, une modification des flux hydrauliques provoquerait une sollicitation plus importante de la matrice avec comme conséquence une augmentation de la concentration en SF₆ dans l'eau des fractures perméables.

Ces observations tendent à confirmer les résultats obtenus lors de la caractérisation des activités volumiques du radon dans les eaux de Kermadoye, en conditions de flux influencées par le pompage, et de Stang-er-Brune, en conditions de flux naturelles.

IV. PROPOSITION D'UN MODELE DE FONCTIONNEMENT HYDROCHIMIQUE DE L'AQUIFERE DE PLOEMEUR : APPORT DE LA CHIMIE DES EAUX ET DU RADON-222

Dans le chapitre IV, les activités volumiques en radon obtenues par l'utilisation d'un modèle assimilant le réseau de fractures à une unique fracture ont été globalement proches de celles mesurées dans les eaux souterraines de l'aquifère de Ploemeur. Ces résultats indiquent que les circulations hydrauliques dans l'aquifère pouvaient être limitées essentiellement aux fractures très perméables de la roche. Cependant, certains écarts de concentrations observés pour certains forages et les résultats obtenus lors des essais de pompages réalisés à Stang-er-Brune permettent d'émettre l'hypothèse qu'un flux hydraulique existe également entre les zones moins perméables de la roche et le réseau de fractures principal. Le modèle conceptuel proposé dans le chapitre IV (§I.2.3.2) consiste à considérer l'aquifère sous la forme d'un système à perméabilités multiples (le réseau de fracture, à perméabilité élevée et la matrice rocheuse, à faible perméabilité). Selon ce modèle, le "réseau de fractures" serait constitué des zones d'écoulement d'eau préférentielles dans les fractures, alors que sous la dénomination "matrice rocheuse", seraient regroupés à la fois la roche mère non fracturée, les surfaces des fractures principales, ainsi qu'éventuellement des réseaux de fractures secondaires de plus faible perméabilité. Des échanges hydrauliques seraient susceptibles d'exister entre ces différents compartiments. Le modèle conceptuel proposé est illustré par la Figure V.11.

Comme nous l'avons indiqué auparavant, les résultats obtenus par Tarits et al. (2006), lors de l'étude de la chimie des eaux souterraines de Kermadoye, leur ont permis de formuler deux hypothèses pour expliquer l'évolution chimique de l'aquifère, suite au début de son exploitation. (1) Soit la dénitrification observée est liée à une diminution de la vitesse de circulation de l'eau

Ouest

Est

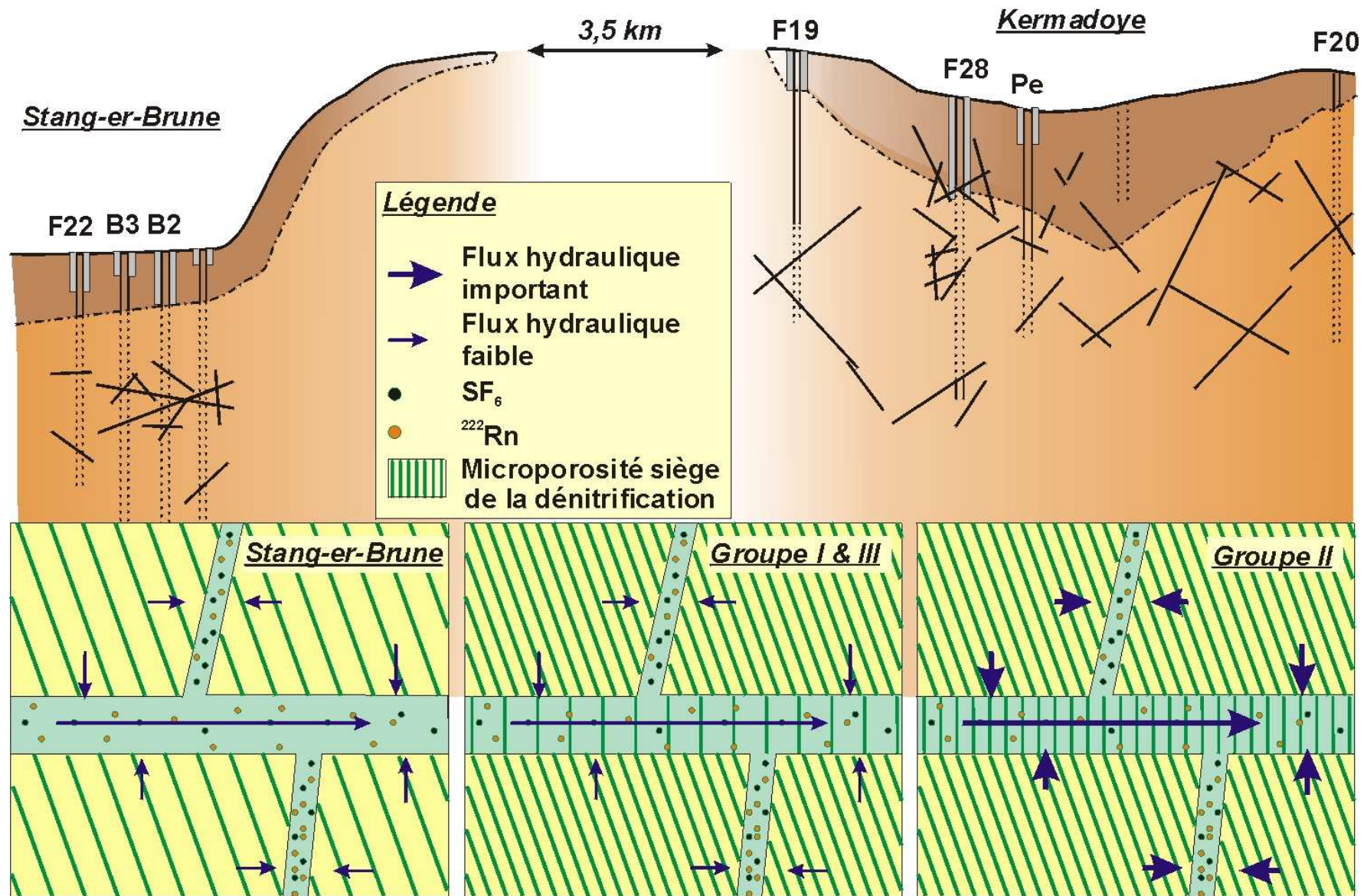


Figure V.11 : Schéma conceptuel illustrant l'influence des flux hydrauliques sur les concentrations en SF₆ et ²²²Rn ainsi que sur la dénitrification.

engendrée par une augmentation du flux hydraulique sous l'effet du pompage, cette augmentation ayant pour effet de modifier la distribution des vitesses dans cette zone de l'aquifère par l'accroissement du nombre de zones où l'eau circule plus lentement. (2) Soit le pompage provoque l'augmentation de la vitesse de l'eau dans les fractures, sans que les zones de circulation dans l'aquifère soient modifiées.

Les eaux de la matrice seraient alors susceptibles de présenter un stade de dénitrification plus avancée que celle circulant dans le réseau de fractures principal. De plus, dans le paragraphe I.2.3.2 du chapitre IV, il a été estimé que l'eau de la "matrice rocheuse" serait enrichie en radon. La comparaison des concentrations en nitrates, sulfates et radon indiquerait que, sous l'effet du pompage, un flux hydraulique important existe à Kermadoye entre les zones peu perméables de l'aquifère et les fractures très perméables. Cependant, à Stang-er-Brune, en condition de flux hydrauliques naturels, aucune relation particulière entre ces éléments n'apparaît et ne permet de préciser les relations existant entre la matrice rocheuse et les fractures.

La comparaison des résultats obtenus, lors de la caractérisation des concentrations en SF₆ et de l'activité volumique du radon dans l'eau de l'aquifère, renforce l'hypothèse d'une redistribution des vitesses dans l'aquifère, en réaction à l'augmentation des flux hydrauliques imposée par le pompage à Kermadoye. De plus, les concentrations en SF₆ mesurées dans les eaux de Stang-er-Brune appuient l'hypothèse d'une contribution de la matrice. En effet, les concentrations théoriques en SF₆ de ces eaux, calculées à l'aide des âges estimés de ces dernières, montrent un enrichissement probablement lié à une origine géologique du SF₆. Un flux hydraulique entre la matrice rocheuse et le réseau de fractures existerait donc également dans les zones de l'aquifère qui ne sont pas soumises aux effets d'un pompage, ce flux augmentant les concentrations en radon et en SF₆ de l'eau circulant dans les fractures de ces sites.

Afin de vérifier cette hypothèse, de nouveaux essais de pompages pourraient être envisagés sur le site de Stang-er-Brune. En effet, nous devrions alors pouvoir observer, à partir de nouvelles mesures simultanées, l'évolution des concentrations en nitrates, SF₆ et radon dans l'eau, au cours d'un pompage. Cette expérimentation sur un site, dont les flux ne sont pas influencés par le pompage de Kermadoye, permettrait ainsi de valider l'hypothèse de l'influence, sur la composition de l'eau des forages, d'une eau enrichie en SF₆ et en radon et présentant une dénitrification importante.

Conclusion générale

La préservation des ressources en eaux souterraines et la prospection de nouveaux réservoirs pouvant être exploités sont l'un des enjeux scientifiques majeurs actuels. Dans cette perspective, les réserves en eaux contenues dans les milieux peu perméables et fracturés sont l'une des voies de recherche explorées. Cependant, le fonctionnement de tels systèmes est encore mal connu. Il devient alors essentiel de bien connaître les mécanismes qui gouvernent les flux et la chimie de ce type de réservoir, pour une meilleure maîtrise de la gestion de ces ressources.

L'objectif de ce travail de thèse était de déterminer si le radon-222 pouvait être utilisé en tant qu'outil permettant d'accroître la compréhension des mécanismes contrôlant les flux et la chimie de l'eau dans un système aquifère en milieu fracturé de socle. Le site choisi pour cette étude est localisé à Ploemeur (Morbihan) et fait partie des zones de la Bretagne où des ressources en eaux souterraines importantes ont été découvertes dans des roches granitiques et dans lesquelles des puits profonds ont été mis en exploitation.

La méthodologie mise en œuvre a tout d'abord consisté à mesurer, à différentes périodes, la concentration en radon dans l'eau à plusieurs profondeurs dans les forages du site étudié. Après avoir déterminé les paramètres qui contrôlent l'activité volumique de ce gaz dans l'eau, l'estimation de leurs valeurs a été réalisée. Une fois cette étape accomplie, nous avons tenté de modéliser les activités volumiques du radon dans les eaux souterraines de l'aquifère de Ploemeur.

Les résultats obtenus au cours de cette thèse ont concerné, dans un premier temps, la **caractérisation des concentrations en radon dans l'aquifère**. Les activités volumiques du radon, mesurées au cours des campagnes de mesures réalisées, sont fortement variables dans les eaux souterraines. La gamme mesurée s'étend, en effet, de quelques Bq.L^{-1} à $1\,500\ \text{Bq.L}^{-1}$, avec des variations, significativement importantes, en fonction de la profondeur, mais également entre les forages du site. Ainsi, de grands contrastes d'activités volumiques du radon ont été mis en évidence dans l'eau de forages séparés par de très faibles distances, avec des écarts de concentration parfois supérieurs à $500\ \text{Bq.L}^{-1}$, entre des forages distants de quelques dizaines de mètres.

Cette étude a également permis de déterminer que **l'activité volumique du radon dans l'eau dépend de plusieurs facteurs** : les caractéristiques lithologiques et géochimiques de la roche en contact avec l'eau, les propriétés hydrauliques du réseau de fractures principal, les échanges hydrauliques entre les zones peu perméables de l'aquifère (matrice rocheuse) et le réseau de fractures.

L'influence de la **lithologie et de la géochimie des roches** a été étudiée lors de la caractérisation du terme source en radon. Celle-ci a été réalisée en mesurant la concentration en radium-226 et le flux d'exhalation du radon des roches du site.

L'**activité massique en radium-226** de la roche varie suivant la lithologie et peut atteindre des valeurs élevées. Ainsi, la gamme de concentration en radium mesurée dans les micaschistes s'étend de 50 à 93 Bq.kg⁻¹ avec une moyenne de 77 Bq.kg⁻¹. Les activités massiques du radium, mesurées dans le granite du forage de Stang-er-Brune, sont comprises entre 136 et 227 Bq.kg⁻¹ avec une moyenne de 190 Bq.kg⁻¹, alors que celles mesurées dans celui du Couregant varient entre 73 et 178 Bq.kg⁻¹ avec une moyenne de 130 Bq.kg⁻¹. Sur l'ensemble des échantillons granitiques des deux forages, la moyenne des concentrations en radium mesurées est de 156 Bq.kg⁻¹.

Le **flux d'exhalation du radon** a été mesuré sur six échantillons de roche du site de Stang-er-Brune. Nous avons sélectionné deux échantillons de micaschistes et quatre de granite afin de disposer des lithologies représentatives des différents états de fracturation et d'altération des roches. Les flux d'exhalation mesurés sur les micaschistes sont de 0,5 et 0,9 mBq.m⁻².s⁻¹ et ceux mesurés sur les échantillons de granite sont compris entre 0,5 et 1,3 mBq.m⁻².s⁻¹. Comparés à la gamme de flux d'exhalation du radon des granites disponible dans la littérature (0,08 à 9 mBq.m⁻².s⁻¹), les flux mesurés peuvent être considérés comme faibles, malgré des concentrations en radium des roches élevées. Le flux le plus élevé (1,3 mBq.m⁻².s⁻¹) a été mesuré sur un échantillon prélevé à une profondeur correspondant à une zone intensément fracturée. Il présente des traces d'oxydation et d'altération importantes, probablement liées à la circulation d'eau dans les fractures.

Bien que ces valeurs de flux soient peu élevées, il semblerait que celles-ci suffisent à expliquer les activités volumiques du radon dans les eaux souterraines de Ploemeur. En effet, nous avons étudié l'influence des propriétés hydrauliques des fractures en appliquant avec succès le modèle de Nelson et al. (1983) qui simplifie la géométrie du réseau de fractures. Ce modèle permet de calculer la concentration en radon dans l'eau en assimilant ce réseau à une fracture unique possédant des propriétés hydrauliques équivalentes. Si les résultats obtenus sont satisfaisants à

première vue, des écarts significatifs apparaissent, pour certains forages, entre les activités volumiques du radon mesurées et celles calculées en utilisant le modèle. De plus, les tests de pompages, réalisés sur l'un des sites étudiés, ont permis de montrer que le système hydrogéologique de Ploemeur ne peut être uniquement réduit au réseau de fractures, et que l'eau contenue dans les pores des parties non altérées de la roche doit aussi être prise en compte. En effet, l'hypothèse formulée dans ce travail implique l'existence de flux hydrauliques entre la matrice rocheuse peu perméable et les fractures très perméables. L'apport d'une eau provenant de la matrice permettrait d'expliquer, d'une part, les augmentations apparues après un pompage ponctuel important, et, d'autre part, les écarts observés dans certains forages entre les activités mesurées et celles calculées en utilisant un modèle de fracture unique.

Ces résultats ont ainsi permis de distinguer deux mécanismes qui contrôlent les concentrations en radon dans l'eau de l'aquifère granitique fracturé de Ploemeur. **(1) Le flux hydraulique dans les fractures, gouverné par les propriétés géométriques de celles-ci** – les résultats de la modélisation des activités volumiques du radon dans l'eau semblent indiquer que l'épaisseur des fractures est l'un des paramètres qui détermine fortement la concentration en radon. En effet, Les activités volumiques les plus élevées ont été mesurées dans les zones peu perméables de l'aquifère (forage F22 : 1597 Bq.L^{-1}). Dans ces forages, l'eau circule lentement dans des fractures de faible épaisseur. En revanche, les concentrations les plus basses ont été mises en évidence dans les forages très perméables caractérisés par des épaisseurs de fracture importantes (forage F19 : 125 Bq.L^{-1}). **(2) Les échanges hydrauliques matrice/fracture** – la nette augmentation de la concentration en radon dans l'eau, après avoir exercé un pompage important dans un forage, permet d'émettre l'hypothèse d'échanges hydrauliques entre la matrice rocheuse et le réseau de fractures. Toutefois, il est encore difficile de pouvoir apprécier le rôle de l'eau contenue dans la matrice en conditions naturelles.

Des informations fournies par des **traceurs supplémentaires** (rapport $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ et concentrations en SF_6 dans l'eau) tendent à confirmer le modèle conceptuel de fonctionnement de l'aquifère de Ploemeur que nous avons proposé à partir de la modélisation des activités volumiques du radon dans l'eau. Une eau issue des zones peu perméables de l'aquifère (constituées de la matrice rocheuse non altérée caractérisée par une faible porosité et des fractures de faible épaisseur) alimenterait le réseau de fractures très perméables. Cette eau, de par les propriétés hydrauliques de la roche, serait enrichie en radon et en SF_6 et soumise à une dénitrification beaucoup plus importante que l'eau circulant rapidement dans le réseau de fractures principal. Selon les zones de l'aquifère et les conditions hydrogéologiques, le flux hydraulique entre la matrice rocheuse peu

perméable et le réseau de fractures serait plus ou moins important. Les écarts de concentrations, observés lors de la modélisation de l'activité volumique du radon dans l'eau en utilisant un modèle réduisant la définition de l'aquifère aux zones très perméables, trouveraient ainsi une explication.

Ces résultats encouragent l'utilisation du radon comme traceur des flux hydrauliques dans les aquifères fracturés, que ce soit dans le réseau de fractures principal ou entre les zones de perméabilités différentes. Cependant, ils suggèrent également que, pour caractériser l'apport d'eau des zones peu perméables de l'aquifère, un travail plus complet de comparaison des concentrations en radon avec celles d'autres traceurs mesurés simultanément, telles que le SF₆ ou les nitrates, constituerait une piste intéressante à suivre, afin d'aboutir à des conclusions plus élaborées.

Afin d'approfondir le travail réalisé dans le cadre de cette thèse, il est indispensable de poursuivre la modélisation des activités en ²²²Rn des eaux souterraines. En effet, une interrogation subsiste sur la capacité du modèle à fracture unique à être appliqué à d'autres sites localisés en milieu fracturé, d'autres études ayant montré une absence de corrélation entre la transmissivité de l'aquifère et la concentration en radon-222 dans les eaux souterraines de certains sites en milieu fracturé (Wood et al., 2004 ; Rumbaugh, 1983). Il serait intéressant de mesurer l'activité volumique du radon dans l'eau d'autres sites en milieu fracturé, par exemple, ceux étudiés par les équipes du CAREN (Hanvec, Betton ou Naizin), afin de vérifier si la modélisation de ces systèmes sous la forme d'une fracture unique donne des résultats similaires à ceux obtenus à Ploemeur.

Il reste également à mieux caractériser le terme source du ²²²Rn des roches sur l'ensemble du site de Ploemeur. En effet, des incertitudes subsistent quant à la représentativité de la valeur de flux d'exhalation du radon des roches retenue lors de l'application du modèle de Nelson et al. (1983) pour l'ensemble de l'aquifère. Afin de consolider les résultats obtenus dans cette étude, de nouvelles mesures des flux d'exhalation sont à envisager sur d'autres échantillons de roches prélevés dans le forage B1 du site de Stang-er-Brune. En outre, pour caractériser le flux d'exhalation du radon des roches du site de Kermadoye, il serait nécessaire de pouvoir disposer d'échantillons de roches représentatifs de la lithologie de cette partie de l'aquifère. Néanmoins, ce point nécessite la réalisation d'un nouveau forage carotté dans ce secteur, ce projet n'étant pas envisagé à ce jour.

Enfin, l'étude des flux hydrauliques entre la matrice rocheuse et le réseau de fractures nécessite d'être approfondie afin de préciser les conclusions énoncées au chapitre V. Dans cet objectif, des

Conclusion générale

essais de pompage complémentaires peuvent être envisagés sur le site de Stang-er-Brune. A l'aide des résultats de ces expérimentations, il serait possible d'améliorer la caractérisation de la phase de réaction du système. De plus, la mesure conjointe, au cours de ces pompages, des concentrations en ^{222}Rn et SF_6 dans l'eau permettrait d'accroître la compréhension des échanges, entre la matrice et le réseau de fractures, des éléments dissous dans l'eau.

Références

AFNOR, 1999a. NF ENV 13005 - Guide pour l'expression de l'incertitude de mesure (GUM).

AFNOR, 1999b. NF M60-767 - Énergie nucléaire - Mesures de la radioactivité dans l'environnement-Air - Le radon 222 : Méthodes de mesure en continu de l'activité volumique du radon dans l'environnement atmosphérique.

AFNOR, 1999c. NF M60-790-6 - Énergie nucléaire - Mesure de la radioactivité dans l'environnement - Sol - Partie 6 : méthode pour la mesure de l'activité des émetteurs gamma dans les échantillons de sol.

AFNOR, 2001. NF M60-803 - Énergie nucléaire - Mesure de la radioactivité dans l'environnement - Eau - Mesurage de l'activité du radium 226 dans l'eau.

AFNOR, 2002. NF M60-768 - Énergie nucléaire - Mesure de la radioactivité dans l'environnement air - Le Radon 222: Méthodes d'estimation du flux surfacique d'exhalation par méthode d'accumulation.

Al-Jarallah, M., 2001. Radon exhalation from granites used in Saudi Arabia. *Journal of Environmental Radioactivity* 53(1): 91-98.

Andrews, J.N., Davis, S.N., Fabryka-Martin, J., Fontes, J.C., Lehmann, B.E., Loosli, H.H., Michelot, J.L., Moser, H., Smith, B. & Wolf, M., 1989a. The in situ production of radioisotopes in rock matrices with particular reference to the Stripa granite. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 53(8): 1803-1815.

Andrews, J.N., Ford, D.J., Hussain, N., Trivedi, D. & Youngman, M.J., 1989b. Natural radioelement solution by circulating groundwaters in the Stripa granite. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 53(8): 1791-1802.

Andrews, J.N., Giles, I.S., Kay, R.L.F., Lee, D.J., Osmond, J.K., Cowart, J.B., Fritz, P., Barker, J.F. & Gale, J., 1982. Radioelements, radiogenic helium and age relationships for groundwaters from the granites at Stripa, Sweden. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 46(9): 1533-1543.

Andrews, J.N., Hussain, N., Batchelor, A.S. & Kwakwa, K., 1986. ^{222}Rn solution by the circulating fluids in a "hot dry rock" geothermal reservoir. *Applied Geochemistry* 1(6): 647-657.

Andrews, J.N., Hussain, N. & Youngman, M.J., 1989c. Atmospheric and radiogenic gases in groundwaters from the Stripa granite. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 53(8): 1831-1841.

Andrews, J.N. & Wood, D.F., 1972. Mechanism of radon release in rock matrices and entry into groundwaters. *Transactions of the Institution of Mining and Metallurgy* B81: 198-209.

Ayraud, V., 2005. Détermination du temps de résidence des eaux souterraines : application au transfert d'azote dans les aquifères fracturés hétérogènes. Thèse de Doctorat, Université de Rennes 1.

Ayraud, V., Aquilina, L., Pauwels, H., Labasque, T., Pierson-Wickmann, A.-C., Aquilina, A.-M., Gallat, G., 2006. Physical, biogeochemical and isotopic processes related to heterogeneity of a shallow crystalline rock aquifer. *Biogeochemistry*, 81 (3), pp. 331-347.

Backblom, G., Stanfors, R., Gustafson, G., Rhen, I., Wikberg, P., Olsson, O. & Thegerstrom, C., 1997. Aspö Hard Rock Laboratory--Research, development and demonstration for deep disposal of spent nuclear fuel. *Tunnelling and Underground Space Technology* 12(3): 385-406.

- Banks, D., Frengstad, B., Midtgard, A.K., Krog, J.R. & Strand, T., 1998a. The chemistry of Norwegian groundwaters: I. The distribution of radon, major and minor elements in 1604 crystalline bedrock groundwaters. *The Science of The Total Environment* 222(1-2): 71-91.
- Banks, D., Reimann, C. & Skarphagen, H., 1998b. The comparative hydrochemistry of two granitic island aquifers: the Isles of Scilly, UK and the Hvaler Islands, Norway. *The Science of The Total Environment* 209(2-3): 169-183.
- Banwell, G.M. & Parizek, R.R., 1988. Helium-4 and Radon-222 concentrations in groundwater and soil as indicators of zones of fracture concentration in unexposed rock. *Journal of Geophysical Research*. 93(B1): 355-366.
- Berkowitz, B., 2002. Characterizing flow and transport in fractured geological media: A review. *Advances in Water Resources* 25(8-12): 861-884.
- Bernard-Griffiths, J., Peucat, J.J., Sheppard, S.M.F. & Vidal, P., 1985. Petrogenesis of Hercynian leucogranites from the southern Armorican Massif: contribution of REE and isotopic (Sr, Nd, Pb and O) geochemical data to the study of source rock characteristics and ages. *Earth and Planetary Science Letters* 74: 235-250.
- Bouhnik-Le Coz, M. & Petitjean, P., 2001. Validation d'un protocole permettant le dosage simultané des cations majeurs et traces dans les eaux douces naturelles par ICP-MS. Rennes, Géosciences Rennes.
- Burnett, W.C., Aggarwal, P.K., Aureli, A., Bokuniewicz, H., Cable, J.E., Charette, M.A., Kontar, E., Krupa, S., Kulkarni, K.M., Loveless, A., Moore, W.S., Oberdorfer, J.A., Oliveira, J., Ozyurt, N., Povinec, P., Privitera, A.M.G., Rajar, R., Ramessur, R.T., Scholten, J., Stieglitz, T., Taniguchi, M. & Turner, J.V., 2006. Quantifying submarine groundwater discharge in the coastal zone via multiple methods. *Science of the Total Environment* 367(2): 498-543.
- Cable, J.E., Burnett, W.C., Chanton, J.P. & Weatherly, G.L., 1996. Estimating groundwater discharge into the northeastern Gulf of Mexico using radon-222. *Earth and Planetary Science Letters* 144(3-4): 591-604.
- Cacas, M.C., 1990a. Modeling fracture flow with a stochastic discrete fracture network: calibration and validation. 2. The transport model. *Water Resources Research* 26(3): 491-500.
- Cacas, M.C., 1990b. Modeling fracture flow with a stochastic discrete fracture network: calibration and validation. I. The flow model. *Water Resources Research* 26(3): 479-489.
- Carrera, G., Garavaglia, M., Magnoni, S., Valli, G. & Vecchi, R., 1997. Natural radioactivity and radon exhalation in stony materials. *Journal of Environmental Radioactivity* 34(2): 149-159.
- Chao, C.Y.H. & Tung, T.C.W., 1999. Radon emanation of building material-impact of back diffusion and difference between one-dimensional and three-dimensional tests. *Health Physics* 76: 675-681.
- Choubey, V.M., Bartarya, S.K. & Ramola, R.C., 2003. Radon in groundwater of eastern Doon valley, Outer Himalaya. *Radiation Measurements* 36(1-6): 401-405.
- Choubey, V.M. & Ramola, R.C., 1997. Correlation between geology and radon levels in groundwater, soil and indoor air in Bhilangana Valley, Garhwal Himalaya, India. *Environmental Geology* 32(4): 258-262.
- Christensen, T., Ehdwall, H. et Stranden, E. (eds.), 1990. *Natural Radiation, Nuclear Wastes and Chemical Pollutants*. Nordic Liaison Committee for Atomic Energy, Stockholm.
- Cook, P.G., Love, A.J. & Dighton, J.C., 1999. Inferring ground water flow in fractured rock from dissolved radon. *Ground Water* 37(4): 606-610.

Dahlkamp, F.J., 1993. Uranium Ore Deposits. Springer-Verlag ed., 442 pp.

Darcy, H., 1856. Les fontaines publiques de la ville de Dijon. Paris.

de Dreuzy, J.R., 2000. Analyse des propriétés hydrauliques des réseaux de fractures : discussion des modèles d'écoulement compatibles avec les principales propriétés géométriques. Thèse de Doctorat, Université de Rennes 1.

de Marsily, G., 1986. Quantitative Hydrogeology; Groundwater Hydrology for Engineers.

Eisenlohr, L. & Heinz, S., 1995. Radon as a natural tracer to study transport processes in a karst system. An example in the Swiss Jura. Comptes Rendus - Academie des Sciences, Serie II: Sciences de la Terre et des Planetes 321(9): 761-767.

Ellins, K.K., Roman-Mas, A. & Lee, R., 1990. Using ^{222}Rn to examine groundwater/surface discharge interaction in the Rio Grande de Manati, Puerto Rico. Journal of hydrology 115(1-4): 319-341.

Ellis, P.A., Riley, M.S., Gresswell, R.B. & Isakov, E.B., 2004. Report on the Ploemeur Site construction, Geology and Structure. unpublished manuscript.

Etioppe, G. & Martinelli, G., 2002. Migration of carrier and trace gases in the geosphere: an overview. Physics of The Earth and Planetary Interiors 129(3-4): 185-204.

Fabryka-Martin, J.T., Davis, S.N., Elmore, D. & Kubik, P.W., 1989. In situ production and migration of ^{129}I in the Stripa granite, Sweden. Geochimica et Cosmochimica Acta 53(8): 1817-1823.

Fleischer, R.L., 1982. Alpha-recoil damage and solution effects in minerals: uranium isotopic disequilibrium and radon release. Geochimica et Cosmochimica Acta 46(11): 2191-2201.

Folger, P.F., Nyberg, P., Wanty, R.B. & Poeter, E., 1994. Relationships between ^{222}Rn dissolved in ground water supplies and indoor ^{222}Rn concentrations in some Colorado front range houses. Health Physics 67(3): 245-253.

Folger, P.F., Poeter, E., Wanty, R.B., Day, W. & Frishman, D., 1997. ^{222}Rn transport in a fractured crystalline rock aquifer: results from numerical simulations. Journal of hydrology 195: 45-77.

Folger, P.F., Poeter, E., Wanty, R.B., Day, W. & Frishman, O., 1996. Controls on ^{222}Rn variations in a fractured crystalline rock aquifer evaluated using aquifer tests and geophysical logging. Ground Water 34(2): 250-261.

Fritz, P., 1997. Saline groundwater and brines in crystalline rocks: the contributions of John Andrews and Jean-Charles Fontes to the solution of a hydrogeological and geochemical problem. Applied Geochemistry 12(6): 851-856.

Fukui, M., 1985. Continuous monitoring of ^{222}Rn concentration in unconfined groundwater. Journal of hydrology 82(3): 371-380.

Gregory, R.G. & Durrance, E.M., 1987. Helium, radon and hydrothermal circulation associated with the Carnmenellis radiothermal granite of South West England. Journal of Geophysical Research. 92B: 12567-12586.

Gudzenko, V., 1992. Radon in subsurface water studies. Pp 249-261. Proceedings of a Consultants Meeting on Isotopes of Noble Gases as Tracers in Environmental Studies, IAEA, Vienna.

- Hakami, E. & Larsson, E., 1996. Aperture measurements and flow experiments on a single natural fracture. *International journal of rock mechanics and mining sciences & geomechanics abstracts* 33(4): 395-404.
- Hamada, H., 2000. Estimation of groundwater flow rate using the decay of ^{222}Rn in a well. *Journal of Environmental Radioactivity* 47(1): 1-13.
- Hammond, D.E., Leslie, B.W. & Ku, T.L., 1988. ^{222}Rn concentrations in deep formation waters and the geohydrology of the Cajon Pass borehole. *Geophysical Research Letters* 15(9): 1045-1048.
- Harnisch, J. & Eisenhauer, A., 1998. Natural CF_4 and SF_6 on Earth. *Geophysical Research Letters* 25(13): 2401–2404.
- Harnisch, J., Frische, M., Borchers, R., Eisenhauer, A. & Jordan, A., 2000. Natural fluorinated organics in fluorite and rocks. *Geophysical Research Letters* 27(13): 1883–1886.
- Hoehn, E. & von Gunten, H.R., 1989. Radon in Groundwater: A tool to assess infiltration from surface waters to aquifers. *Water Resources Research* 25(8): 1795-1803.
- Hoehn, E., Von Gunten, H.R., Stauffer, F. & Dracos, T., 1992. Radon-222 as a groundwater tracer. A laboratory study. *Environmental Science and Technology* 26(4): 734-738.
- Howard, J.H. & Nolen-Hoeksema, R.C., 1990. Description of natural fracture systems for quantitative use in petroleum geology. *American Association of Petroleum Geologists Bulletin* 74(2): 151-162.
- Kafri, U., 2001. Radon in groundwater as a tracer to assess flow velocities: two test cases from Israel. *Environmental Geology* 40(8): 392-398.
- Kato, O., Doi, N., Sakagawa, Y. & Uchida, T., 1998. Fracture systematics in and around well WD-1, kakkonda geothermal field, japan. *Geothermics* 27(5-6): 609-629.
- Keller, G., Hoffmann, B. & Feigenspan, T., 2001. Radon permeability and radon exhalation of building materials. *The Science of The Total Environment* 272(1-3): 85-89.
- Kharatian, K., Travi, Y. & Igoumnov, V., 2002. Radon soil-gas concentrations and local seismicity: Case of the Arax basin (Armenia). *Activité du gaz radon dans l'air du sol et sismicité locale: Exemple du bassin de l'Arax (Arménie)* 334(3): 179-185.
- King, C.Y., Koizumi, N. & Kitagawa, Y., 1995. Hydrogeochemical anomalies and the 1995 Kobe earthquake. *Science* 269: 33-34.
- Kojima, K. & Ohno, H., 1987. Connection between farfield and nearfield in relation to the fractures and/or flowpaths for the geological isolation of radioactive wastes. *Proc. 6th congress International Society for Rock Mechanics, Montreal, 1987. Vol. 1: 159-162.*
- Kranz, R., 1966. Organische Fluor-Verbindungen in den Gaseinschlüssen der Wölsendorfer Flußspäte. *Die Naturwissenschaften* 53(23): 593 - 600.
- Kronfeld, J., Ilani, S. & Strull, A., 1991. Radium precipitation and extreme ^{238}U -series disequilibrium along the Dead Sea coast, Israel. *Applied Geochemistry* 6(3): 355-361.
- Lawrence, E., Poeter, E. & Wanty, R., 1991. Geohydrologic, geochemical, and geologic controls on the occurrence of radon in ground water near Conifer, Colorado, USA. *Journal of hydrology* 127(1-4): 367-386.
- Le Borgne, T., 2004. Mesure in situ et modélisation de l'hétérogénéité des écoulements dans les milieux géologiques. Thèse de Doctorat, Université de Rennes 1.

- Le Borgne, T., Bour, O., Riley, M., Gouze, P., Lods, G., Belghoul, A., Greswell, R., Le provost, R. & Pezard, P., 2007. Comparison of alternative methodologies for identifying and characterizing preferential flow paths in heterogeneous aquifers. *Journal of Hydrology*, doi:10.1016/j.jhydrol.2007.07.007
- Lee, S.C., Kim, C.K., Lee, D.M. & Kang, H.D., 2001. Natural radionuclides contents and radon exhalation rates in building materials used in South Korea. *Radiation Protection Dosimetry* 94(3): 269-274.
- Legout, C., Molenat, J., Lefebvre, S., Marmonier, P. & Aquilina, L., 2005. Investigation of biogeochemical activities in the soil and unsaturated zone of weathered granite. *Biogeochemistry* 75(2): 329-350.
- Levinson, A., Bland, C. & Lively, R., 1982. Exploration for U ore deposits. In M. Ivanovitch et R.S Harmon. *Uranium Series Disequilibrium: Applications to Environmental problems*: 351-383.
- Loosli, H.H., Lehmann, B.E. & Balderer, W., 1989. Argon-39, argon-37 and krypton-85 isotopes in Stripa groundwaters. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 53(8): 1825-1829.
- MacQuarrie, K.T.B. & Mayer, K.U., 2005. Reactive transport modeling in fractured rock: A state-of-the-science review. *Earth-Science Reviews* 72(3-4): 189-227.
- Mazurek, M., Gautschi, A., Smith, P.A. & Zuidema, P., 2000. The role of water-conducting features in the Swiss concept for the disposal of high-level radioactive waste. In: Stober, I. and Bucher, K. (eds.): *Hydrogeology of crystalline rocks*, Kluwer Scientific Publishers: 105-125.
- Mazurek, M., Jakob, A. & Bossart, P., 2003. Solute transport in crystalline rocks at Äspö - I: Geological basis and model calibration. *Journal of Contaminant Hydrology* 61(1-4): 157-174.
- Morawska, L. & Phillips, C.R., 1993. Dependence of the radon emanation coefficient on radium distribution and internal structure of the material. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 57(8): 1783-1797.
- Morland, G., Strand, T., Furuhaug, L., Skarphagen, H. & Banks, D., 1998. Radon in Quaternary Aquifers Related to Underlying Bedrock Geology. *Ground Water* 36(1): 143-146.
- Nelson, P.H., Rachiele, R. & Smith, A., 1983. Transport of radon in flowing boreholes at Stripa, Sweden. *Journal of Geophysical Research* 88: 2395-2405.
- Neretnieks, I., 1993. Solute transport in fractured rock: applications to radionuclide waste repositories. In: Bear J, Tsang CF, de Marsily G (eds) *Flow and contaminant transport in fractured rock*. Academic Press, San Diego, CA, USA: 39-127.
- Neuman, S.P., 2005. Trends, prospects and challenges in quantifying flow and transport through fractured rocks. *Hydrogeology Journal* 13(1): 124-147.
- NRC, 1988. Health risks of radon and other internally deposited alpha-emitters. US National Research Council Report BEIR IV, National Academic Press, Washington DC.
- Odling, N.E., 1997. Scaling and connectivity of joint systems in sandstones from western Norway. *Journal of Structural Geology* 19(10): 1257-1271.
- Olsson, O., 1992. Site characterization and validation. Final report, Stripa Project 92-22, Conterra AB, Uppsala, Sweden.
- Paillet, F.L., 1996. High-Resolution Flowmeter Logging Applications with the Heat-Pulse Flowmeter. *Journal of Environmental and Engineering Geophysics* 1: 1-11.
- Pane, M.B., 1995. Radon a tracer for fluids circulation in karstic aquifers. *Le radon: traceur des circulations fluides dans les aquiferes karstiques* 320(8): 713-719.

Petitjean, P. & Henin, O., 2004. Dosage du carbone organique dissous dans les eaux douces naturelles. Intérêt, principe, mise en oeuvre et précautions opératoires. . Rennes, Géosciences Rennes.

Peucat, J.J., Jegouzo, P., Vidal, P. & Bernard-Griffiths, J., 1988. Continental crust formation seen through the Sr and Nd isotope systematics of S-type granites in the Hercynian belt of western France. *Earth and Planetary Science Letters* 88(60-68).

Przylibski, T.A., Kozowska, B., Dorda, J. & Kieczawa, B., 2002. Radon-222 and 226Ra concentrations in mineralized groundwaters of Gorzanow (Kodzko Basin, Sudeten Mountains, SW Poland). *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 253(1): 11-19.

Przylibski, T.A., 2000. Estimating the radon emanation coefficient from crystalline rocks into groundwater. *Applied Radiation and Isotopes* 53(3): 473-479.

Przylibski, T.A. & Zebrowski, A., 1999. Origin of radon in medicinal waters of Ladek Zdroj (Sudety Mountains, SW Poland). *Journal of Environmental Radioactivity* 46(1): 121-129.

Queirraza, G., Roveri, M., Delfanti, R. & Papucci, C., 1991. Gas exchange at the air-sea interface: a technique for radon measurements in seawater. Pp 94-104. In: Kershaw, P.J. & Woodhead, D.S. (eds.) *Radionuclides in the Study of Marine Processes*, London.

Renoux, A., Tymen, G., Le Gac, J. & Madelaine, G., 1980. Study of the 222Ra-short-lived daughter disequilibrium in a mixed maritime and continental atmosphere near granitic soils. *Health Physics* 39(2): 291-298.

Ruggieri, G. & Gianelli, G., 1999. Multi-stage fluid circulation in a hydraulic fracture breccia of the Larderello geothermal field (Italy). *Journal of Volcanology and Geothermal Research* 90(3-4): 241-261.

Rumbaugh, J.O., 1983. Effect of fracture permeability on radon-222 concentration in ground water of the Reading Prong, Pennsylvania.

Schubert, M., Buerkin, W., Peña, P., Lopez, A.E., Balcázar, M., 2006. On-site determination of the radon concentration in water samples: Methodical background and results from laboratory studies and a field-scale test *Radiation Measurements*, 41 (4), pp. 492-497.

Segovia, N., Armienta, M.A., Valdes, C., Mena, M., Seidel, J.L., Monnin, M., Pena, P., Lopez, M.B.E. & Reyes, A.V., 2003. Volcanic monitoring for radon and chemical species in the soil and in spring water samples. *Radiation Measurements* 36(1-6 SPEC.): 379-383.

Stober & Bucher, 1999a. Origin of salinity of deep groundwater in crystalline rocks. *Terra Nova* 11(4): 181-185.

Stober, I. & Bucher, K., 1999b. Deep groundwater in the crystalline basement of the Black Forest region. *Applied Geochemistry* 14(2): 237-254.

Stober, I. & Bucher, K., 2005. The upper continental crust, an aquifer and its fluid: hydraulic and chemical data from 4 km depth in fractured crystalline basement rocks at the KTB test site. *Geofluids* 5(1): 8-19.

Tadolini, T. & Spizzico, M., 1998. Relation between "terra rossa" from the Apulia aquifer of Italy and the radon content of groundwater: Experimental results and their applicability to radon occurrence in the aquifer. *Hydrogeology Journal* 6(3): 450-454.

Tanner, A.B., 1980. Radon migration in the ground: a supplementary review. Pp 5–56. In: Gesell & Lowder (eds.) *Proceedings of the Symposium on Third Natural Radiation Environment*, Houston, Texas.

- Tarits, C., Aquilina, L., Ayraud, V., Pauwels, H., Davy, P., Touchard, F. & Bour, O., 2006. Oxido-reduction sequence related to flux variations of groundwater from a fractured basement aquifer (Ploemeur area, France). *Applied Geochemistry* 21(1): 29-47.
- Touchard, F., 1999. Etude hydrogéologique d'un aquifère en socle fracturé : site de Ploemeur (Morbihan). Thèse de doctorat, Université de Rennes 1.
- Tsang, C.F. & Neretnieks, I., 1998. Flow channeling in heterogeneous fractured rocks. *Reviews of Geophysics* 36(2): 275-298.
- Tsang, Y.W., 1992. Usage of "equivalent apertures" for rock fractures as derived from hydraulic and tracer tests. *Water Resources Research* 28(5): 1451-1455.
- Tymen, G., Le Bihan, O., Perros, P.E., Colin, P. & Etienne, A., 1996. Identification of Air Masses at a Coastal Site by the Use of Two Gaseous Tracers: ^{222}Rn and PAN. Pp 961-965. In: P. M. Borrell, P.B., T. Cvitas K. Kelly and W. Seiler (ed.) EUROTRAC Symposium.
- Valentine, R.L., Splinter, R.C., Horn, J.J., M.Nogaj, T. & Lauch, R.P., 1985. Factors Affecting Radium Reduction in an Iron Removal Process. *Proceedings of American Water Works Association Annual Conference*.
- Vignerresse, J.-L., 1983. Enracinement des granites armoricains estimé d'après la gravimétrie. *Bulletin de la Société géologique et minéralogique de Bretagne* 15(1): 1-15.
- Vignerresse, J.L., 1987. La croûte du Massif Armoricain : intrusions granitiques, déformation hercynienne, structure thermique.
- Vogel, J.C., Talma, A.S., Heaton, T.H.E. & Kronfeld, J., 1999. Evaluating the rate of migration of an uranium deposition front within the Uitenhage Aquifer. *Journal of Geochemical Exploration* 66(1-2): 269-276.
- Voronov, A.N., 2004. Radon-rich waters in Russia. *Environmental Geology* 46(5): 630-634.
- Wanty, R.B., Lawrence, E.P. & Gundersen, L.C.S., 1992. A theoretical model for the flux of radon from rock to ground water. Pp 73-78. In: Gates, A.E., and Gundersen, L.C.S. (ed.) *Geologic Controls on Radon*, Geological Society of America Special Paper 271.
- Widestrand, H., Andersson, P., Byegard, J., Skarnemark, G., Skalberg, M. & Wass, E., 2001. In situ migration experiments at Äspö Hard Rock Laboratory, Sweden: Results of radioactive tracer migration studies in a single fracture. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 250(3): 501-517.
- Will, R., Archer, R. & Dershowitz, B., 2004. A discrete fracture network approach to conditioning petroleum reservoir models using seismic anisotropy and production dynamic data. Pp 2843-2857. *Proceedings - SPE Annual Technical Conference and Exhibition*.
- Wilson, J.F., 1975. Pressure responses from induced hydraulic fractures in adjacent wells within a petroleum reservoir: an experiment. *JPT, Journal of Petroleum Technology* 27: 951-953.
- Witherspoon, P.A., 2000. The Stripa project. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences* 37(1-2): 385-396.
- Wollenberg, H.A., 1984. Naturally occurring radioelements and terrestrial gamma-ray exposure rates: an assessment based on recent geochemical data. LBL-18714
- Wong, C.S., Chin, Y.-P. & Gschwend, P.M., 1992. Sorption of radon-222 to natural sediments. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 56(11): 3923-3932.
- Wood, W.W., Kraemer, T.F. & Shapiro, A., 2004. Radon (^{222}Rn) in ground water of fractured rocks: A diffusion/ion exchange model. *Ground Water* 42(4): 552-567.

Références

Zimmer, M. & Erzinger, J., 2003. Continuous H₂O, CO₂, ²²²Rn and temperature measurements on Merapi Volcano, Indonesia. *Journal of Volcanology and Geothermal Research* 125(1-2): 25-38.

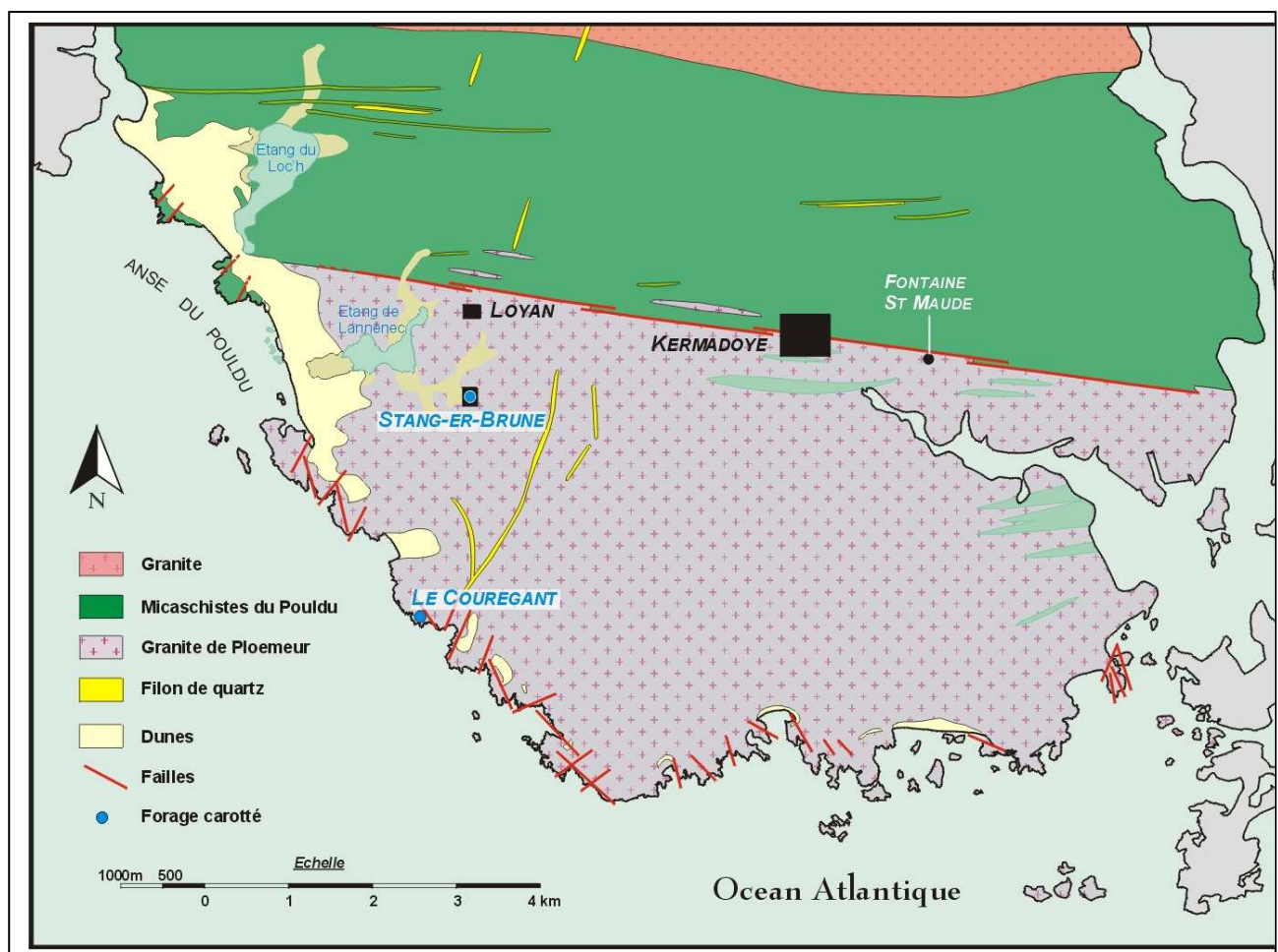
Annexes

ANNEXE 1 : ANALYSE MINÉRALOGIQUE DES ROCHES DU SITE DE PLOEMEUR

A1.1. Echantillons de roches

Figure A-1 : Localisation des forages carottés

Les échantillons de roche étudiés proviennent des carottes extraites des forages B1 (Stang-er-



Brune) et D2 (Le Couregant) (figure A-1).

Des lames minces ont été réalisées dans 6 échantillons de roches extraits des forages B2 et D2 à différentes profondeurs (Tableau A-1).

Tableau A-1 : Références et profondeurs des échantillons de roches étudiés.

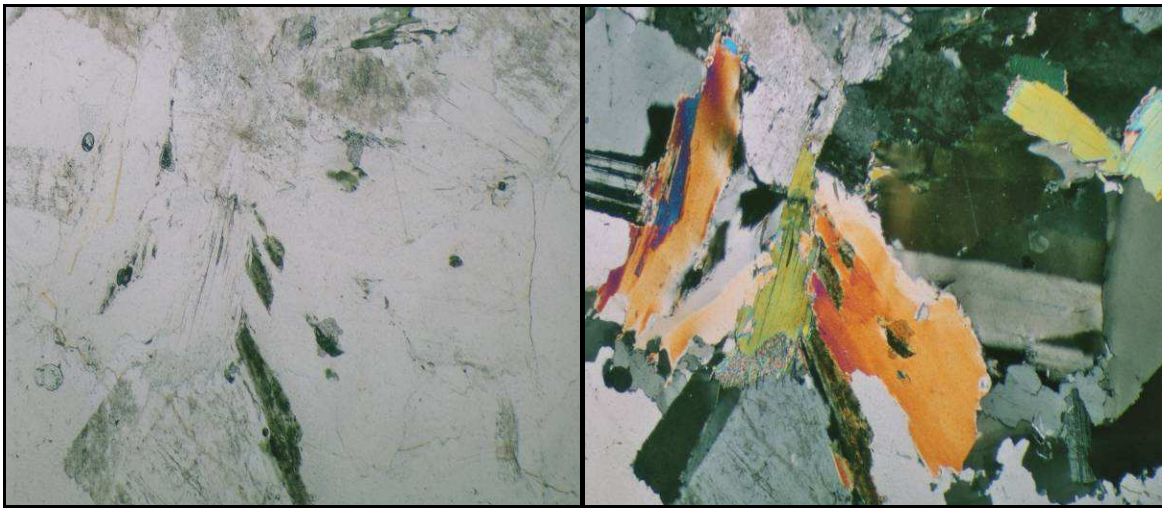
Carotte	Echantillon	Profondeur (m)
D2 (Le Couregant)	C4-4	11
B1 (Stang-Er-Brune)	C5-13	26,5
	C13-7	48
	C17-9	60
	C20-19	69
	C23-20	79

Parmi ces 6 échantillons, 5 sont présentés comme des granites et 1 comme des micaschistes (figure A-2).



Figure A-2 : Photos des échantillons de roches étudiés.

A1.2. Echantillon C4-4

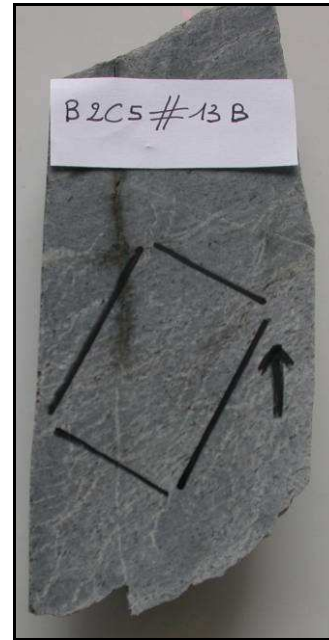




Lame 4B2 : lumière naturelle (x 25) et lumière polarisée (x 25)

Inventaire minéralogique :

Leucogranite	Texture grenue -Grands cristaux
Lame mince 4B1, découpée dans la partie « oxydée »	<p><u>Muscovite, Biotite :</u></p> <ul style="list-style-type: none"> • Muscovites dominantes non orientées • Biotites plus petites, toutes transformées en chlorite <p><u>Feldspaths potassiques, plagioclases :</u></p> <ul style="list-style-type: none"> • Plagioclases > Feldspaths potassiques : • Plagioclases abondants certains altérés au centre, d'autres fissurés à macles décalées <p><u>Quartz :</u></p> <ul style="list-style-type: none"> • Grands cristaux en remplissage <p><u>Minéraux accessoires :</u></p> <ul style="list-style-type: none"> • Zircons • Apatites abondantes
Lame mince 4B2, découpée dans la partie « non oxydée »	<ul style="list-style-type: none"> • Idem • Feldspaths potassiques plus altérés


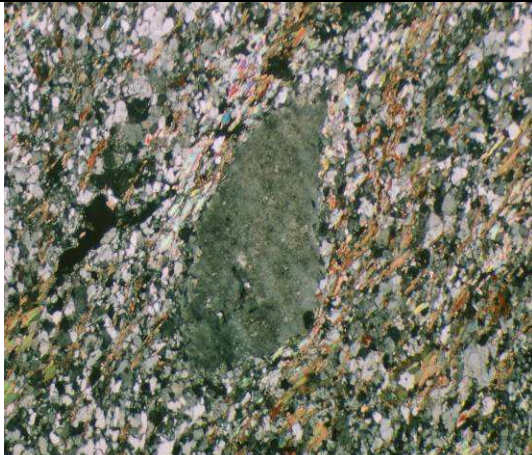
A1.3. Echantillon C5-13



Vue macroscopique	Vue microscopique : lumière naturelle (x 25)
	

Inventaire minéralogique :

<p>« Micaschistes » : Ortho/para-gneiss</p>	<p>Texture très fine, structure mylonitique, Lits à orientation perpendiculaire par rapport à la direction de prélèvement</p>
<p><u>Porosité :</u></p> <ul style="list-style-type: none"> - Certains pores sont ouverts, à bords francs sans dépôts et connectés les uns aux autres - Certains pores sont colmatés (silice ?) - Certains pores sont de grandes dimensions ouverts avec des dépôts légers d'hydroxydes. 	<p><u>Lits de Biotite-muscovite :</u></p> <ul style="list-style-type: none"> • Biotites dominantes très orientées, très colorées (==> roche métamorphique dérivée d'un granite + déformation dans granite encore chaud (T > 400 °C)) <p><u>Lits de quartz-F-K :</u></p> <ul style="list-style-type: none"> • Quartz en petits cristaux (recristallisations) • Très grosses orthoses, certaines altérées en bordure (texture oillée) (==> zone de cisaillement) <p><u>Minéraux accessoires :</u></p> <ul style="list-style-type: none"> • Zircons dans biotite - Opaques (?)

Vue en lumière naturelle (x 25)	Vue en lumière polarisée (x 25)
	

A1.4. Echantillon C13-7



Inventaire minéralogique :

Granite orienté	Texture grenue hétérogène Grands et petits cristaux
7a1 : lame mince découpée dans la partie « non oxydée »	<p><u>Grands cristaux :</u></p> <ul style="list-style-type: none"> • Muscovites dominantes • Biotites peu abondantes mais toutes transformées en chlorite (Couloir de déformation marqué par les micas. • Aucune biotite saine ==> foliation, roche pas déformée à chaud) <p><u>Petits cristaux :</u></p> <ul style="list-style-type: none"> • Quartz • Feldspaths potassiques • Quelques muscovites • petits cristaux de quartz et Feldspaths potassiques marquent une recristallisation suite au début de déformation <p><u>Minéraux accessoires :</u></p> <ul style="list-style-type: none"> • Apatites • Très peu de zircons (parce que très peu de biotites ?)
7a2 : lame mince découpée dans la partie « oxydée » Présence de pores ouverts	<ul style="list-style-type: none"> • Idem • Minéraux plus altérés • Hydroxydes

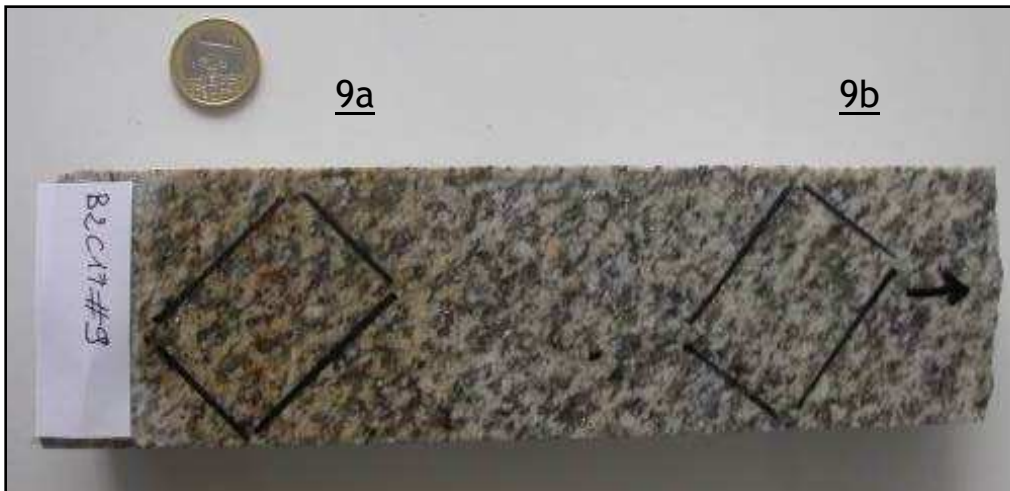
7a1 : lumière naturelle (x 65)



7a1 : lumière polarisée (x 65)



A1.5. Echantillon C17-9

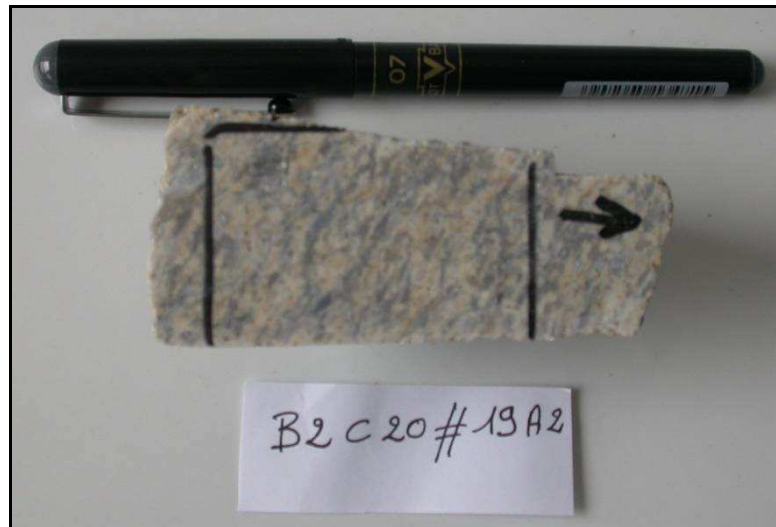


Inventaire minéralogique :

Granite orienté Ressemble beaucoup à B2C13	Texture grenue hétérogène Grands et petits cristaux
9a = lame mince découpée dans la partie « non oxydée »	<p><u>Grands cristaux :</u></p> <ul style="list-style-type: none"> • Muscovites dominantes • Biotites bien présentes et saines • Grands F-K fissurés et un peu + altérés que lame 9b <p><u>Petits cristaux :</u></p> <ul style="list-style-type: none"> • Quartz (début de recristallisation de certains individus) <p><u>Mx accessoires :</u></p> <ul style="list-style-type: none"> • Zircons abondants • Apatites
9b = lame mince découpée dans la partie « oxydée »	<ul style="list-style-type: none"> • Idem • Plagioclases mâclés fissurés

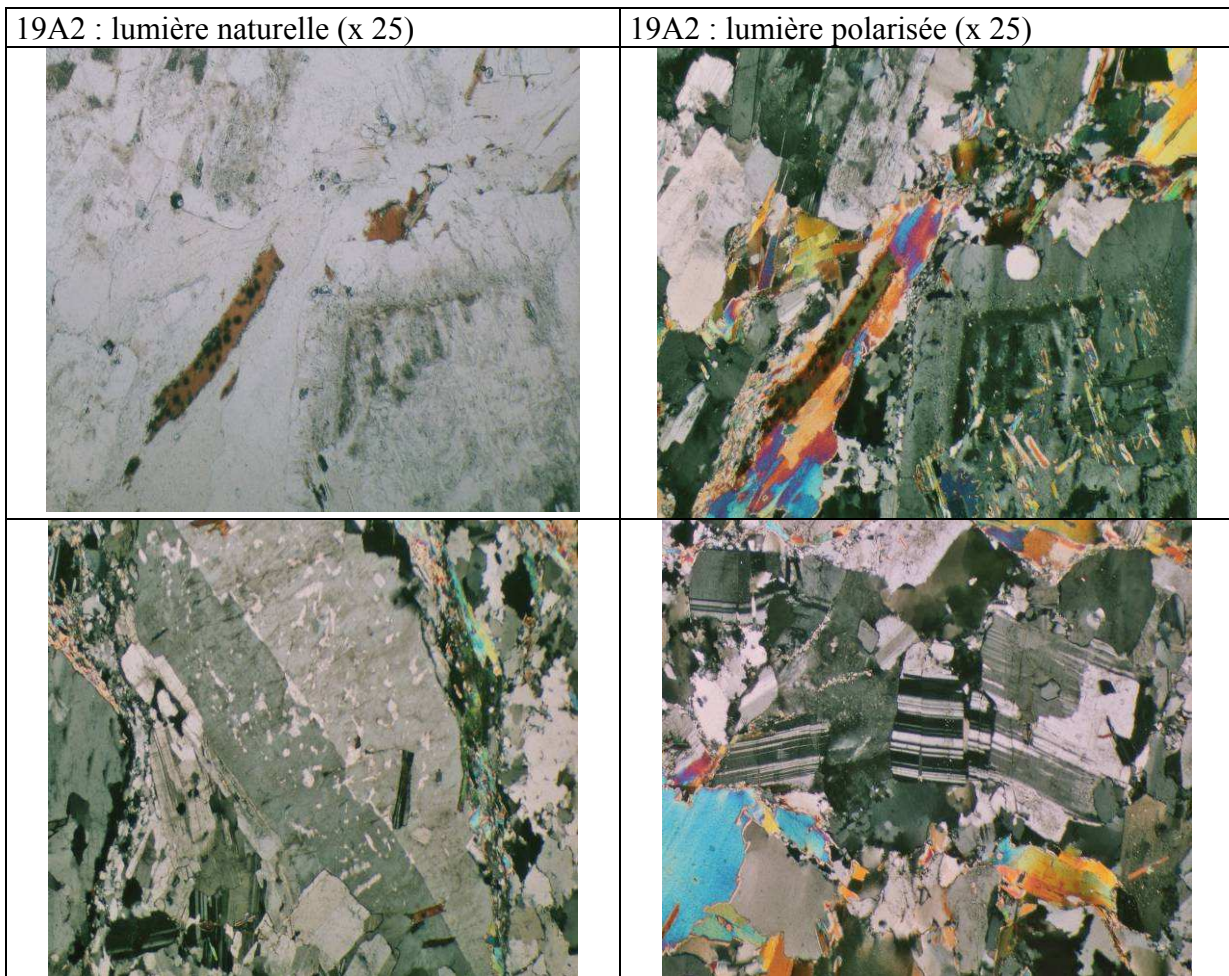
9a : lumière naturelle (x 25)	9a : lumière polarisée (x 25)

A1.6. Echantillon C20-19



Inventaire minéralogique :

Granite orienté Granite écrasé en voie de mylonitisation	Texture grenue hétérogène Grands et petits cristaux
	<p><u>Grands cristaux :</u></p> <ul style="list-style-type: none"> • Très grands cristaux de Muscovite • Grands F-K (perthites) • Plagioclases <p><u>Petits cristaux :</u></p> <ul style="list-style-type: none"> • Biotites + altérations • Quartz • Muscovite <p><u>Mx accessoires :</u></p> <ul style="list-style-type: none"> • Zircons abondants dans biotites • Apatites

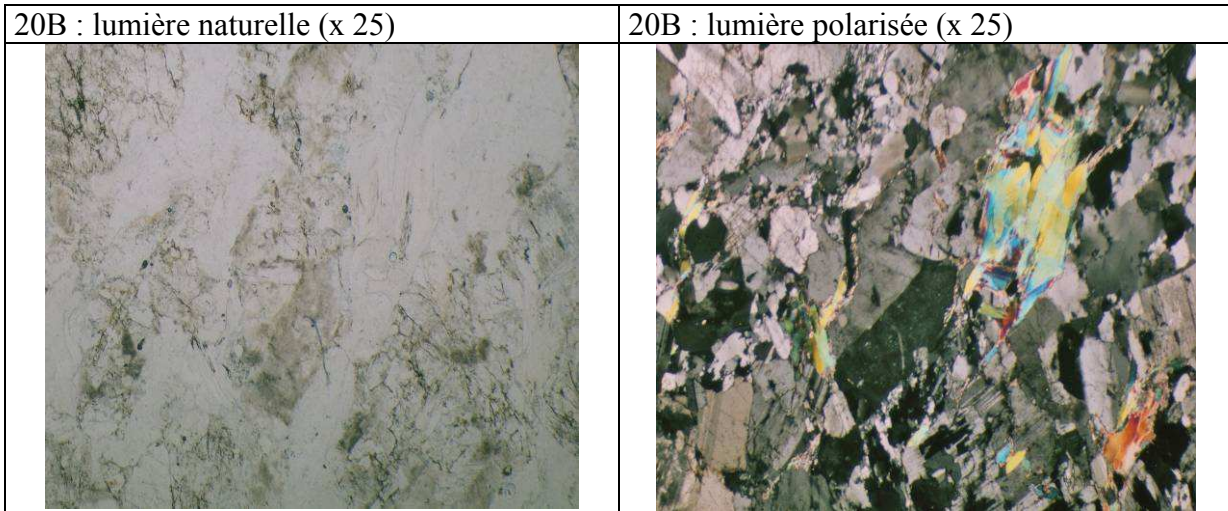


A1.7. Echantillon C23-20



Inventaire minéralogique :

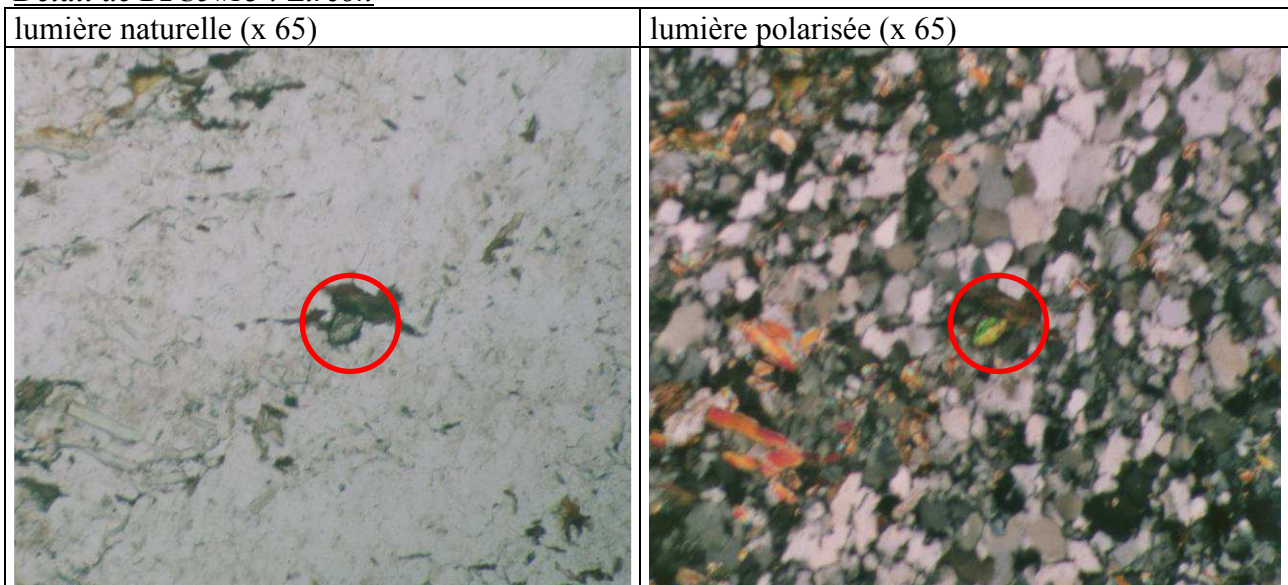
Granite orienté (granites crustaux/croûte fondue remontée)	Texture grenue
Biotites rares = Fe pauvre (==> très alumino/K)	<p><u>Grands cristaux :</u></p> <ul style="list-style-type: none"> • Muscovite très abondante • F-K • Plagioclases <p><u>Petits cristaux :</u></p> <ul style="list-style-type: none"> • Biotites/ Muscovite • Plagioclases • Quartz <p><u>Minéraux accessoires :</u></p> <ul style="list-style-type: none"> • Zircons • Apatites + inclusions (?) • hydroxydes



Détail de B2C23 20B : Apatite – lumière naturelle (x 65)



Détail de B2C5#13 : Zircon



ANNEXE 2 : METHODE DE MESURE DU RADON DANS L'EAU EN UTILISANT UNE CHAMBRE D'IONISATION

A2.1. Fonctionnement de la chambre d'ionisation

Une chambre d'ionisation se compose schématiquement de deux électrodes, entre lesquelles est établi un champ électrique. Lorsqu'un mélange gazeux contenant du radon traverse le volume actif de la chambre, les particules α accompagnant la désintégration du radon et de ces descendants ionisent le gaz. Les électrons et les ions ainsi formés sont entraînés par le champ électrique et se dirigent vers l'une ou l'autre des électrodes selon le signe de leur charge. Un courant d'ionisation peut alors être détecté. Lorsque l'air mis en circulation à travers la chambre est préalablement filtré (élimination des descendants solides du radon), le signal est proportionnel à l'activité volumique en radon.

A2.2. Principe de la mesure du radon dans l'eau en utilisant une chambre d'ionisation couplée à un système de dégazage du radon dissous dans l'eau.

L'eau à analyser est échantillonnée et placée dans la fiole de dégazage. La pompe est alors mise en route, l'air présent dans le circuit est mis en circulation et permet, par bullage forcé, le dégazage du radon dissous dans l'eau. La chambre d'ionisation suit l'évolution de la concentration de radon dans l'air du système.

La concentration en radon mesurée en fonction du temps (figure A2-1) décrit tout d'abord une augmentation progressive, qui correspond au dégazage du radon contenu dans l'échantillon d'eau. Puis la concentration en radon se stabilise et atteint un palier. La concentration en radon dans l'air du système est calculée à partir de la valeur du palier de concentration, qui correspond à la moyenne des concentrations en radon dans l'air mesurées pendant la durée du palier. L'activité volumique du radon dans l'eau échantillonnée est déduite de la concentration mesurée dans l'air après application de deux corrections.

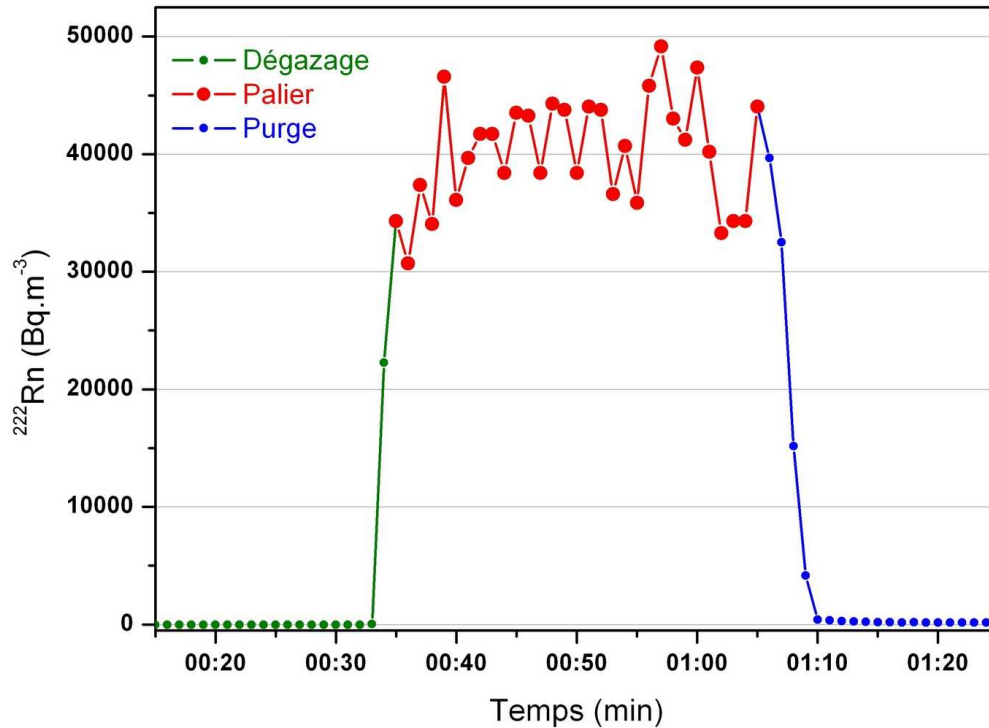


Figure A-V.12 : Exemple de graphique donnant l'évolution de la concentration de radon dans l'air du système.

A2.3. Expression des résultats :

L'activité volumique de radon dans l'eau échantillonnée, Av_e , est déduite de celle de l'air, Av , après l'application de deux corrections :

- la première est liée aux volumes de l'échantillon V_e et du système V_s
- la seconde est liée à la solubilité du radon dans l'eau qui est une fonction inverse de la température.

Ainsi, la quantité de radon resté dissous dans l'eau après le dégazage est exprimée par le coefficient α .

A l'état initial, lors du prélèvement d'eau, l'activité totale du radon A_i dans le système est égale à :

$$A_i = Av_e V_e + Av_o \left[\frac{V_s - V_e}{V_s} \right] \cdot (V_s - V_e)$$

Avec

Av_e l'activité volumique du radon dans l'eau au moment du prélèvement ($Bq.m^{-3}$)

V_e le volume d'eau prélevé (m^3)

Av_o l'activité volumique du radon dans l'air du système avant l'injection d'eau dans la fiole de dégazage ($Bq.m^{-3}$)

V_s le volume du système (m^3)

Comme $V_e \ll V_s$, on a : $\frac{V_s - V_e}{V_s} \approx 1$,

D'où : $A_i = Av_e V_e + Av_o (V_s - V_e)$

Après bullage, le radon se répartit entre les deux phases eau et air, l'activité totale de radon A_f s'exprime selon :

$$A_f = Av_e^{eq} V_e + Av^{eq} (V_s - V_e) + Av_o (V_s - V_e)$$

Avec :

Av_e^{eq} l'activité volumique du radon dans l'eau à l'équilibre ($Bq.m^{-3}$)

Av^{eq} l'activité volumique du radon dans l'air du système à l'équilibre ($Bq.m^{-3}$)

La conservation de l'activité de radon entre l'état initial et l'état d'équilibre final permet d'écrire :

$$Av_e V_e + Av_o (V_s - V_e) = Av_e^{eq} V_e + Av^{eq} (V_s - V_e) + Av_o (V_s - V_e)$$

D'où :

$$Av_e = Av^{eq} \left[\frac{Av_e^{eq}}{Av^{eq}} + \frac{(V_s - V_e)}{V_e} \right]$$

Le rapport Av_e^{eq}/Av représente le coefficient de partage du radon entre l'eau et l'air, ou coefficient de Bunsen α qui caractérise l'état d'équilibre de Henry pour une température donnée. Ce

coefficient est une fonction décroissante de la température du liquide, T (°C). Dans le cas de l'eau, il peut s'exprimer par la relation empirique de Meyer :

$$\alpha = 0.105 + 0,403.\exp(-0,0502.T)$$

L'activité volumique du radon dans l'eau, Av_e (Bq.L⁻¹), est donnée par la relation suivante :

$$Av_e = A_v^{eq} \left[\alpha + \frac{(V_s - V_e)}{V_e} \right] \times \left[\frac{1}{1000} \right]$$

Dans le cadre de notre étude, le volume total du système, V_s (m³), correspond au volume de la chambre d'ionisation AlphaGUARD® et de l'AquaKIT® (fiolle de dégazage, fiolle de garde, pompe, flexibles de connexion et chambre d'ionisation), soit au total $1,122.10^{-3}$ m³.

Le volume d'eau prélevé, V_e (m³), est de 1.10^{-4} m³.

L'activité volumique du radon dans l'air du système à l'équilibre est donnée par la relation :

$$Av^{eq} = Av - Av_o$$

Avec :

Av l'activité volumique du radon mesurée avec la chambre d'ionisation (Bq.m⁻³)

Av_o l'activité volumique du radon dans l'air du système avant l'injection d'eau dans la fiolle de dégazage (Bq.m⁻³)

L'activité volumique du radon dans l'eau, Av_e (Bq .L⁻¹) est donnée par la relation :

$$Av_e = \left[\frac{(Av - Av_o).(10,22 + \alpha)}{1000} \right]$$

A2.4. Calcul d'incertitude

Les variables Av , V_e , Av_o , V_s et V_e sont considérées comme indépendantes.

La variance sur l'activité volumique ponctuelle du radon l'eau, s'écrit alors, d'après la norme NF ENV 13005, comme suit :

$$\text{var}(A_{Ve}) = \left(\frac{\partial A_{Ve}}{\partial A_V^{eq}} \right)^2 \text{var}(A_V^{eq}) + \left(\frac{\partial A_{Ve}}{\partial \alpha} \right)^2 \text{var}(\alpha) + \left(\frac{\partial A_{Ve}}{\partial D} \right)^2 \text{var}(D)$$

Où var(i) est la variance sur la grandeur i considérée.

$$D = \frac{V_s}{V_e} - 1$$

L'incertitude type sur l'activité volumique du radon dans l'eau au moment de l'échantillonnage, $u_{A_{Ve}}$, est donnée par la relation :

$$u_{A_{Ve}} = \sqrt{\text{var}(A_{Ve})}$$

L'incertitude élargie sur l'activité volumique du radon dans l'eau au moment de l'échantillonnage, $U_{A_{Ve}}$, avec un facteur d'élargissement k, est donnée par la relation :

$$U_{A_{Ve}} = k u_{A_{Ve}}$$

Avec k compris entre 1 et 3.

Pour un niveau de confiance de 95 %, k est égal à 2.

Dans l'hypothèse où A_{Vo} , l'activité volumique du radon dans l'air du circuit avant injection de l'eau est négligeable, la variance sur l'activité volumique du radon dans l'eau au moment du comptage, s'écrit, d'après la norme NF ENV 13005 (AFNOR, 1999), comme suit :

$$\text{var}(A_{Ve}) = \left(\frac{\partial A_{Ve}}{\partial A_V} \right)^2 \text{var}(A_V) + \left(\frac{\partial A_{Ve}}{\partial \alpha} \right)^2 \text{var}(\alpha) + \left(\frac{\partial A_{Ve}}{\partial D} \right)^2 \text{var}(D)$$

D'où :

$$\text{var}(A_{Ve}) = (A_{Ve})^2 \times \left[\frac{\text{var}(A_V)}{(A_V)^2} + \frac{\text{var}(\alpha) + \text{var}(D)}{(\alpha + D)^2} \right]$$

Avec,

$$\text{var}(D) = \left[\left(\frac{1}{V_e} \right)^2 \text{var}(V_s) + \left(\frac{V_s}{(V_e)^2} \right)^2 \text{var}(V_e) \right]$$

ANNEXE 3 : METHODE DE MESURE DU RADON DANS L'EAU EN UTILISANT UNE FIOLE SCINTILLANTE : METHODE "COTON"

A3.1. Principe de la mesure par scintillation :

Une particule α traversant un scintillateur tel que le sulfure de zinc excite les molécules rencontrées. Le retour à l'état stable des molécules excitées se fait par émission de photons. Cette émission a lieu vers 450 nm pour ZnS(Ag), l'activation à l'argent accordant le spectre d'émission du sulfure de zinc avec la sensibilité spectrale des photomultiplicateurs. Les photons produits par le milieu scintillant sont alors détectés puis convertis en électrons qui sont multipliés pour obtenir un signal amplifié. Après étalonnage du système de mesure, le comptage de ces photons permet de connaître le nombre de particules α émises et ainsi de quantifier la proportion de radionucléides présents.

A3.2. Principe de la mesure du radon dans l'eau en utilisant une fiole scintillante :

Une fiole scintillante est un flacon en verre hermétiquement fermé, de géométrie et de volume définis. La surface interne de la fiole, à l'exception du fond, est recouverte de sulfure de zinc activé à l'argent (ZnS(Ag)). Une prise d'essai de volume connu (1 à 2 cm³) d'eau à analyser est prélevée à l'aide d'une seringue. Une fiole scintillante, possédant un bouchon avec un coton hydrophile dans son évidement intérieur, est mise partiellement sous vide. L'eau contenue dans la seringue est injectée doucement dans le coton puis la fiole est remise à pression atmosphérique par introduction d'air propre filtré. Le radon se répartit entre les phases eau et air et diffuse du coton vers la fiole. La désintégration du radon et de ses descendants présents dans la fiole engendre l'émission de particules α qui, lors de leur parcours, transfèrent leur énergie au milieu scintillant (ZnS(Ag)). Le retour à l'état fondamental des électrons excités du milieu scintillant provoque l'émission de photons détectés par un photomultiplicateur puis dénombrés par une chaîne de comptage. Pour un comptage optimal, il est nécessaire d'attendre au moins 3 h après l'injection d'eau dans le coton, afin d'atteindre dans la fiole scintillante, l'équilibre radioactif entre le radon-222 et ses descendants à vie courte.

A3.3. Expression des résultats :

L'activité volumique A_v du radon dans l'air (Bq.L^{-1}) est donnée par la relation :

$$A_v = \left[\frac{1}{R \times n_\alpha \times V_f \times \exp(-\lambda \times \Delta t)} \right] \times \left[\frac{N - N_o}{60} \right] \times \left[\frac{P_r}{(P_r - P_v)} \right] \times \left[\frac{1}{1000} \right] \quad (1)$$

Avec :

N le comptage moyen, exprimé sur 1 min;

N_o le comptage du bruit de fond sur 3 min de la fiole, exprimé sur 1 min (impulsions) ;

R le rendement de la fiole scintillante ($\text{impulsions.s}^{-1}.\text{Bq}^{-1}$) ;

n_α le nombre d'émetteurs α présents dans la fiole après un temps t d'attente entre le remplissage de la fiole et son comptage, par becquerel de radon ($n_\alpha \approx 3$ à $t = 3\text{h}$, pour 1 Bq de radon) ;

Δt temps écoulé entre le prélèvement et le comptage de la fiole (s)

V_f le volume de la fiole (m^3) ;

P_v la pression mesurée dans la fiole après sa mise sous vide partiel (hPa) ;

P_r la pression mesurée dans la fiole après l'échantillonnage (hPa) ;

En pratique, le rapport $\frac{P_r}{P_r - P_v}$ est proche de 1 et la relation ci-dessus peut-être simplifiée.

A l'état initial, lors du prélèvement d'eau, l'activité totale du radon A_i dans la fiole recueillant l'échantillon est égale à :

$$A_i = A_{v_e} V_e + A_{v_o} V_f$$

Avec :

A_{v_e} l'activité volumique du radon dans l'eau au moment du prélèvement (Bq.m^{-3})

V_e le volume d'eau prélevé (m^3)

A_{v_o} l'activité volumique du radon dans l'air de la fiole après remise de celle-ci à pression atmosphérique par ajout d'air propre (Bq.m^{-3})

V_f le volume d'air dans la fiole (m^3)

Le radon se répartit entre les deux phases eau et air et diffuse du coton vers l'intérieur de la fiole. Nous atteignons alors un état d'équilibre final où l'activité totale du radon A_f s'exprime selon :

$$A_f = A_{V_e}^{eq} V_e + A_{V_f}^{eq} V_f + A_{V_o} + V_f$$

Avec :

$A_{V_e}^{eq}$ l'activité volumique du radon dans l'eau à l'équilibre ($Bq.m^{-3}$)

$A_{V_f}^{eq}$ l'activité volumique du radon dans l'air à l'équilibre ($Bq.m^{-3}$)

La conservation de l'activité en radon entre l'état initial et l'état d'équilibre final permet d'écrire :

$$A_{V_e} V_e + A_{V_o} V_f = A_{V_e}^{eq} V_e + A_{V_f}^{eq} V_f + A_{V_o} + V_f$$

D'où :

$$A_{V_e} = A_{V_f}^{eq} \left[\frac{A_{V_e}^{eq}}{A_{V_f}^{eq}} + \frac{V_f}{V_e} \right]$$

Le rapport $A_{V_e}^{eq}/A_{V_f}$ représente le coefficient de partage du radon entre l'eau et l'air, ou coefficient de Bunsen α qui caractérise l'état d'équilibre de Henry pour une température donnée. Ce coefficient est une fonction décroissante de la température du liquide, T ($^{\circ}C$). Dans le cas de l'eau, il peut s'exprimer par la relation empirique de Meyer :

$$\alpha = 0.105 + 0,403 \cdot \exp(-0,0502.T)$$

L'activité volumique du radon dans l'eau à l'équilibre s'exprime donc :

$$A_{V_e} = A_{V_f}^{eq} \left[\alpha + \frac{V_f}{V_e} \right] \times \left[\frac{1}{1000} \right]$$

Avec :

$$A_{V_f}^{eq} = A_{V_f} - A_{V_o}$$

Où A_{V_f} est l'activité volumique du radon mesurée dans l'air à partir du comptage de la fiole et donné par l'expression (1).

Sachant que A_{V_0} est la plupart du temps négligeable :

$$A_{V_e} = A_V \cdot \left[\alpha + \frac{V_f}{V_e} \right] \times \left[\frac{1}{1000} \right]$$

A3.3. Calcul d'incertitude

Les variables N , N_0 , T_c , R_t , n_α , V_f , λ et T_p sont considérées comme indépendantes.

La variance sur l'activité volumique ponctuelle du radon l'eau, s'écrit alors, d'après la norme NF ENV 13005, comme suit :

$$\begin{aligned} \text{var}(A_{V_e}) = & \left(\frac{\partial A_{V_e}}{\partial N} \right)^2 \text{var}(N) + \left(\frac{\partial A_{V_e}}{\partial N_0} \right)^2 \text{var}(N_0) + \left(\frac{\partial A_{V_e}}{\partial T_c} \right)^2 \text{var}(T_c) + \left(\frac{\partial A_{V_e}}{\partial R} \right)^2 \text{var}(R) + \left(\frac{\partial A_{V_e}}{\partial n_\alpha} \right)^2 \text{var}(n_\alpha) \\ & + 2 \left(\frac{\partial A_{V_e}}{\partial V_f} \right)^2 \text{var}(V_f) + \left(\frac{\partial A_{V_e}}{\partial \lambda} \right)^2 \text{var}(\lambda) + \left(\frac{\partial A_{V_e}}{\partial T_p} \right)^2 \text{var}(T_p) + \left(\frac{\partial A_{V_e}}{\partial V_e} \right)^2 \text{var}(V_e) + \left(\frac{\partial A_{V_e}}{\partial \alpha} \right)^2 \text{var}(\alpha) \end{aligned}$$

Où $\text{var}(i)$ est la variance sur la grandeur i considérée.

On considère comme négligeable l'incertitude sur les grandeurs suivantes : n_α , λ et Δt .

L'incertitude type sur l'activité volumique du radon dans l'eau au moment de l'échantillonnage, $u_{A_{V_e}}$, est donnée par la relation :

$$u_{A_{V_e}} = \sqrt{\text{var}(A_{V_e})}$$

L'incertitude élargie sur l'activité volumique du radon dans l'eau au moment de l'échantillonnage, $U_{A_{V_e}}$, avec un facteur d'élargissement k , est donnée par la relation :

$$U_{A_{V_e}} = k \cdot u_{A_{V_e}}$$

Avec k compris entre 1 et 3.

Pour un niveau de confiance de 95 %, k est égal à 2.

Dans l'hypothèse où le comptage de la fiole est réalisé 3 heures après l'injection, la variance sur l'activité volumique du radon dans l'eau au moment du comptage, s'écrit, d'après la norme NF ENV 13005, comme suit :

$$\begin{aligned} \text{var}(A_{V_e}) &= \left(\frac{\partial A_{V_e}}{\partial N}\right)^2 \text{var}(N) + \left(\frac{\partial A_{V_e}}{\partial N_0}\right)^2 \text{var}(N_0) + \left(\frac{\partial A_{V_e}}{\partial R}\right)^2 \text{var}(R) \\ &\quad + 2 \left(\frac{\partial A_{V_e}}{\partial V_f}\right)^2 \text{var}(V_f) + \left(\frac{\partial A_{V_e}}{\partial V_e}\right)^2 \text{var}(V_e) + \left(\frac{\partial A_{V_e}}{\partial \alpha}\right)^2 \text{var}(\alpha) \end{aligned}$$

D'où :

$$\text{var}(A_{V_e}) = (A_{V_e})^2 \times \left[\frac{\text{var}(N)}{(N - N_0)^2} + \frac{\text{var}(N_0)}{(N - N_0)^2} + \frac{\text{var}(R)}{(R)^2} + 2 \times \frac{\text{var}(V_f)}{(V_f)^2} + \frac{\text{var}(V_e)}{(V_e)^2} + \frac{\text{var}(\alpha)}{(\alpha)^2} \right]$$

ANNEXE 4 : MESURE DU FLUX D'EXHALATION DU RADON DES ROCHES

A4.1. Expression des résultats :

Le flux surfacique du radon est estimé à partir de la relation :

$$\frac{dA_v}{dt} = \frac{\phi \times S}{V} - A_v \times \lambda$$

Avec :

- ϕ le flux surfacique d'exhalation du radon du matériau ($\text{Bq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$) ;
- A_v l'activité volumique du radon dans l'air du conteneur d'accumulation (Bq.m^{-3}), au temps t ;
- S la surface du matériau (m^2)
- V le volume utile du conteneur d'accumulation (m^3)
- λ la constante de désintégration du radon (s^{-1})

Si on considère comme négligeable la diminution de l'activité volumique du radon dans le conteneur, liée à sa décroissance radioactive, l'expression précédente peut être simplifiée et devient alors :

$$\frac{dA_v}{dt} \approx \frac{\phi \times S}{V}$$

Le flux surfacique d'exhalation du radon du matériau, ϕ , est donné par l'expression :

$$\phi = \frac{\Delta A_v}{\Delta t} \times \frac{V}{S}$$

Avec :

- ΔA_v la variation de l'activité volumique du radon pendant l'intervalle de temps Δt (Bq.m^{-3})
- Δt l'intervalle de temps pendant lequel est observée la variation de l'activité volumique du radon (s)

La figure A-4 est un exemple de graphique obtenu lors de la mesure du flux d'exhalation d'un échantillon. La mesure est faite à trois reprises.

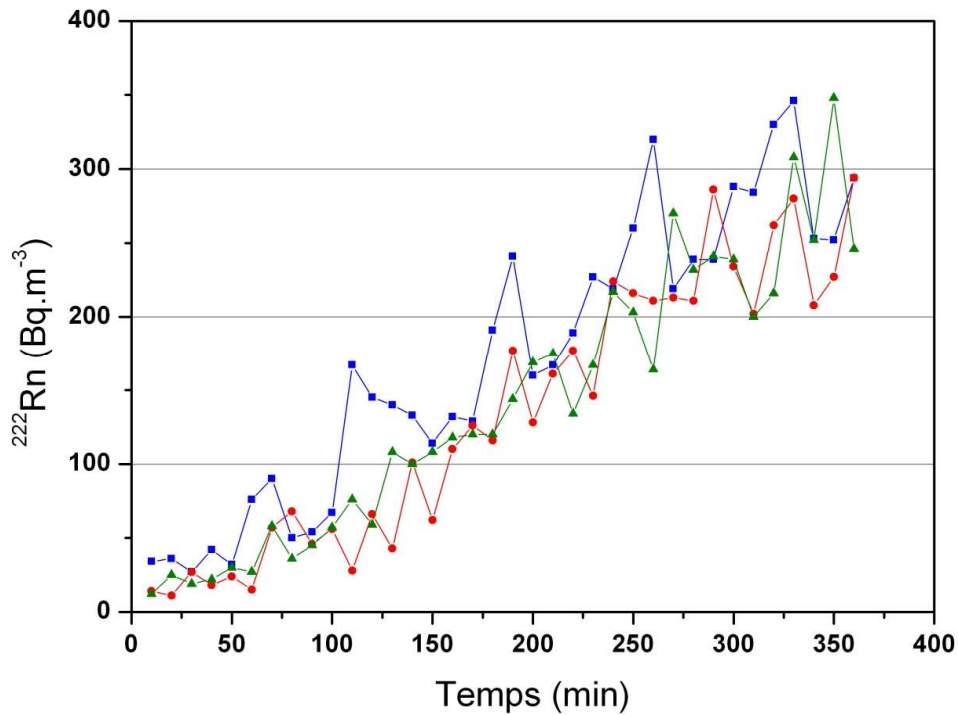


Figure A-V.13 : Exemple de graphique donnant l'évolution de la concentration de radon dans l'air du système au cours de la phase d'accumulation.

Le flux surfacique d'exhalation est donné par la relation :

$$\phi = p \times \frac{V}{S}$$

Avec :

p la pente de la droite de régression linéaire calculée à partir de ΔA_v et Δt par extrapolation linéaire (Bq.m^{-3})

La pente, p , est donnée par la relation :

$$p = \frac{\sum [(t_i - \bar{t}) A_i]}{\sum (t_i - \bar{t})^2}$$

Avec :

A_i l'activité volumique du radon au temps t_i (Bq.m^{-3})

\bar{t} le temps moyen pour une activité volumique de radon donnée (s)

A4.2. Calcul d'incertitude

L'incertitude sur la décroissance pendant l'accumulation est négligée. Les variables p , V et S sont considérées comme indépendantes.

La variance sur le flux surfacique d'exhalation du radon s'écrit alors comme suit :

$$\text{var}(\phi) = \left(\frac{\partial \phi}{\partial p}\right)^2 \text{var}(p) + \left(\frac{\partial \phi}{\partial V}\right)^2 \text{var}(V) + \left(\frac{\partial \phi}{\partial S}\right)^2 \text{var}(S)$$

$$\text{var}(\phi) = \left(\frac{V}{S}\right)^2 \text{var}(p) + \left(\frac{p}{S}\right)^2 \text{var}(V) + \left(\frac{-pV}{S^2}\right)^2 \text{var}(S)$$

Avec :

$\text{var}(i)$, la variance sur la grandeur i considérée.

La variance relative sur le flux surfacique d'exhalation du radon est donnée par la relation :

$$\frac{\text{var}(\phi)}{\phi^2} = \frac{\text{var}(p)}{p^2} + \frac{\text{var}(V)}{V^2} + \frac{\text{var}(S)}{S^2}$$

La variance sur la pente s'écrit comme suit :

$$\text{var}(p) = \frac{\sum [(t_i - \bar{t})^2 \text{var}(A_i)]}{\left[\sum (t_i - \bar{t})\right]^2}$$

La variance relative sur la pente s'écrit alors :

$$\frac{\text{var}(p)}{p^2} = \frac{\sum [(t_i - \bar{t})^2 \text{var}(A_i)]}{\left[\sum [(t_i - \bar{t}) A_i]\right]^2}$$

La variance relative sur le flux surfacique d'exhalation du radon s'écrit alors :

$$\frac{\text{var}(\phi)}{\phi^2} = \frac{\sum [(t_i - \bar{t})^2 \text{var}(A_i)]}{\left[\sum [(t_i - \bar{t}) A_i]\right]^2} + \frac{\text{var}(V)}{V^2} + \frac{\text{var}(S)}{S^2}$$

L'incertitude type sur le flux surfacique d'exhalation du radon, u_ϕ , est donné par la relation :

$$u_\phi = \sqrt{\text{var}(\phi)}$$

d'où :

$$u_\phi = \phi \times \sqrt{\frac{\sum [(t_i - \bar{t})^2 \text{var}(A_i)]}{\left[\sum [(t_i - \bar{t}) A_i] \right]^2} + \frac{\text{var}(V)}{V^2} + \frac{\text{var}(S)}{S^2}}$$

L'incertitude élargie sur le flux surfacique d'exhalation du radon, u_ϕ , avec un facteur d'élargissement k , est donnée par la relation :

$$U_\phi = k \cdot u_\phi$$

L'incertitude élargie sur pente, u_p , avec un facteur d'élargissement k , est donnée par la relation :

$$u_p = k \cdot \sqrt{\text{var}(p)}$$

**ANNEXE 5 : ACTIVITES VOLUMIQUES DU RADON MESUREES
DANS L'EAU**

	Forage	profondeur (m)	²²² Rn (Bq.L ⁻¹)
Octobre 2001	PE	robinet	450
	mF2	25	98
	F19	20	112
	F28	30	431
		40	362
		45	430
		50	670
		70	817
	90	710	
	mF1	25	135
F30	11		
Novembre 2002	PE	robinet	611
	F34	30	672
		90	643
	F28	35	968
		70	1019
	F35	30	843
		105	707
	F13	65	42
	F22	50	1470
	F9	67	393
F20	55	430	
Mars 2004	F28	30	522
		50	636
		60	720
		75	704

	Forage	profondeur (m)	²²² Rn (Bq.L ⁻¹)
Juin 2004	F28	30	309
		50	715
		65	764
		75	731
	F11	85	622
		45	415
		60	466
		70	460
		92	554
	F35	26	881
		110	744
	F20	20	639
	F6	45	1083
	mF1	19	112
	F21	55	
		63	
	F26	55	137
		63	115
	F13	63	36
	F22	23	1523
50		1321	
65		1367	
F30	20	107	
	60		
F9	67	381	
F34	35	481	
	75	602	
	90	380	
F19	22	62	
	40	135	
	75	126	
mF2	10	61	

Annexes

	Forage	profondeur (m)	²²² Rn (Bq.L ⁻¹)
Décembre 2004	P1	8	192
	P2	8	265
	B3	25	543
		33	665
		50	638
		65	622
		83	591
	B1	27	358
		36	713
		48	765
		62	736
		75	688
	B2	25	375
		35	439
		45	493
		60	512
		85	517
F22	20	1322	
	35	1317	
	50	1597	
	65	1412	

	Forage	profondeur (m)	²²² Rn (Bq.L ⁻¹)
Avril 2005	F28	30	176
		30	224
		50	680
		65	806
		75	809
	F11	85	774
		45	460
		60	483
	F19	70	451
		92	531
		23	84
	F35	40	141
		75	205
		26	852
	F20	110	834
		62	738
	F30	25	874
20		148	
F34	60	0	
	35	636	
	55	644	
	75	726	
F9	90	695	
	67	391	
	45	1137	
F6			

	Forage	profondeur (m)	²²² Rn (Bq.L ⁻¹)
Mai 2005	F32	60	716
		85	929
	F28	31	204
		50	369
		66	693
		75	647
		85	674
	F35	26	784
		63	780
		110	692
	F17	50	1211
	F19	65	242
		75	243
	F34	35	591
		74	690
		90	761
	F11	45	411
		65	432
		92	451
	F20	27	884
		55	927
	F6	45	1070
	MF2	25	142
F30	20	182	
	60	14	
	80	6	
F9	67	375	

	Forage	profondeur (m)	²²² Rn (Bq.L ⁻¹)
Ma 2006	B1	24,5	530
		50	563
		76,5	551
	B2	27,5	336
		45	350
		90	322
	B3	35,5	532
		43,5	496
		79	440
	F22	25	1023
		50	1048
	F11	45	329
	F38	130	428
	F37	50	398
		100	491
	MF3	30	61
	MF4	26	168
MF5	27	254	

ANNEXE 6: ARTICLE “HYDROGEOLOGICAL AND GEOCHEMICAL CONTROL OF THE VARIATIONS OF ²²²Rn CONCENTRATIONS IN A HARD ROCK AQUIFER: INSIGHTS ABOUT THE POSSIBLE ROLE OF FRACTURE-MATRIX EXCHANGES”

Article soumis à la revue *Applied Geochemistry*.

Hydrogeological and geochemical control of the variations of ^{222}Rn concentrations in a hard rock aquifer: insights about the possible role of fracture-matrix exchanges

T. Le Druillenec ^{a,b,*}, G. Ielsch ^b, O. Bour ^c, C. Tarits ^a, G. Tymen ^d, L. Aquilina ^c, G. Alcalde ^b

^a IUEM, UMR CNRS 6538, Université de Bretagne Occidentale, Brest, France

^b IRSN DEI/SARG – Laboratoire d'Etude du Radon et d'Analyse des Risques – BP17- 92262 Fontenay-aux-Roses, France

^c CAREN - Géosciences Rennes, UMR 6118, Rennes, France

^d ERCS « LaRAAH » - Université de Bretagne Occidentale, Brest, France

Abstract:

To investigate the possible variations of radon concentration in crystalline rocks depending on flow conditions, we achieved a field study of a fractured aquifer located in a granitic basement. Our method relies on *in-situ* measurement of radon in groundwater, aquifer tests for the determination of hydraulic settings of the aquifer and in-laboratory measurement of radon exhalation rate from rocks. We have also tested an available simple crack model which considers the radon concentration in water circulating in a fracture intersecting a borehole.

Further to a field study targeted to the characterization of the distribution of radon concentrations in water in the boreholes of the site, the contents in groundwater were in the range of 192 to 1 597 Bq.L⁻¹. The radon exhalation rates of selected samples of granite and micaschists were determined during laboratory experiments. Our results gave fluxes varying from 0.5 to 1.3 mBq.m⁻².s⁻¹ in granite and from 0.5 to 0.9 mBq.m⁻².s⁻¹ in micaschists. Pumping tests were performed in the boreholes under study in order to estimate transmissivity and calculate equivalent hydraulic aperture of the fractures. Transmissivities ranged from 10⁻⁵ to 10⁻³ m².s⁻¹. Hydraulic equivalent fracture apertures calculated by using the cubic law fell within 0.5 and 2.3 mm.

To gain a better insight into the spatial variability of radon contents in groundwater, we calculated theoretical radon concentrations from the simple crack model using results from field and laboratory experiments. It gave satisfactory results for boreholes characterized by low-flow conditions; in this case, the calculated radon contents were in the range of radon concentrations set by the analytical uncertainty on radon concentration measurement in water. However, for boreholes characterized by high-flow conditions, the model underestimated the radon concentrations in groundwater. The higher the flow in the fracture was, the larger the difference between calculated and radon concentrations measured in water was. These observations led us to perform pumping test to have a better insight of the hydrogeological control of radon content in water. The results clearly highlighted an increase of the radon content in groundwater after the pumping test which seems to be explained by the input of radon-rich waters from the host matrix.

Keywords: Radon, groundwater, granite, fractured aquifer, fracture-matrix exchanges

* Corresponding author. Tel :+ 33-1-58 35 80 81

Fax: :+ 33-1-58 35 80 35

E-mail address: geraldine.ielsch@irsn.fr

1. Introduction

Radon-222 (^{222}Rn) is a radioactive noble gas (half-life 3.8 days) produced from radium-226 further to the radioactive decay of uranium-238; it occurs naturally in ground waters and derives primarily from U-rich rocks and minerals that have been in contact with water (Andrews and Wood, 1972). In the environment, the concentration of radon in waters is highly variable because of variations in rocks characteristics and flow distribution. It is worth noting that groundwaters from fractured igneous and high-grade metamorphic rocks frequently exhibit a high activity of dissolved radon (Andrews et al., 1989; Folger et al., 1996; Banks et al., 1998; Wood et al., 2004). Radon-222 concentrations in waters are liable to provide significant and relevant information on both the geometry of a fracture network and the flow distribution. Indeed, the radon content of fluids is expected to respond to changes in both fluxes variations, and in the extent and length of the water/rock contact which in turn depends on the fracture surface. The fluxes variations and the extent of the water/rock contact both rely on the flux distribution, which implies to characterize the Rn-222 exhalation and the hydraulic parameters to understand Rn-222 concentration distribution in boreholes.

As radon content in waters is known to depend on many factors such as porosity and uranium content of the rock, several methods have been described in the literature to predict radon-222 concentrations in pore water from microscopic properties of rock (Semkow, 1990; Torgersen et al., 1990). Some of the parameters, e.g. the specific surface area of the solid, surface roughness and radium distribution, are hardly measured or quantified in the field. As a consequence, the application of these models to natural systems is difficult.

These considerations drove Wanty et al. (1992) to derive a theoretical model to predict the abundance of ^{222}Rn in water in contact with a rock. Their model is less rigorous than others, but its implementation is far much easy. Though it can be applied to calculate the concentration of radon in pore water of crystalline rocks, it is unable to take into account the fracture-network geometry and the water flow rate in the aquifer.

Models aimed at giving insight into ^{222}Rn activity in ground water of fractured rocks need to consider how the radon content in waters is affected by the hydraulic parameters of the aquifer and the fracture characterization. Rumbaugh (1983) and Andrews et al. (1986) developed mathematical models where ^{222}Rn contents of ground water in a fracture-dominated aquifer are a function of fracture aperture and radon exhalation flux from rocks. Nelson et al. (1983) proposed a model to calculate radon concentrations in waters radially-converging on a borehole and considered the effect of flow rate on groundwater radon content. This model relies on the determination of radon concentrations from several parameters, including fracture aperture, radon exhalation rate from rocks and ground water volumetric inflow beneath the fracture. To our knowledge, no report about the application of this theoretical model to a natural system is available in the literature.

Our study aimed at characterizing radon-222 concentrations in groundwaters of a restricted area located in Brittany (France) trying to investigate both the exhalation properties of the rock and the hydraulic parameters of the site. At first, it relied on: i) field data for the determination of radon concentrations in well-

waters in ambient conditions, e.g. for flow Q imposed by natural conditions within the boreholes, and for various values of Q , in pumping conditions. ii) hydraulic features of fractures and iii) in-laboratory experiments for the assessment of radon exhalation rates of rocks. Characterization of radon-222 evolution during pumping tests allowed the relation concentration-flux dependency to be tested. We investigated whether radon content of water can be related to fracture aperture and ground water volumetric inflow as predicted from Nelson's model. Then, this model was tested through comparison of experimental data with the radon concentrations in water predicted by calculation.

2. Environmental setting of the study site: Stang-er-Brune

2.1 Geology

The Stang-er-Brune site is an experimental area located in the vicinity of the deep-water plant of Ploemeur (France) (Fig. 1). The Ploemeur aquifer consists of a 100 m deep groundwater reservoir in a fractured bedrock characterized by igneous and metamorphic rocks (Touchard, 1999; Tarits et al., 2006). Since 1991, the deep-water plant of Ploemeur has been exploited as the main source of tap water for a medium sized city (18 000 inhabitants). Its annual water production is about 10^6 m^3 . The pumping amount is varying according to the inhabitant needs of water. The Ploemeur site is located on a 2.5 km^2 watershed at 25 m, in average, above sea level.

The geology of this part of southern Brittany is characterized by the South-Armorican Shear Zone. This structure is a North-East trending shear zone, which extends on several hundreds of kilometres along the southern border of Brittany. The development of this structure was accompanied with an intense tectonic activity. The Ploemeur aquifer is located at the highly fractured contact between massive granites and surrounding micaschists (Fig. 1). This contact zone, that may be locally very permeable (Le Borgne et al., 2004; 2006a; 2006b), consists of alternate sub-horizontal units mainly made of granite, micaschists or pegmatite. The formations may be locally weathered at the surface down to a depth of about 8 to 10 meters. Below the weathered zone, the rocks show variable degrees of fracturing.

The Stang-er-Brune experimental site is located about 3 kilometres westward of the pumping site. It covers an area of 400 m^2 in a stand of old deciduous woodland between open fields. It consists of three shallow piezometers (P1, P2 and P3) drilled to 10 m and four deeper boreholes (F22, B1, B2 and B3) drilled to 73, 84, 100 and 100 m respectively (Fig. 2). The borehole, B1, was cored over its whole 84-m-length. The field-site is located very near this contact zone (Fig. 1). Local geology was previously studied from drill cuttings obtained from boreholes and from the drilled core (Ellis et al., 2004). Fig. 2 gives a schematic representation of the boreholes. Micaschists are found up to a depth of 40 meters while massive granites are found at greater depth. Locally, rocks are highly fractured (Le Borgne et al., submitted).

2.2 Hydrogeology

The site hydrogeology was detailed in Le Borgne et al. (submitted). A vertical flow naturally occurs in the three deep boreholes, B1, B2, B3. Such flow results from the difference between hydraulic head

conditions in the fractures that intersect the wells. The ambient vertical flow in boreholes was previously determined by Le Borgne et al. (submitted) from single borehole flowmeter tests. They also identified the main flow zones intersected by wells and characterized the fast connection flow paths between boreholes. In boreholes B1, B2 and B3, the vertical hydraulic circulation was identified as being ascending. The depths of major inflows were estimated at 78, 98 and 80 m for B1, B2 and B3, respectively (Le Borgne et al., submitted). No clear determination of the vertical hydraulic circulation all along F22 is available because of the reduced flow rates occurring in this borehole. Flow rates at the depth of the main producing fractures of each borehole have been estimated at $1.7 \cdot 10^{-5}$, $5.0 \cdot 10^{-6}$, $5.3 \cdot 10^{-5} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ in boreholes B1, B2, B3 respectively (Le Borgne et al., submitted). A flow rate of about $1.7 \cdot 10^{-6} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ has been measured at some places in boreholes F22. For this study, we will use this value although it is very close to the limit of resolution of the heat-pulse flowmeter used to measure flow within boreholes. Uncertainty on flow rate measurement is about 10% for boreholes B1 and B3 and 20% for B2.

Note that no flow measurements were made during the radon sampling but similar natural flows are expected to occur due to similar hydraulic head conditions. In this discharge area, the hydraulic heads of boreholes B1, B2 and B3 is about 1 meter above the hydraulic head of the shallow piezometers P1, P2, P3. Such a difference shows the greater hydraulic head of the deep fractures encountered in boreholes B1, B2, and B3. Borehole F22, where no micaschists have been encountered, presents an intermediate value of the hydraulic head.

The transmissivity of each producing fracture was inferred from cross-borehole flowmeter tests and packers tests (Le Borgne et al, submitted).

3. Data acquisition

3.1 Field measurements of radon volume activity in water

During a field season held in December 2004, water samples were collected in 6 boreholes with a two-holed automatic groundwater sampler. For each well, the sampling depth at the top of the water column was always five meter under the water table depth in order to avoid partial degassing with ambient air. Sampling was made under ambient conditions, and individual bearing fractures were not isolated during sampling. The samples of water, therefore, result from the mixing between waters from different contributing fractures.

A second field campaign was organized in May 2006. Pumping tests were performed to evaluate the influence of inflow rate on radon content in fracture water. Water samples were collected in boreholes B1, B2, B3 and F22 as a function of the pumping tests progress. Sampling was made by using a MP1 Grundfos® pump.

For the determination of radon concentrations in water, the analytical system in use consists of an ionization chamber (AlphaGUARD™) coupled to a degassing unit (AquaKIT™). The whole system is closed. The degassing unit is made of a gas pump, a degassing vessel, a condenser vessel and radon proof

plastic tubing (Schubert et al., 2006). The radon concentration measurement in the water sample is based on the partitioning of radon from the water sample into the gas stream circulating through the system. In the closed system, a defined volume of air is bubbled with a gas pump through a defined volume of water (100 mL). The radon, which is dissolved in the water sample, is transferred to the air stream in accordance to the radon partitioning coefficient between water and air valid at the temperature of concern. After establishment of radon equilibrium conditions between air and water, the concentration of gaseous radon in the air measured in the ionization chamber is converted into the aqueous radon concentration in the water. The order of magnitude of the error associated with sample collection and analytical measurement is about 10%. In order to establish the validity of this technique, parallel radon concentrations measurements have been made using the Lucas cell and liquid scintillation methods

3.2 Field measurements of physical properties of the aquifer

In complement of the transmissivities determined by Leborgne et al. (submitted), new values were inferred from the drawdown measurements made during the pumping tests performed in May 2006. The pumping rate in boreholes B1, B2 and B3 was 0.7 L.s^{-1} during 1 h and then 2 L.s^{-1} during 3 h. In Borehole F22, water was pumped at a rate of 0.4 L.s^{-1} during 2.5 h and then 0.7 L.s^{-1} during 1.5 h.

3.3 Laboratory tests: radon exhalation rate and radium-226 activity of rock samples

The radon exhalation rate from rocks was measured according to the accumulation technique (AFNOR, 2002) by using an accumulation chamber connected to a continuous radon monitor. The analytical system is composed of an ionization chamber (AlphaGUARD™) screwed on a cone-shaped container of 30 cm in diameter and 20 cm in height. The radon-detector is operated in diffusive mode, and risk of leakage is prevented by a silicon sealant positioned at the base of the container.

For analysis, the samples were placed one after one in the container. The activity of radon emanated from sample was measured in successive 10-min cycles over a 6-h period. On condition to assume a negligible disintegration of radon-222 over a 6-h measurement, the radon exhalation rate (E) per unit area of sample ($\text{Bq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$) is expressed as:

$$E = (\Delta C.V) / (\Delta t.S) \quad (1)$$

where C is the radon concentration in the air of the container (Bq.m^{-3}), t is the elapsed time (s), V is the bulk of the system (m^3) and S is the surface of the sample (m^2).

The radon exhalation rate was measured on 6 dry and solid samples of rocks collected from a drilled core of the field site (borehole B1); 2 of them from micaschists sample and the last 4 from granites ones. These samples were chosen in order to test the effect of weathering and fracturing on radon exhalation measurements. A lithological and mineralogical description of the samples is given in table 1.

Radium-226 activity in rock samples was measured at the LETS laboratory (French institute of nuclear safety and radiation protection, IRSN) by γ -ray spectrometry. The setup consisted of an HPGe detector with a PC-based data acquisition and analysis system. The γ -peak of ^{214}Pb and ^{214}Bi were used as the signature of ^{226}Ra . All rock samples were crushed to a fine powder with a particle size less than 0.16 mm. Each sample was homogenized and dried in a temperature controlled furnace at 110 °C for 2-6 h to remove moisture. After cooling, the dry materials were sealed in gas-tight, radon impermeable, cylindrical containers ($V= 6.5 \text{ cm}^3$). These samples were left for 4-5 weeks to allow for Ra and its short-lived progeny to reach radioactive equilibrium. Natural radioactivity of each sample was then measured for 48 h. Radium-226 activity in rock samples was then determined from the calibration curve obtained.

4. Modelling of radon concentrations in water

To gain more insight about the relationship between flow rate and radon concentrations in groundwaters, Nelson et al. (1983) developed a single crack model by assimilating a fracture to a thin flat disk of aperture, h (m), intersecting a vertical borehole of radius, a (m) (Fig. 3). In their development they expressed the contribution to the influx of radon entering the borehole of an elemental annulus of width dr producing radon at a rate E as being:

$$dI = E \exp(-\lambda t) 2\pi r dr \quad (2)$$

They also considered that the radon volume activity in the water results from the contribution of a unique elemental annulus. In this model, the fracture is represented as a pair of parallel plates. If we assume that both faces of the fracture are implicated in radon influx, and then, two elemental annuli have to be taken into account to calculate radon concentration in water, the total influx becomes, in agreement with Andrews et al. (1986):

$$dI = 2E \exp(-\lambda t) 2\pi r dr \quad (3)$$

The radon concentration in water, C_o (kBq.L^{-1}), is then:

$$C_o = 2 (E / \lambda h) [1 - \exp(-\lambda \pi h (b^2 - a^2) / Q)] \quad (4)$$

where E is the radon exhalation rate per unit area of rocks ($\text{Bq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$), λ is the decay constant of ^{222}Rn ($2.1.10^{-6} \text{ s}^{-1}$), h is the fracture aperture (m), b is the radius of the ^{222}Rn source disk (m), a is the radius of the well (m), and Q is the volumetric inflow ($\text{m}^3.\text{s}^{-1}$).

The concentration of radon in water is strongly dependent on flow rate and source geometry. On condition that the inflow rate be high or the source area be small enough to be crossed by the fluid in a fraction of the radon half-time, the concentration at the borehole may be expressed as:

$$C_o = 2[E\pi(b^2 - a^2)/Q] \quad (5)$$

Under this condition, the concentration of radon in water is inversely flow rate-dependent. On the other hand, whenever Q is small, or the source area is large, the concentration of ^{222}Rn in water varies only with the fracture aperture, and C_0 becomes:

$$C_0 = 2E / \lambda h \quad (6)$$

The main advantage of this model is the possible assessment of its parameters through field- and in-lab-experiments. Moreover, it suggests possible variations of radon concentrations depending of water inflows that may be of great help to explain the radon concentrations measured in the water of an aquifer.

5. Results and discussion

In this section, we present the results of radon exhalation rate measurements obtained on rock samples and transmissivities estimation. Afterwards, we give the results of the radon concentrations measured in groundwater in ambient conditions, e.g. for flow Q imposed by natural conditions occurring in the boreholes, and we compare these data with modelling predictions calculated using the simple crack model and the chemical and physical properties of the aquifer. Finally, we expose the radon contents measured for various values of Q , in pumping conditions, and analyse the possible dependency of the radon concentration with flow conditions and the possible influence of waters coming from the host rock.

5.1 Radon exhalation rate and radium-226 activity of rock samples

Table 2 lists the radon exhalation rates per unit area and the radium-226 activities measured on the samples of rocks from the drilled core. Physical properties of each rock sample are also registered.

Radon exhalation rate vary between 0.5 and 1.3 $\text{mBq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ with a mean of 0.87 $\text{mBq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$. It is worth noting that the highest exhalation rate is measured on a sample taken at a depth corresponding to a fractured zone. The mean value is lower in micaschists samples than in granites ones (0.69 and 0.96 $\text{mBq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$, respectively). According to the literature (Andrews et al., 1986; Carrera et al., 1997; Chao and Tung, 1999; Al-Jarallah, 2001; Keller et al., 2001; Lee et al., 2001) the range of exhalation fluxes for granitic rocks is 0.08 to 21.7 $\text{mBq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$. Our field measurement results are, therefore, in the lower part of this scale. The small radon exhalation flux measured in this study can be related to the fine-grained texture of the Ploemeur granite and to the small porosity associated with it. The lack of available data about exhalation flux from micaschists prevented us from making comparison with other studies.

As micaschists are currently admitted to contain less radium than granites, we measured radium-226 activity by gamma spectrometry in our rock samples and found, in average, about 70 Bq.kg^{-1} for micaschists and 150 Bq.kg^{-1} for granites. The radium-226 activity is among the parameters that control the radon exhalation rate of rocks. Common range of ^{226}Ra activities found in granitic rocks is 2 to 200 Bq.kg^{-1} (Pavlidou et al., 2006, Xinwei et al., 2006, El-Arabi, 2007). Concentration exceptionally reaches values higher than 300 Bq.kg^{-1} in acidic granites (Xinwei et al., 2006, El-Arabi, 2007). Consequently, our results are consistent with previous publications.

A prerequisite to the calculation of radon concentration in water circulating within a fracture is the finding of the exhalation rate the most representative of the considered fractured zone. We, thus, established which, among the rock samples, exhibited the lithological features expected for such a fracture surface. Studies have shown that the present day mineralogy in a water circulating fracture is very different from the mineralogical composition in the matrix (MacQuarrie and Mayer, 2005). Water-rock interaction in the fracture leads to matrix alteration and secondary minerals precipitation onto fracture walls. The alteration of the matrix adjacent to fracture walls may be few centimetres thick. In oxidizing conditions, common secondary minerals are ferrous oxides and hydroxides. It is well known, that radium adsorption on these minerals is important in waters (Levinson et al., 1982; Valentine et al., 1985; Kronfeld et al., 1991). Consequently local enrichment in radium concentrations of fracture walls and increasing porosity of rock due to matrix alteration leads to an increase of the radon exhalation flux. Thus, one should expect to measure different radon exhalation flux on a sample taken at the depth of a water bearing fracture, and on another corresponding to the depth of a fracture disconnected from the hydrogeological network and showing less intensive alteration. Thus, we selected the radon exhalation rate obtained on a sample of granite, which was weathered, iron-stained and fractured. Furthermore, this sample was collected at the depth corresponding to the location of the major inflow of well B1, *i.e.* in a zone of water circulation. This sample was constituted of five parts of a 6-cm-diameter drilled core. Each part was 4 to 6 cm long. The exhalation rate in air was $1.3 \pm 0.4 \text{ mBq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ (Table 1).

The in-laboratory experiments for the determination of radon exhalation rate of rocks were carried out on dry samples. In the case of aquifer bedrock, the whole porosity of rock is supposed to be water-filled and thus the exhalation rate reduced. According to experiments by Andrews et al. (1986) the amount of radon released in water is 25 to 50% of that in the air. The lithological features of the leucogranite cored in borehole B1 (U-content and porosity) led us to consider that, under saturated conditions, the exhalation rate of the sample of rock selected was half the one in the air. We, therefore, assumed both a rate of $0.65 \pm 0.2 \text{ mBq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ for water-saturated rocks and a constant value in every well for fracture surfaces.

5.2 Hydrogeological setting and hydraulic properties

We inferred aperture of producing fractures from their transmissivity by applying the cubic-law. The transmissivity of each producing fracture was estimated from drawdown measurement carried out during the pumping tests in May 2006 and from cross-borehole flowmeters tests (Le Borgne et al., submitted). The range of transmissivities obtained lies within 10^{-5} to $10^{-3} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$ (Table 3). Boreholes F22 and B3 respectively present the lowest and highest transmissivities. Such values reflect the very good permeability of this shallow fractured aquifer. For the fracture at the origin of the major flow for each well, we calculated a theoretical hydraulic aperture from transmissivity by using the cubic law (Table 3):

$$h = (12T\mu/\gamma)^{1/3} \quad (7)$$

Where μ is the dynamic viscosity, and γ is the specific weight of water.

Hydraulic equivalent fracture apertures calculated by using the cubic law fell within 0.5 and 2.3 mm.

5.3 Radon volume activity in water in ambient conditions

The radon concentration in the 6 boreholes varied from 192 to 1 597 Bq.L⁻¹ with an average of 703 Bq.L⁻¹. These concentrations are consistent with radon activities measured in groundwater of similar bedrock aquifers. The range of radon concentration in water of granitic aquifers is assumed to extend from several to 10 000 Bq.L⁻¹ (Lawrence et al., 1991; Wanty et al., 1992; Folger et al., 1996; Folger et al., 1997; Banks et al., 1998; Wood et al., 2004).

The highest and lowest concentrations were measured in F22 and shallow piezometer P1, respectively. These results highlight the variability in the spatial and vertical distributions of ²²²Rn activity in groundwater (Fig. 4).

5.3.1 Correlations between radon concentrations in water and lithology

The radon activity is the lowest in the upper part of the weathered micaschists (boreholes P1 and P2), whereas the highest concentrations are found in granitic bedrocks. Waters of borehole F22 (borehole drilled in low-fractured granite) exhibit the uppermost concentrations, whatever is the sampling depth, with an average of 1 412 Bq.L⁻¹. Radon content in waters of boreholes B1, B2 and B3 averages 631 Bq.L⁻¹, wherever granite is the main lithology (under the depth of 35 m). On the other hand, when micaschists are encountered, ²²²Rn concentrations are lower (average of 426 Bq.L⁻¹ in B1, B2 and B3). Note that the uppermost water samples were collected at depths just above or very close to major outflow zones, where no flow are expected.

Such concentrations are commonly found in groundwater from granitic basements. According to literature data, the most common range of radon concentrations in fractured crystalline aquifers is 0 - 1 000 Bq.L⁻¹ (Banks et al., 1998). However, exceptional higher values can, sometimes, be expected in low permeability aquifers where activities may exceed 10 000 Bq.L⁻¹ (Andrews et al., 1989).

5.3.2 Variations of radon concentrations in water and hydrology

The boreholes of the field site are characterised by multiple inflow points and a vertical water flow. Then, the groundwater in the borehole very likely results from a mixing of several waters with different ²²²Rn concentrations. However, as we assumed a negligible mixing at the depth of the most producing fracture of each well, because it supplies most of the flow at the intersection with the well, we only took into account the radon concentrations measured in waters sampled at the depth of the major inflow of each well. This assumption allowed us to consider that it was representative of the water circulating within the fracture.

For boreholes B1, B2 and B3, the radon concentration at the major inflow depth is 700, 520 and 620 Bq.L⁻¹, respectively. One should note that the location of the major inflow for borehole F22 remains

unclear. This drives us to consider that the mean of the ^{222}Rn concentrations found in F22 waters at 20, 35, 50 and 65 m, i.e. $1\,412\text{ Bq.L}^{-1}$, is representative of the ^{222}Rn content of the water circulating in the fracture.

5.3.3 Comparison with model predictions

The estimation of the key parameters through in-lab and field experiments make possible the assessment of the ability of a model to accurately predict radon concentrations in the water of a fractured aquifer using the exhalation rates and the hydraulic parameters of the fractures.

Note that the influence of the vertical flux in the borehole could be compared with that of a pumping, even in ambient conditions (Fig. 5). Consequently radial converging flow could be assumed in the main fracture of each borehole and the model could be applied.

Fig. 6 shows the theoretical variation of the radon concentration of groundwater as a function of water inflow rate in boreholes B1, B2, B3 and F22 calculated using the model proposed by Nelson et al. (1983). The radon concentrations were calculated from (4) and the parameter values given in Table 3 (e.g. transmissivity, fracture aperture and inflow rate). The solid-curve was calculated by using an exhalation flux of $0.65\text{ mBq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ (see section 5.1), and the dash-curves depict concentrations calculated on considering analytical uncertainty on this exhalation flux ($\pm 0.2\text{ mBq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$).

At first order, the comparison of the theoretical results (curves) with the radon concentrations measured in groundwater (circles) is very good, especially for boreholes B2 and F22. For these two boreholes, the calculated concentration is about 10% lower than the one measured in water. This difference is negligible since it is about the order of magnitude of analytical uncertainty in radon concentration measurement. Nevertheless, it also clearly highlights a strong underestimation by the model of the radon contents in groundwater for the most permeable boreholes B1 and B3. Indeed, in B1, the calculated radon concentration is half the one measured in water, and in B3 it is about 80% lower. Furthermore, one should note that the higher the water inflow rate is in the fracture, the greater the difference is between the model-predicted radon concentrations and those measured in water.

The extent of the discrepancy between model predictions and field measurements is such that its origin is worth being investigated. It is essential to determine whether the observed differences are induced by the uncertainties associated with the parameters, and/or whether the use of the single-crack model is correct for the fracture-network behaviour of some of the boreholes investigated (particularly the equivalent single fracture aperture inferred from transmissivity).

The radon content of water in the fracture is strongly dependent on the groundwater residence time, which is controlled by the flow rate, Q , and the radius of the ^{222}Rn source disk, b . The residence time is long (several half-lives of ^{222}Rn) when either Q is small or the source area is large. Under these conditions, the concentration varies inversely with fracture aperture (6). It is worth noting that the highest radon content that can be found in water is expressed by (6). On the other hand, the residence time is short in the case of high flow ($Q \gg \lambda\pi h(b^2 - a^2)$), or small source area. Under these conditions, the concentration is increasing linearly

with the disk radius and inversely decreasing with Q (5). As a result, the radon content in groundwater is likely affected by changes in water inflow rate or ^{222}Rn disk source. We will present below the respective effects of these parameters and the uncertainty related to the main parameters of the model: exhalation and fracture aperture.

5.3.4. Estimation of uncertainty

- Influence of the ^{222}Rn source disk radius variation

The ^{222}Rn source disc radius b is obviously a major source of uncertainty. Note that we consider b as the radius of influence of the flow and not the geological limits of fracture extension. It is dependent on the hydraulic characteristics of the aquifer (water flow rate, fracture aperture). We always assumed a 50-m disc radius for the boreholes of the field site. Its estimation is rather difficult. To test the sensibility of the model, we assumed an error of 50% associated with this parameter. The predicted increase of the radon concentration in groundwater with the extension of the source area led us to test the model by setting a value of 75 m to the disc radius that corresponds to the value of b with the maximum uncertainty. The model still underestimated the radon contents in groundwater: the model-calculated concentrations were still 30% lower than those measured in water for borehole B1 and about 65% for borehole B3.

- Influence of the water volumetric inflow variation

The radon concentration in water is dependent on water flow, Q , in the fracture at a high flow ($Q \gg \lambda\pi h(b^2 - a^2)$). Equation 5 shows that, under this condition, the concentration is decreasing inversely with Q . According to the parameters values used for the boreholes, the radon content in water is affected by changes in flow rate only in boreholes B1 and B3. But, when considering the range of water flow rate variations (limits set by the 20% uncertainty on flow) the radon concentration calculated with a lower flow rate in B1 and B3 (40 and 25 $\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ for B1 and B3, respectively) still underestimated the radon concentration measured in these boreholes. Despite the flow rate-dependency of the radon concentration, the variations due to the uncertainty on flow are unable to explain the difference between field observations and calculations from the model of radon content in water in boreholes B1 and B3.

- Influence of the radon exhalation rate variation

Equation 4 evidences the linear increase of the radon concentration in groundwater with the radon exhalation rate. The use of a higher radon flux of rocks in calculation, e.g. higher than the flux measured on our samples, gives a new theoretical value of radon content in water much closer to the one measured in groundwater. Thus, a radon exhalation rate around $1.3 \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ is required for boreholes B1, whereas a rate close to $3 \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ is needed for B3 to obtain a radon concentration in groundwater of $700 \text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ and $620 \text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ for B1 and B3 respectively. Though these rates are in the range of those reported in the literature for granitic rocks (see section 5.1), they are much greater than the one given by measurements on our samples. Indeed, the maximum flux is $1.3 \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ in the air, which leads, for the same sample surrounded by water, to a radon exhalation rate of $0.65 \pm 0.2 \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$. The analytical uncertainty

associated with the flux may partly explain the discrepancy between the concentrations calculated from the model and those measured in boreholes B1 and B3, but the concentrations are still underestimated. Considering the radon exhalation rate with the uncertainty, the calculated concentrations are 470 Bq.L^{-1} and 190 Bq.L^{-1} for B1 and B3 respectively. The difference observed between calculated and measured radon volume activities in water cannot come only from the radon exhalation rate of rocks.

- Influence of fracture aperture variation

According to the cubic law, a fracture aperture varies as the cube root of transmissivity on condition to represent the fracture as a pair of parallel plates. Because large errors are associated with transmissivity estimation, we assumed uncertainty on hydraulic aperture as being as large as 30%. This is approximately equivalent than considering an error about the fracture transmissivity by a factor of 2. Fracture width controls the maximum radon content liable to be reached in groundwater. For long residence times, the concentration varies inversely with the aperture along the fracture. According to the model, a greater radon content in water will result from a narrower fracture. However, increase of concentration related to variation of fracture width within this interval is not sufficient to account for the difference observed between predicted and measured radon content in groundwater.

5.4 Radon volume activity in water during pumping conditions

5.4.1 Evolution of water concentrations during pumping in boreholes B1, B2, B3

According to the model, whenever the residence time exceeds several half-lives of ^{222}Rn , the maximum radon concentration liable to be found in ground water is given by (6). It shows that the exhalation rate of rocks and fracture aperture, E and h , respectively, seem to have the stronger influence on radon concentration in groundwater. Contrary the water flow rate and the disc radius, Q and b , respectively, seem to have a less important implication in radon content change in groundwater. But, it is worth underlining that the uncertainty on E and h cannot lead to a radon content as high as those measured in groundwater of boreholes B1 and B3 (see section 5.3.4). To assess the validity of the simple crack model proposed by Nelson et al. (1983), we also tested the $1/Q$ dependence of the radon concentration. As water flow rate increases in the fracture, the model predicts a decrease of the radon content in water.

In May 2006, we performed pumping tests successively in boreholes B2, B3, F22 and B1 (see section 3.2). Before these tests, radon concentrations were first measured in all the wells to have references values. During pumping in a given borehole, we followed the evolution of radon concentrations in water of this well. The Fig. 7 presents the results obtained for boreholes B1, B2 and B3. No significant variation appeared in borehole B1 and B3. In borehole B2, an increase occurred in the first part of the pumping test and a small decrease appeared thereafter. Unlike the variations of radon content in water predicted by the model, the concentration of radon in groundwater of the study site was either increasing or constant with flow rate growth generated by pumping.

5.4.2 Global evolution of water concentrations through time during the field experiment

Furthermore, during water was pumped in one well, radon concentrations were measured in the other boreholes. The Fig. 8 presents the evolution of the radon volume activity in the wells during the entire progression of the experiment.

A particular trend in the radon content in groundwater has to be noticed after the first set of pumping tests performed in boreholes B2 and B3. During the time the pumping was stopped, at night, the radon concentration in groundwater clearly increased in all the boreholes. The increase of radon content in groundwater was about 50% in boreholes B1, B2 and F22. In B3 the concentration has enhanced by a factor two.

Note that this delayed response is observed only after the two successive pumping in boreholes B2 and B3. This major pumping led to an overall decrease of the hydraulic head over the whole site (Fig. 9). Although major drawdown recovery was observed immediately after pumps were turned off, the necessary time for the whole recovery was about 6 to 8 hours whatever the borehole.

The others pumping either in F22 or in B1 were much lower. The pumping of borehole F22, that never exceeded 0.7 L.s^{-1} , was very low because of the very low permeability of this well. It has a very limited effect on water level on other boreholes, about 1 to 3 centimetres in boreholes B1, B2 or B3, although the observed drawdown was about 10 metres in borehole F22. The pumping in borehole B1 was greater, but its effect on drawdown was much less significant than the cumulative effects of the two successive pumping on boreholes B2 and B3. No recovery time is observed after pumping in B1. Note anyway that we did not measure radon concentrations after the pump in B1 has been turned off. Some change in the radon concentration may also have occurred.

We can also observe that the radon content in water immediately decreased in the boreholes as the pumping test started on in F22. The concentration rapidly reached the values measured at the end of the pumping in B2.

These results highlight two interesting phenomena. An important increase of the radon concentration is only noticed after the major pumping tests as large drawdown is observed. It disappeared as soon as a slight pumping has been made on the site. In the following paragraphs we propose an explanation for these evolutions.

5.4.3 Enhancement of fracture-matrix exchanges as a possible source of radon

To explain the delayed increase of the radon concentration observed during the break after the successive pumping in B2 and B3, one can first involve the contribution of radon-rich water from another zone not yet identified by the existing boreholes. In other words, the permeable fracture network could be connected to another permeable zone where radon concentration could be much higher. However, although it should lead to changes in water concentration, this explanation is not really convincing for the following reasons. Firstly, the existence, in the vicinity of the study site, of an area with the same lithology but presenting a higher

radon concentration still has to be proved. Secondly, it is difficult to explain why an increase of the radon content in water would be observed after the pumping in boreholes B2 and B3 and not during pumping in the other wells. Finally, since the different boreholes are connected together, further pumping in borehole F22 the day after should enhance the increase of radon concentration in water instead of removing it.

Another possible explanation would be to involve the contribution of a more radon-rich water coming from the host rock. Fracture-matrix exchanges are indeed dependant on the hydraulic head gradients. The successive pumping of B2 and B3 may have conducted to a long hydraulic disequilibrium between the hydraulic head in the matrix with the one in the fractures leading to possible slight fluxes from the matrix towards the permeable connected fractures. In other words, after the major pumping, the radon concentration within the permeable fracture network would not result only from the exhalation of fracture surface, but also from slight flow from the host rock. Note that it implies that the radon concentration in the host rock is much greater than the ones observed in the fracture network. This point will be investigated in the next section.

The implication of the host rock is consistent with the observed delayed response of the aquifer. Although the hydraulic disequilibrium between the matrix and the permeable fractures is at its maximum during pumping, the time to flow from the matrix towards the fractures depends on the permeability of the host rocks that is expected to be quite low. Thus, one may forecast a delayed response from the matrix that would be observed only if a long disequilibrium exists between both reservoirs. In a case of a low permeability zone, waters transfers are very slow. It implies that a longer time is necessary to supply the fractures with water from the rock matrix, as observed during the pumping tests. Such interpretation is in good agreement with the investigation of chemical concentrations in such heterogeneous media which suggests that micro sites in the low-permeability matrix may act as biogeochemical reactors (Legout et al., 2005; Ayraud et al., 2006; Tarits et al., 2006).

Moreover, since the fracture reservoir has a very low storage, it may also be flushed very easily with a slight pumping, such as the one made in borehole F22. In other words, the slight pumping of borehole F22 may have had very small effects on the hydraulic head over the site but may have contributed to completely renew the fracture water with one flowing usually within the site. This is in agreement with the immediate decrease of the radon content in water of the boreholes as the pumping test has started on in F22.

5.4.4 Estimation of the Radon concentration in the host rock

These observations lead us to propose a conceptual model to explain the discrepancy observed between the concentrations predicted by the simple crack model and those measured in groundwaters of high flow zones. It consists in considering the aquifer as a multi-permeability system: the fracture network, with high permeability and the rock matrix, with low permeability. Note that in this hypothesis, we consider the fracture network as the main flow pathways, while rock matrix may be either the unfractured rock matrix or the weathered fracture walls or even secondary fractures of lower permeability. Consequently, the concentration of radon in groundwater can be interpreted as a mixing between water circulating in the

fracture and water located in the rock matrix partially altered and located in the vicinity of the fracture. Rama and Moore (1984) first highlighted the existence of radon transfer from nanopores to pores of rocks by diffusion processes.

The radon content of water circulating in the fracture can be estimated by using a simple crack model, such as the one proposed by Nelson et al. (1983), and depends on the radon exhalation flux and the water flow rate in the fracture. The low-permeability zone connected to the fracture has physical properties close to those of the rock matrix. Then, models aimed at calculating the radon content of water in the pores of the rock can be used to calculate the ^{222}Rn concentration in this zone. Wanty et al. (1992) and Przylibski (2000) proposed a model to predict the abundance of ^{222}Rn in water in contact with a rock of known uranium or radium content. The equation (8) describes the dependence of ^{222}Rn concentration in groundwater, C_{Rn} , on several parameters:

$$C_{\text{Rn}} = K_{\text{em}} \times C_{\text{Ra}} \left(\frac{1 - \Phi}{\Phi} \right) \times d \times (1 - e^{-\lambda t}) \quad (8)$$

Where K_{em} , is the emanation coefficient of the rock (–), C_{Ra} , is the radium-226 content in the rock (Bq.kg^{-1}), d , the rock density (kg.m^{-3}), Φ , is the rock porosity (%), λ , is the radioactive decay constant of radon ($2,1.10^{-6} \text{ s}^{-1}$) and t (s), is the time of groundwater flow through the zone of radon exhalation from the rock (in this case equal to 10 half-lives of ^{222}Rn – 38.2 d after which time barely 0.098% of the original amount of this isotope is left).

Equation (8) can be used to predict radon activities in groundwater based on the emanation coefficient of the rock. Using this equation, a family of curves is calculated for varying rock porosities (Fig. 10). The model values are calculated for a porosity of 1 to 5%, an average density of $2\,700 \text{ kg.m}^{-3}$ and a radium-226 content of rock of 150 Bq.kg^{-1} (average activity measured on granite samples of this study). As seen in Fig. 10, for a given emanation coefficient value, higher radon concentrations in groundwater are expected in rocks of lower porosity. Wanty et al. (1992) and Przylibski (2000) found emanating coefficient for granites always less than 0.3. For a rock matrix partially altered, a porosity of 4-5% and an emanation coefficient of 0.2-0.3 could be considered. Thus, the realistic range of radon content in water provided by (8) ranges from 1400 to $2\,700 \text{ Bq.L}^{-1}$. It illustrates that the concentration of radon in the pores of the Ploemeur granite may be much higher than the one recorded in the water circulating in the permeable fractures. Thus, the radon concentrations in crystalline rocks may depend on lithology, on flow conditions but also on fracture-matrix exchanges.

7. Conclusions

An heterogeneous, fractured granitic aquifer (Ploemeur, Brittany) has been investigated in order to characterize the radon content in groundwater of a small-scale site. The finding by field measurements of a large range of radon concentrations in groundwater highlights the variability of radon concentrations occurring in a fractured crystalline aquifer. These observations led us to determine the factors known to

affect the radon content in the water of fractures. The flow rate and the aperture of the water-bearing fractures were estimated from pumping tests performed in the field site, and the radon exhalation flux of rocks was measured through in-laboratory experiments. Afterwards, this study assessed the ability of a single-crack model proposed by Nelson et al. (1983) to accurately predict radon concentrations in the water of a crystalline aquifer through comparisons with field-measurements. Our investigations clearly evidenced that the model provide relevant concentrations in waters of boreholes characterized by low-transmissivity and low-flow conditions. Indeed, for these wells, the difference between measured and predicted radon concentrations in water was less than the analytical uncertainty on radon volume activity in water. However, a quite large discrepancy appeared in boreholes characterized by high-transmissivity and high-flow rate. In the borehole where the highest flow rate occurs, the concentration calculated using the model is 80% lower than the radon content measured in groundwater.

These observations indicate that the single-crack model does not account for all the radon dissolved in the water of the fracture. Thus, the results of pumping tests performed in the boreholes improved our understanding of the system. After the pumping test, an increase of the radon content in groundwater occurred and evidenced a contribution of a radon-rich water to supply the flow rate that seems to come from the low-permeability rock matrix.

This study highlights the complexity of modelling groundwater radon concentrations in a fractured aquifer. If modelling under low-flow conditions zones with a quite simple model gives satisfactory results as tested in this study, it is worth carrying out experimental modelling to gain more insight into the influence of the geometrical configuration of the fracture network on the radon content in waters. Furthermore, it seems quite promising to perform longer pumping test to better understand the response of the aquifer to an increase of the water flow rate in the fractures. Such experiments would let us know which radon content would be reached in groundwater, after equilibrium hydraulic conditions are achieved in the aquifer. It could be a promising way to further study the relationships between the fractured network and the rock matrix. Thus, the influence of the water coming from the host rock on radon concentrations in groundwater finally seems to have to be taken into account to explain the extreme variability of radon activities observed in the aquifer in ambient conditions. Complementary experiments should be attempted to better understand the importance of the host rock in the radon concentration variability in groundwaters.

Acknowledgements

This study was carried out within the framework of both the ERO program (French Environmental Research Observatory) and the Research Program of Regional Interest DATEAU. The authors wish to thank Mathieu Dupuis and Olivier Diez for the measurement of radon exhalation rate from rocks and Marie-Paule Friocourt (Université de Bretagne Occidentale) for English editing.

References

- AFNOR (Association française de normalisation), 2002. NF M60-768 - Energie nucléaire - Mesure de la radioactivité dans l'environnement air - Le Radon 222: Méthodes d'estimation du flux surfacique d'exhalation par méthode d'accumulation.
- Al-Jarallah, M., 2001. Radon exhalation from granites used in Saudi Arabia. *J. of Environ. Radioact.*, 53 (1): 91-98.
- Andrews, J.N., Hussain, N., Batchelor, A.S. and Kwakwa, K., 1986. ^{222}Rn solution by the circulating fluids in a "hot dry rock" geothermal reservoir. *Appl. Geochem.*, 1 (6): 647-657.
- Andrews, J.N., Hussain, N. and Youngman, M.J., 1989. Atmospheric and radiogenic gases in groundwaters from the Stripa granite. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 53 (8): 1831-1841.
- Andrews, J.N. and Wood, D.F., 1972. Mechanism of radon release in rock matrices and entry into groundwaters. *Trans. Inst. Min. Metall.*, B81: 198-209.
- Ayraud, V., Aquilina, L., Pauwels, H., Labasque, T., Pierson-Wickmann, A. C., Aquilina, A. M., Gallat, G., 2006. Physical, biogeochemical and isotopic processes related to heterogeneity of a shallow crystalline rock aquifer. *Biogeochem.*, 81 (3): 331-347.
- Banks, D., Frengstad, B., Midtgard, A.K., Krog, J.R. and Strand, T., 1998. The chemistry of Norwegian groundwaters: I. The distribution of radon, major and minor elements in 1604 crystalline bedrock groundwaters. *Sci. Total Environ.*, 222 (1-2): 71-91.
- Carrera, G., Garavaglia, M., Magnoni, S., Valli, G. and Vecchi, R., 1997. Natural radioactivity and radon exhalation in stony materials. *J. of Environ. Radioactivity*, 34 (2): 149-159.
- Chao, C.Y.H. and Tung, T.C.W., 1999. Radon emanation of building material-impact of back diffusion and difference between one-dimensional and three-dimensional tests. *Health Phys.*, 76: 675-681.
- El-Arabi, A.M., 2007. ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K concentrations in igneous rocks from eastern desert, Egypt and its radiological implications. *Radiation Measurements*, 42 (1): 94-100.
- Ellis, P.A., Riley, M.S., Gresswell, R.B. and Isakov, E.B., 2004. Report on the Ploemeur Site construction, Geology and Structure. Unpublished manuscript.
- Folger, P.F., Poeter, E., Wanty, R.B., Day, W. and Frishman, O., 1996. Controls on ^{222}Rn variations in a fractured crystalline rock aquifer evaluated using aquifer tests and geophysical logging. *Ground Water*, 34 (2): 250-261.
- Folger, P.F., Poeter, E., Wanty, R.B., Day, W. & Frishman, D., 1997. ^{222}Rn transport in a fractured crystalline rock aquifer: results from numerical simulations. *Journal of hydrology* 195: 45-77.
- Keller, G., Hoffmann, B. and Feigenspan, T., 2001. Radon permeability and radon exhalation of building materials. *Sci.Total Environ.*, 272 (1-3): 85-89.
- Kronfeld, J., Ilani, S. and Strull, A., 1991. Radium precipitation and extreme ^{238}U -series disequilibrium along the Dead Sea coast, Israel. *Appl. Geochem.*, 6 (3): 355-361.
- Lawrence, E., Poeter, E. & Wanty, R., 1991. Geohydrologic, geochemical, and geologic controls on the occurrence of radon in ground water near Conifer, Colorado, USA. *Journal of hydrology* 127(1-4): 367-386.
- Le Borgne, T., Bour, O., De Dreuzy, J.R., Davy, P. and Touchard, F., 2004. Equivalent mean flow models for fractured aquifers: Insights from a pumping tests scaling interpretation. *Water Resour. Res.*, 40 (3).
- Le Borgne, T., Bour, O., Paillet, F.L. and Caudal, J.P., 2006a. Assessment of preferential flow path connectivity and hydraulic properties at single-borehole and cross-borehole scales in a fractured aquifer. *J. Hydrol.*, 328 (1-2): 347-359.
- Le Borgne, T. et al., submitted. Multi-method investigation of fracture connectivity in crystalline rock. *J. Hydrol.*
- Le Borgne, T., Bour, O., Riley, M., Gouze, P., Lods, G., Belghoul, A., Gresswell, R., Le provost, R., Pezard, P. Borgne, T., Paillet, F., Bour, O. and Caudal, J.P., 2006b. Cross-borehole flowmeter tests for transient heads in heterogeneous aquifers. *Ground Water*, 44 (3): 444-452.
- Lee, S.C., Kim, C.K., Lee, D.M. and Kang, H.D., 2001. Natural radionuclides contents and radon exhalation rates in building materials used in South Korea. *Radiat. Prot. Dosim.*, 94 (3): 269-274.

- Legout, C., Molenat, J., Lefebvre, S., Marmonier, P. and Aquilina, L., 2005. Investigation of biogeochemical activities in the soil and unsaturated zone of weathered granite. *Biogeochem.*, 75 (2): 329-350.
- Levinson, A., Bland, C. and Lively, R., 1982. Exploration for U ore deposits. In M. Ivanovitch et R.S Harmon. *Uranium Series Disequilibrium: Applications to Environmental problems*: 351-383.
- MacQuarrie, K.T.B. and Mayer, K.U., 2005. Reactive transport modelling in fractured rock: A state-of-the-science review. *Earth-Sci. Rev.*, 72 (3-4): 189-227.
- Nelson, P.H., Rachiele, R. and Smith, A., 1983. Transport of radon in flowing boreholes at Stripa, Sweden. *J. Geophys. Res.*, 88: 2395-2405.
- Pavlidou, S., Koroneos, A., Papastefanou, C., Christofides, G., Stoulos, S., Vavelides, M., 2006. Natural radioactivity of granites used as building materials. *Journal of Environmental Radioactivity*, 89 (1): 48-60.
- Przylibski, T.A., 2000. Estimating the radon emanation coefficient from crystalline rocks into groundwater. *Appl. Radiat. Isot.*, 53 (3): 473-479.
- Rumbaugh, J.O., 1983. Effect of fracture permeability on radon-222 concentration in ground water of the Reading Prong, Pennsylvania. M.S. Thesis, Pennsylvania State University.
- Schubert, M., Buerkin, W., Peña, P., Lopez, A.E. and Balcázar, M., 2006. On-site determination of the radon concentration in water samples: Methodical background and results from laboratory studies and a field-scale test. *Radiat. Meas.*, 11 (4): 492-497.
- Semkow, M.R., 1990. Recoil-emanation theory applied to radon release from mineral grains. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 54: 425-440.
- Tarits, C., Aquilina, L., Ayraud, V., Pauwels, H., Davy, P., Touchard, F. Bour, O., 2006. Oxido-reduction sequence related to flux variations of groundwater from a fractured basement aquifer (Ploemeur area, France). *Appl. Geochem.*, 21 (1): 29-47.
- Torgersen, T., Benoit, J. and Mackie, D., 1990. Controls on groundwater Rn-222 concentrations in fractured rock. *Geophys. Res. Lett.*, 17 (6): 845-848.
- Touchard, F., 1999. Etude hydrogéologique d'un aquifère en socle fracturé : site de Ploemeur (Morbihan). PhD Thesis, Univ. Rennes 1.
- Valentine, R.L., Splinter, R.C., Horn, J.J., M.Nogaj, T. and Lauch, R.P., 1985. Factors Affecting Radium Reduction in an Iron Removal Process. *Proceedings of American Water Works Association Annual Conference*.
- Wanty, R.B., Lawrence, E.P. and Gundersen, L.C.S., 1992. A theoretical model for the flux of radon from rock to ground water. In: A.E. Gates, and Gundersen, L.C.S. (Editor), *Geologic Controls on Radon*, Geological Society of America Special Paper 271, pp. 73-78.
- Wood, W.W., Kraemer, T.F. and Shapiro, A., 2004. Radon (^{222}Rn) in ground water of fractured rocks: A diffusion/ion exchange model. *Ground Water*, 42 (4): 552-567.
- Xinwei, L., Lingqing, W., Xiaodan, J., 2006. Radiometric analysis of Chinese commercial granites. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 267 (3): 669-673.

Figures and tables captions

Figure 1: Location map of the study site (Stang-er-Brune), together with observation wells and deep boreholes.

Figure 2: Geological logs showing units from selected boreholes.

Figure 3: Thin crack model of radon transport. Water flows radially at a rate Q through a thin crack of aperture h into the borehole.

Figure 4: Variations of radon concentration versus depth in boreholes of the study site.

Figure 5: Schematic representation of the converging-flow conditions in the main fracture related to ascending flow in the borehole due to different hydraulic head conditions.

Figure 6: Calculated and measured concentrations of ^{222}Rn in water as a function of water inflow rate in boreholes B1, B2, B3 and F22. Curves have been calculated using the model of Nelson et al. (1983). Circles are the radon concentrations measured in water of the most productive fracture of each borehole.

Figure 7: Evolution of the radon content in groundwater of boreholes B1, B2 and B3 during the pumping tests performed in April 2006. Concentrations presented here have been measured during the time water was pumped in each borehole.

Figure 8: Variations of radon concentrations in groundwater during pumping tests. Concentrations have been measured in the water of the well under pumping and in the water of other boreholes in order to observe the influence of pumping in the pumped and unpumped wells. The grey-boxes indicate the borehole under pumping and the duration of each test.

Figure 9: Variations of the piezometric level in the boreholes F22, B1 and B3 and in the piezometer P1 during the pumping tests. Dash lines indicate the time's interval of pumping tests in each borehole. Successive pumping in B2 and thereafter in B3 are depicts are a unique interval.

Figure 10: Calculated values of ^{222}Rn in water into the pores of the rock matrix as a function of emanation coefficient and porosity of the rock.

Table 1

Lithological and mineralogical description of rock samples

Table 2

²²²Rn exhalation rates and radium-226 activities measured on rocks samples from the study site.

Table 3

Values of parameters used for model testing and measured in the field.

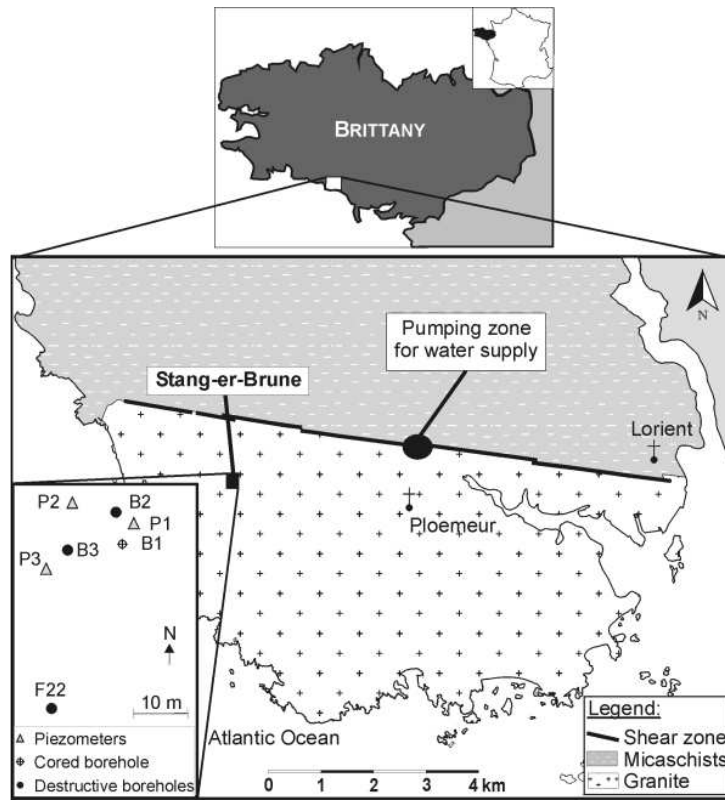


Figure 1

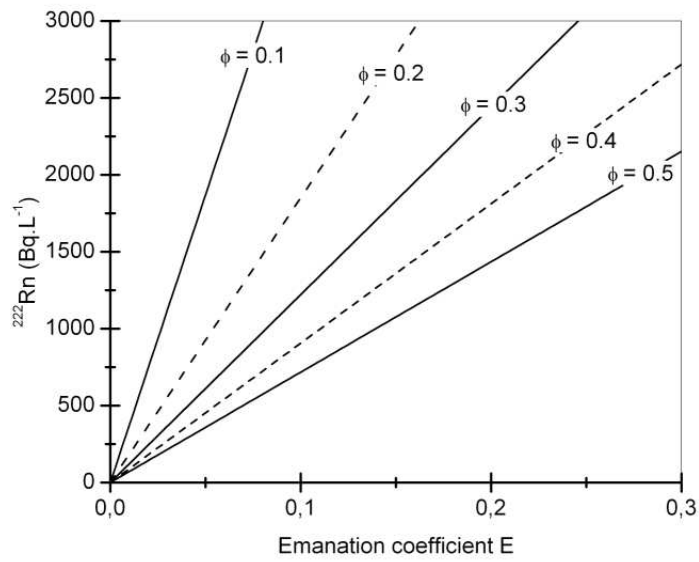


Figure 2

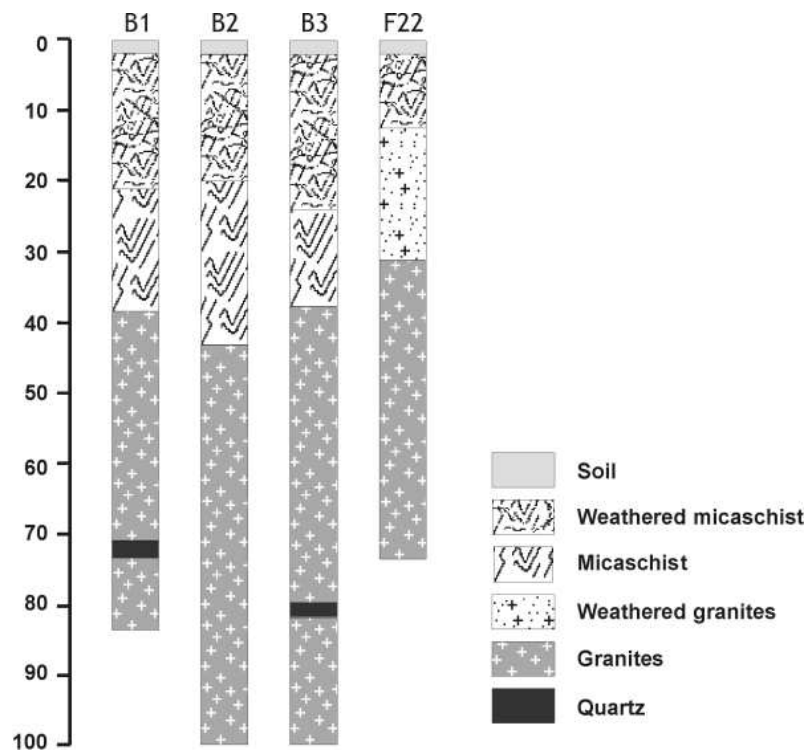


Figure 3

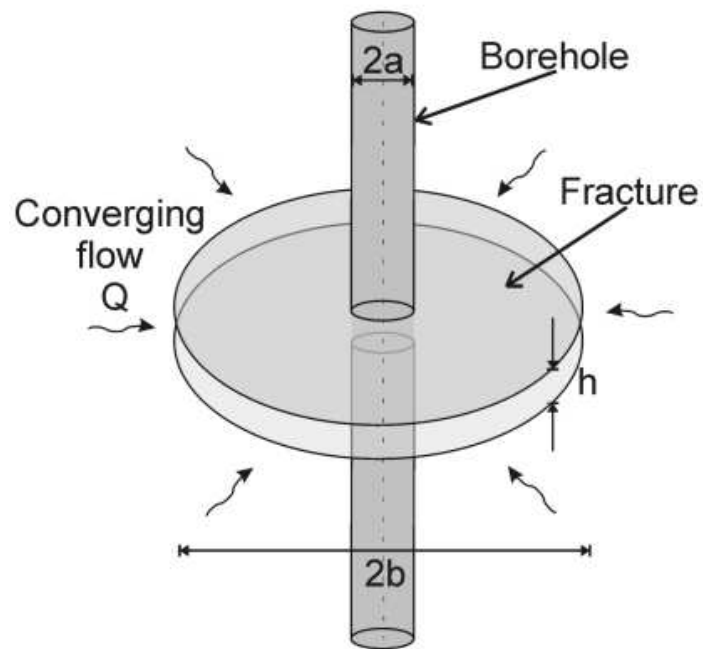


Figure 4

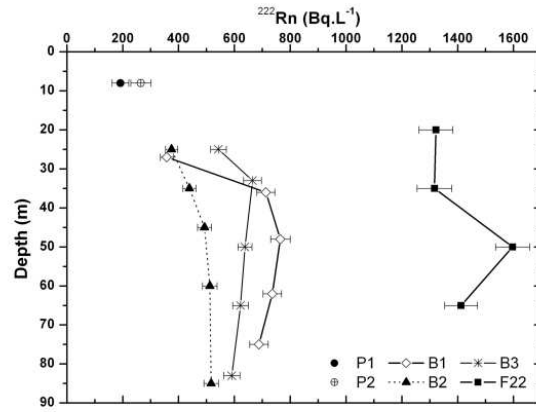


Figure 5

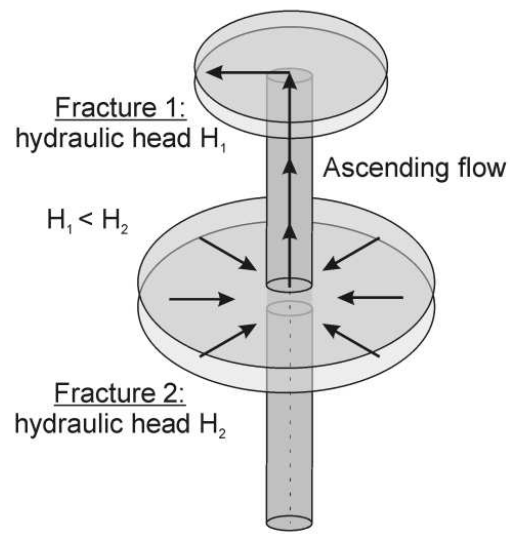


Figure 6

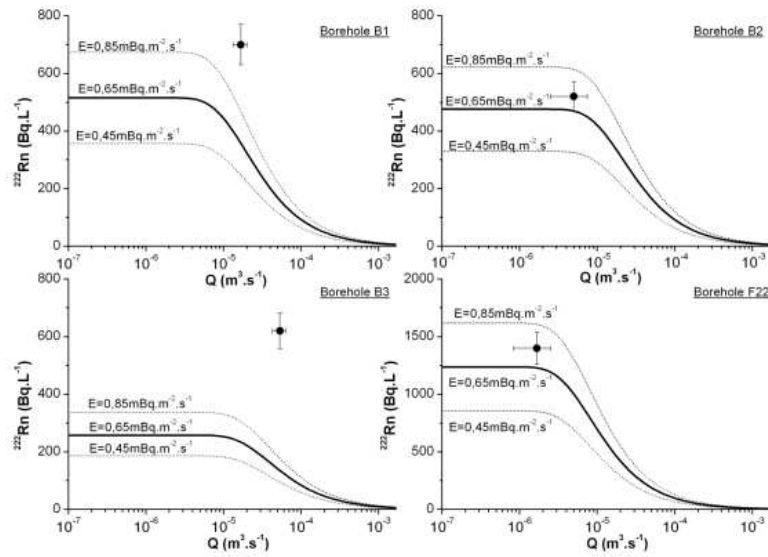


Figure 7

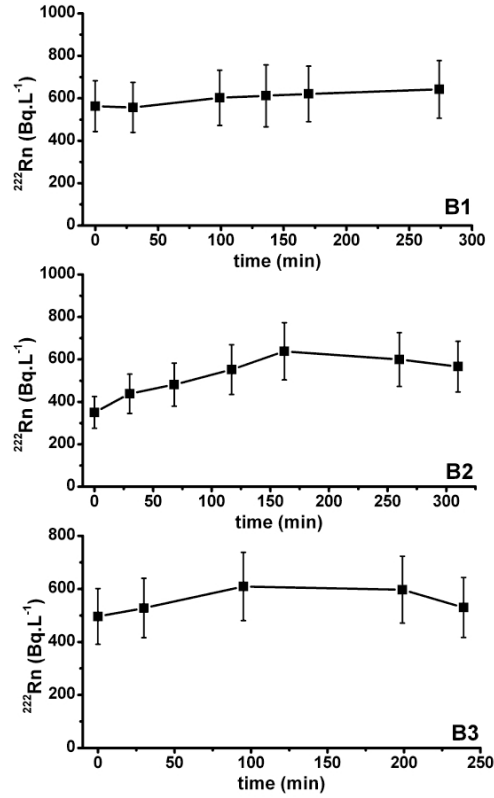


Figure 8

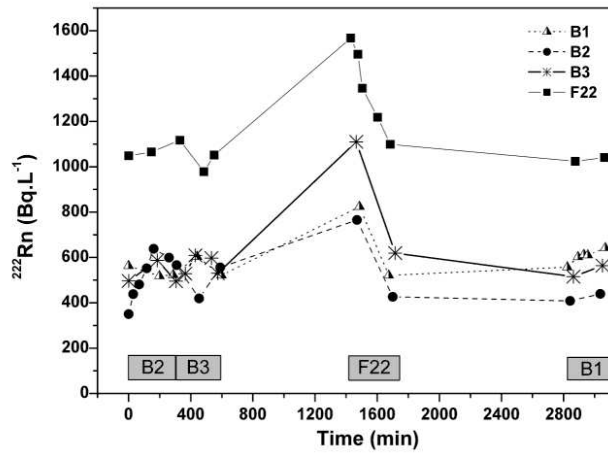


Figure 9

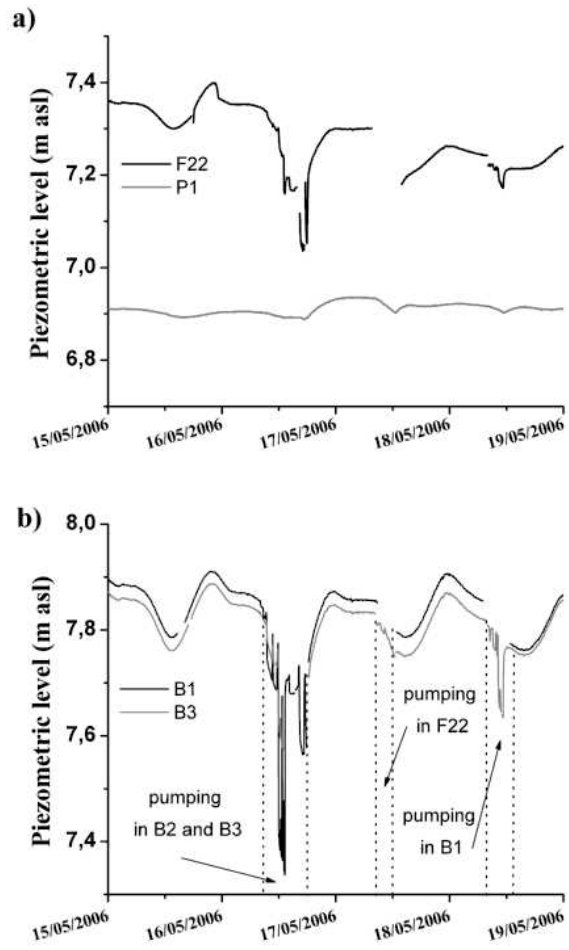


Figure 10

Table 1:

Rock sample	Sampling depth (m)	Rock type	Texture-Structure	Mineralogy ^a	Alterations
C5	27	micaschist	Very fine texture, Mylonitic structure	Qz, K-F, Bi, Mu, Zr	unaltered
C9	34	micaschist	Very fine texture, Mylonitic structure	Qz, K-F, Bi, Mu, Zr	fractured, hydroxydes
C13	48	granite	Heterogenous grained texture	Qz, K-F, Bi, Mu, Ap	hydroxydes
C17	60	granite	Heterogenous grained texture	Qz, K-F, Bi, Mu, Zr, Ap	unaltered
C20	69	granite	Heterogenous grained texture	Qz, Pl, K-F, Bi, Mu, Zr, Ap	highly fractured
C23	79	granite	Grained texture	Qz, Pl, K-F, Bi, Mu, Zr, Ap	highly fractured, hydroxydes

^a Abbreviations: Qz = quartz, Pl = plagioclase, K-F = K-feldspar, Bi = biotite, Mu = muscovite, Zr = zircon, Ap = apatite

Table 2:

Rock sample	Sample volume (cm ³)	Sample area (cm ²)	²²² Rn <i>E</i> (mBq.m ⁻² .s ⁻¹)	A _m ²²⁶ Ra (Bq.kg ⁻¹)
C5	370	300	0.9 ± 0.2	88 ± 10
C9	400	400	0.5 ± 0.4	50 ± 6
C13	400	880	1.2 ± 0.5	172 ± 20
C17	1300	1000	0.9 ± 0.3	227 ± 26
C20	1100	1270	0.5 ± 0.2	208 ± 24
C23	750	950	1.3 ± 0.4	136 ± 16

Table 3:

Borehole	Depth of producing fracture (m)	Transmissivity (m ² .s ⁻¹)	Fracture aperture ¹ (mm)	Inflow rate (m ³ .s ⁻¹)	²²² Rn (Bq.L ⁻¹)
B1	78	1.44.10 ⁻⁴	1.2	1.7.10 ⁻⁵	700
B2	98	2.00.10 ⁻⁴	1.3	5.0.10 ⁻⁶	520
B3	80	1.00.10 ⁻³	2.3	5.3.10 ⁻⁵	620
F22	50	1.00.10 ⁻⁵	0.5	1.7.10 ⁻⁶	1400

¹ Aperture calculated from transmissivities

